

RESEARCH REPORT
OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

核 理 研 研 究 報 告

第 27 卷 第 1 号

1994 年 6 月

東 北 大 学 理 学 部

原 子 核 理 学 研 究 施 設

刊 行 規 定

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

投 稿 規 定

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

仙台市太白区三神峯1-2-1 郵便番号 982

東北大学理学部原子核理学研究施設

「核理研研究報告」編集委員長

核理研研究報告 第27巻 第1号 目次

I 原子核物理

- I-1 Near-Threshold Photopion Absorption Regime in ^{182}W 1

(サンパウロ大, 核理研*, 理学部物理**, 工学部***)

J. D. T. Arruda-Neto, 斎藤悌二郎*, 菅原 真澄*,
玉江 忠明*, 宮瀬 晴久**, 阿部 健***,
今野 收*, 及川 正道*, S. Simionatto, A. Deppman,
B. S. Bhandari

- I-2 Measurement of De-excitation γ -Rays Following the Photodisintegration
of ^{16}O : a Test of the Quasi-Deuteron Model in Photonuclear Reactions above
the GDR 6

(メルボルン大, 核理研*, 理学部物理**)

A. Kuzin, D. A. Sims, R. P. Rassool, M. N. Thompson,
寺沢 辰生*, 伊藤 秀昭*, 伊藤 祥子*, 今野 收*,
前田 和茂**

II 物性物理

- II-1 多チャンネル配列検出器による遠赤外パルスラジオリシス 15

(工学部応用物理, 科研*, 核理研**)

近藤 泰洋, 鈴木 吉朗, 下山 克彦, 高橋 俊晴*,
伊師 君弘*, 荒井 史隆*, 長谷部 茂*, 蔦谷 勉*,
柴田 行男*, 大坂 俊明*, 池沢 幹彦*, 浦澤 茂一**,
中里 俊晴**, 小山田正幸**, 山川 達也**

III 放射化学

- III-1 混合溶媒(メタノール/水)中における Tm^{3+} の化学的挙動の研究 23

(金研, 静岡大理学部*)

菅沼 英夫*, 佐藤伊佐務, 高橋 三幸, 三浦 重幸,
原 光雄, 三頭 聰明, 大森 巍*

III-2	メキシコ, ラ・オルデーニャ地域の火山活動(1)	27
	メキシコ火山帯活動初期の火山岩の岩石学, 地球化学	

(理学部地球物質科学, Comisión Federal de Electricidad^{*})

長谷中利昭, 吉田 武義, 石川 賢一, A. R. Salinas^{*}

III-3	メキシコ, ラ・オルデーニャ地域の火山活動(2)	43
	メキシコ火山帯の活動域の移動	

(理学部地球物質科学, 地質調査所^{*}, Comisión Federal de Electricidad^{**})

長谷中利昭, 吉田 武義, 宇都 浩三^{*}, 内海 茂^{*}

A. R. Salinas^{**}

IV 加速器・測定装置

IV-1	V系輸送ビームのデューティ・ファクターの改善	55
	(核理研)	

武藤 正勝, 今野 収, 柴崎 義信, 玉江 忠明,

伊藤 祥子, 篠崎 章久, 寺沢 辰生

IV-2	Outgassing Characteristics and Surface Analysis of Pure Aluminum Plates Following Electron-Beam Irradiation	61
	(神戸製鋼, 核理研 [*])	

多井 勉, 今野 収^{*}

IV-3	水晶からのコヒーレントなチェレンコフ放射	74
	(科研, 工学部応用物理 [*] , 核理研 ^{**})	

高橋 俊晴, 柴田 行男, 伊師 君弘, 長谷部 茂,

蔦谷 勉, 大坂 俊明, 池沢 幹彦, 近藤 泰洋^{*},

鈴木 吉朗^{*}, 下山 克彦^{*}, 中里 俊晴^{**},

小山田正幸^{**}, 浦澤 茂一^{**}, 山川 達也^{**}

IV-4	コヒーレントな回折放射の観測	83
	(科研, 工学部応用物理 [*] , 核理研 ^{**})	

柴田 行男, 伊師 君弘, 高橋 俊晴, 長谷部 茂,

井原 泰介, 蔦谷 勉, 大坂 俊明, 池沢 幹彦,

近藤 泰洋^{*}, 鈴木 吉朗^{*}, 下山 克彦^{*}, 中里 俊晴^{**},

	小山田正幸 ^{**} , 浦澤 茂一 ^{**} , 山川 達也 ^{**}	
IV-5	多層薄膜から発生する遷移放射の薄膜枚数効果	97
	(京大工学部, 核理研 [*])	
	栗田 高明, 田中 隆次, 伊藤 秋男, 今西 信嗣	
	山川 達也 [*] , 小山田正幸 [*] , 浦澤 茂一 [*] , 中里 俊晴 [*]	
IV-6	パラメトリック X線の角度広がり測定(I)	106
	(広島大理学部, 核理研 [*])	
	遠藤 一太, 堀口 隆良, 小林 隆, 浦澤 茂一 [*] ,	
	小山田正幸 [*] , 中里 俊晴 [*] , 高島 圭史, 山川 達也 [*]	
V	加速器稼働状況	
V-1	平成5年度マシン報告	111
	(マシングループ)	
	栗原 亮, 浦澤 茂一, 大沼 忠広, 小山田正幸,	
	柴崎 義信, 高橋 重伸, 中里 俊晴, 武藤 正勝	
VI	論文リスト	117

Research Report Laboratory of Nuclear Science
Volume 27, Number 1, June 1994
Contents

I Nuclear Physics

- I - 1 Near-Threshold Photopion Absorption Regime in ^{182}W 1
J. D. T Arruda-Neto, Teijiro Saito, Masumi Sugawara, Tadaaki Tamae,
Haruhisa Miyase, Ken Abe, Osamu Konno, Masamichi Oikawa,
S. Simionatto, A. Deppman and B. S. Bhandari
- I - 2 Measurement of De-excitation γ -Rays Following the Photodisintegration
of ^{16}O : a test of the Quasi-deuteron Model in Photonuclear Reactions above
the GDR 6
A. Kuzin, D. A. Sims, R. P. Rassool, M. N. Thompson,
Tatsuo Terasawa, Hideaki Itoh, Sachiko Ito, Osamu Konno and
Kazushige Maeda

II Material Science

- II - 1 Far Infrared Pulse Radiolysis by Using a Multichannel Detector 15
Yoshihiro Kondo, Yoshiro Suzuki, Katsuhiko Shimoyama,
Toshiharu Takahashi, Kimihiro Ishi, Fumitaka Arai, Shigeru Hasebe,
Tsutomu Tsutaya, Yukio Shibata, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa,
Shigekazu Urasawa, Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada and
Tatsuya Yamakawa

III Radiochemistry

- III - 1 Study on Chemical Behavior of Tm^{3+} in $\text{H}_2\text{O}/\text{Methanol}$
Mixed Solution 23
Hideo Suganuma, Isamu Satoh, Mitsuyuki Takahashi, Shigeyuki Miura,
Mitsuo Hara, Toshiaki Mitsugashira and Takashi Ohmori

III – 2	Volcanism of La Ordená Area, Mexico (1)	27
	Petrology and Geochemistry of Volcanic Products of an Early Stage Activity of the Mexican Volcanic Belt	
	Toshiaki Hasenaka, Takeyoshi Yoshida, Ken-ichi Ishikawa and A. R. Salinas	
III – 3	Volcanism of La Ordená Area Mexico (2)	43
	Migration of Volcanism in the Mexican Volcanic Belt	
	Toshiaki Hasenaka, Takeyoshi Yoshida, Kozo Uto, Shigeru Uchiumi and A. R. Salinas	
IV Accelerator and Instrumentation		
IV – 1	Improvement of Beam Duty-Factor in the New Beam Line	55
	Masakatsu Mutoh, Osamu Konno, Yoshinobu Shibasaki, Tadaaki Tamae, Sachiko Ito, Akihisa Shinozaki and Tatsuo Terasawa	
IV – 2	Outgassing Characteristics and Surface Analysis of Pure Aluminum Plates Following Electron-Beam Irradiation	61
	Tsutomu Ohi and Osamu Konno	
IV – 3	Coherent Cherenkov Radiation from Quartz	74
	Toshiharu Takahashi, Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Shigeru Hasebe, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Yoshiro Suzuki, Katsuhiko Shimoyama, Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa and Tatsuya Yamakawa	
IV – 4	Observation of Coherent Diffraction Radiation	83
	Yukio Shibata, Kimihiro Ishi, Toshiharu Takahashi, Shigeru Hasebe, Taisuke Ihara, Tsutomu Tsutaya, Toshiaki Ohsaka, Mikihiko Ikezawa, Yasuhiro Kondo, Yoshiro Suzuki, Katsuhiko Shimoyama, Toshiharu Nakazato, Shigekazu Urasawa, Masayuki Oyamada and Tatsuya Yamakawa	
IV – 5	Foil-Number Effect of Transition Radiation Emitted from a Foil Stack	97

Takaaki Awata, Takashi Tanaka, Akio Itoh, Nobutsugu Imanishi,
Tatsuya Yamakawa, Masayuki Oyamada, Shigekazu Urasawa and
Toshiharu Nakazato

IV-6 Angular Spread of Parametric X-Ray (I) 106

Ichita Endo, Takayoshi Horiguchi, Takashi Kobayashi,
Toshiharu Nakazato, Masayuki Oyamada, Yoshihumi Takashima,
Shigekazu Urasawa and Tatsuya Yamakawa

V Status Report on the Accelerator

V-1 Status of the Electron Linac 111

Akira Kurihara, Sigekazu Urasawa, Tadahiro Ohnuma,
Masayuki Oyamada, Yoshinobu Shibasaki, Shigenobu Takahashi,
Toshiharu Nakazato and Masakatsu Mutoh

VI List of Publications 117

I. 原 子 核 物 理

Near-Threshold Photopion Absorption Regime in ^{182}W

J. D. T. Arruda-Neto [†], T. Saito, M. Sugawara, T. Tamae,
H. Miyase, K. Abe, O. Konno, and M. Oikawa
S. Simionatto [†], A. Deppman [†], and B. S. Bhandari [†] *

Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University, Sendai, Japan
Physics Institute, University of Sao Pãulo, Sao Pãulo, Brazil [†]

§1. Experiment

The electrofission cross section of ^{182}W was measured in the range 80–250 MeV. A pronounced inflexion, corresponding to a sharp structure in the (γ, f) – curve, shows up in the 135–150 MeV energy interval. A photofission model, based on a photopion-deuteron absorption process, is worked out to explain these findings.

A target of ^{182}W ($\sim 650 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ thick) was irradiated with the electron beam of the Tohoku University Linac from 80 to 250 MeV, using mica foils as fission detectors, and a secondary emission device to monitor the electron beam. We refer to Ref. 1 for more details.

Preliminary data are shown in Figs. 1 and 2. It is quite interesting to note that, the same inflexions observed before for a number of preactinide nuclei ²⁻⁴⁾, are also evident in the electrofission yield curve of ^{182}W . The inflexions in the (e, f) curves correspond to structures in the (γ, f) curves, as discussed before ²⁻⁴⁾.

The inflexions around and above ~ 200 MeV (see Fig. 2), have been interpreted as a thermalization related effect in previous studies for Ta, Au, ^{208}Pb and ^{209}Bi ^{2, 4)}. On the other hand, the inflexion around the photopion threshold (~ 140 MeV) presents the most remarkable and intriguing meaning. In fact, this inflexion was recently interpreted, for Au and Ta, as a consequence of a probable photopion absorption in a “stopped pion regime” ³⁾.

The present (e, f) data for ^{182}W show a well delineated inflexion at ~ 135 –150 MeV. A preliminary unfolding of the (e, f) data, in this energy region, provides a (γ, f) curve with a pronounced peak at ~ 140 –145 MeV. This (γ, f) structure of ^{182}W (and those already

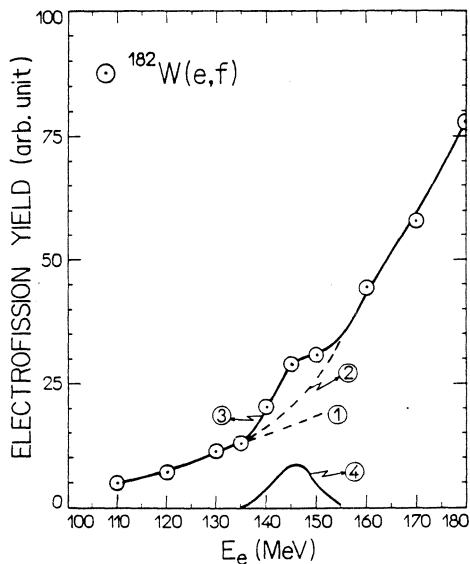


Fig. 1 Electrofission yield of ^{182}W , as a function of the electron energy. Curve ① is a linear extrapolation (to simulate QD-photoexcitation, alone) from $E_e \leq 135$ MeV. Curve ② is an interpolation that assumes a structureless photoexcitation process (for both QD and pion production). Curve ④ was obtained by subtracting curve ② from curve ③. Thus, curve ④ would represent the contribution from a “new mechanism” of excitation near the pion threshold (see text).

observed for other preactinides, as well) is being described by a simple model for photopion reabsorption near the threshold. The calculations are in progress, but we show below the main aspects of our approach.

§2. Model for photofission near pion threshold

The photofission cross section $\sigma_{\tau,f}$, as a function of the photon energy ω , is given by^{4,5)}

$$\sigma_{\tau,f}(\omega) = K \cdot \frac{E_x}{\omega} \cdot \sigma_{\tau}(\omega) \cdot P_f(E_f), \quad (1)$$

where $E_x = E_x(\omega)$ is the nuclear excitation energy, σ_{τ} is the total photoabsorption cross

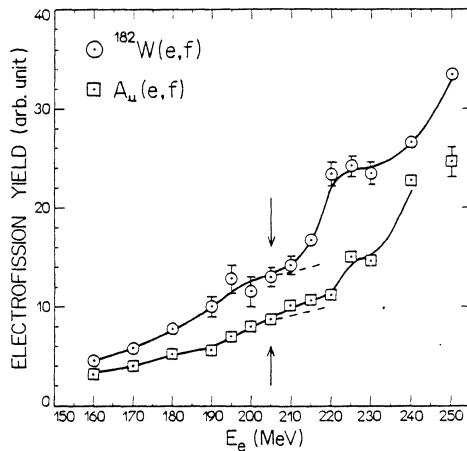


Fig. 2 Electrofission yield of ^{182}W (this work) and Au (Ref. 3), as a function of the electron energy. It is remarkable the similarity between ^{182}W and Au, where both nuclei exhibit inflexions at the same energy position. The data analysis and interpretation of this energy region will appear soon.

section, P_f is the fission probability of the compound nucleus, and K is a phenomenological parameter (see Ref. 5).

For $\omega \geq 140$ MeV,

$$\sigma_T(\omega) = \sigma_{\text{QD}}(\omega) + \sigma_{\pi A}(\omega), \quad (2)$$

where the subscripts “QD” and “ πA ” refer to quasi-deuteron and pion production photoabsorption mechanisms, respectively. Each one of the two competing mechanisms contributes separately to the nuclear excitation energy; thus,

$$E_x(\omega) = \left(\frac{\sigma_{\text{QD}}(\omega)}{\sigma_T(\omega)} \right) E_{\text{QD}}(\omega) + \left(\frac{\sigma_{\pi A}(\omega)}{\sigma_T(\omega)} \right) E_{\pi A}(\omega), \text{ and} \quad (3)$$

$$E_{\text{QD}}(\omega) = \omega - E_{\text{PE}}, \quad (4)$$

where E_{PE} is the total energy lost by the target nucleus due to pre-equilibrium emissions.

Also, we can write

$$E_{\pi A}(\omega) = P_R E_R(\omega) + (1 - P_R) E_E, \quad (5)$$

where P_R is the pion reabsorption probability, and E_R/E_E is the excitation energy when the pion is reabsorbed/escapes (from the nucleus). In this regard, we have

$$E_R(\omega) = \omega - E_{\text{PE}}, \text{ and} \quad (6)$$

$$E_E(\omega) = \omega - E_{\text{PE}} - (m_\pi + T_\pi), \quad (7)$$

where T_π is the pion kinetic energy. At photon energies near the pion threshold we can put $E_E(\omega) \approx 0$.

The main ingredient of our approach is to consider that the pion is reabsorbed mostly by a proton-neutron pair. In addition, we assume that the photopion-deuteron interaction cross section is similar to that for real pion-deuteron interaction, $\sigma_{\pi d}(T_\pi)$. Under these assumptions it is straightforward that

$$P_R = \frac{F \cdot \sigma_{\pi d}(T'_\pi)}{\sigma_{\pi A}(\omega)}, \quad (8)$$

where F is a factor that takes into account the number of deuterons in the nucleus and Pauli blocking constraints, in the same fashion as in the modified Levinger quasi-deuteron model. In our notation, T'_π is the pion kinetic energy at reabsorption, while T_π is the kinetic energy immediately after the photoproduction. Because of pion re-scattering by nucleons, $T'_\pi < T_\pi$. The cross section $\sigma_{\pi d}$ is known experimentally for $T_\pi \geq 5$ MeV (see fig. 4.6 in Ref. 6)

and it was phenomenologically parametrized⁶⁾ which allows the extrapolation toward $T'_\pi \approx 0$.

Substituting eqs. 3, 4, 5, 6 and 8 in eq. 1, we obtain

$$\sigma_{\gamma, f}(\omega) = K \cdot \frac{(\omega - E_{PE})}{\omega} \left[\sigma_{QD}(\omega) + F \cdot \sigma_{\pi d}(T'_\pi) \right] \cdot P_f(E_x). \quad (9)$$

The physical quantities appearing in eq. 9 could be obtained in the following way:

(1) K , obtained by fitting of $\sigma_{\gamma, f}$ (eq. 9), at $\omega < 140$ MeV, to the experimental (γ, f)—data. Below the pion threshold eq. 9 is given simply by

$$\sigma_{\gamma, f}(\omega) = K \cdot \frac{(\omega - E_{PE})}{\omega} \sigma_{QD}(\omega) P_f(E_x). \quad (10)$$

(2) $(\omega - E_{PE})$ is calculated by means of an intranuclear cascade model routine, developed by the Moscow and Frascati groups^{5, 7)}.

(3) σ_{QD} is obtained from a smooth extrapolation for $\omega \geq 140$ MeV, and $\sigma_{\pi d}$ is taken from experimental results⁶⁾.

(4) F is assumed constant in the narrow energy interval $\omega \approx 140 - 160$ MeV. Also, by assuming that $P_R \approx 1$ at $\omega \approx 140 - 145$ MeV (since, for $T'_\pi \approx 0$, reabsorption is the only channel for pions), we have (see eq. 8).

$$F \cdot \sigma_{\pi d}(T'_\pi) \approx \sigma_{\pi \Lambda}(\omega). \quad (11)$$

Finally, taking $\sigma_{\pi \Lambda} = \sigma_T - \sigma_{QD}$, we obtain a reasonable estimate for F . For $\omega \geq 145$ MeV we have that $P_R < 1$.

(5) $P_f(E_x)$ is calculated from the statistical model for fission, using parameters for ¹⁸²W from Ref. 8.

(6) E_x is given by (eqs. 3, 4, 5, 6 and 8)

$$E_x(\omega) = (\omega - E_{PE}) \cdot \left[\frac{\sigma_{QD}(\omega) + F \cdot \sigma_{\pi d}(T'_\pi)}{\sigma_T(\omega)} \right]. \quad (12)$$

(7) $T'_\pi = \sigma T_\pi = \sigma(\omega - m_\pi)$,

where $\sigma < 1$. By considering that the pion loses approximately 40% of its kinetic energy by re-scattering (which it is only a tentative estimate, so far), then, $\sigma \approx 0.6$.

A very preliminary calculation of $\sigma_{\gamma, f}(\omega)$, using our approach (eq. 9) in the range $\omega \approx 140 - 160$ MeV, shows a sharp peak at $\omega \approx 145$ MeV and a fast decrease from 145 to 155 MeV: $\sigma_{\gamma, f}(145 \text{ MeV}) \approx 5 \sigma_{\gamma, f}(155 \text{ MeV})$. This is in qualitative and quantitative agreement

with our current findings for ^{182}W . Therefore, it is possible to say that the structures observed in the (γ, f) – curves of preactinides, around 140 MeV, are a direct consequence of a strong photopion reabsorption process near the threshold, as previously suggested by us³⁾.

The full data analysis and interpretation for $^{182}\text{W}(e, f)$, using the theoretical approach described above, are in progress.

References

- 1) J. D. T. Arruda-Neto *et al.*: Phys. Rev. **C34** (1986) 935.
- 2) J. D. T. Arruda-Neto *et al.*: Phys. Rev. **C41** (1990) 354.
- 3) J. D. T. Arruda-Neto *et al.*: Phys. Rev. **C48** (1993) 1594.
- 4) J. D. T. Arruda-Neto *et al.*: J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. **20** (1994) 197.
- 5) J. D. T. Arruda-Neto, A. Deppman, N. Bianchi and E. De Sanctis: Phys. Rev. C (in press).
- 6) T. Ericson and W. Weise: in *Pions and Nuclei*, (Oxford Science Publications, 1988).
- 7) A. S. Iljinov *et al.*: Phys. Rev. **C39** (1989) 1420.
- 8) S. Bjornholm and J. E. Lynn: Rev. Mod. Phys. **52** (1980) 725.

*Physics Department, University of Garyounis, Benghazi, Lybia.

Measurement of De-excitation γ -Rays Following
the Photodisintegration of ^{16}O : a Test of the
Quasi-Deuteron Model in Photonuclear
Reactions above the GDR

A. Kuzin, D. A. Sims, R. P. Rassool, M. N. Thompson
T. Terasawa[†], H. Itoh[†], S. Ito[†], O. Konno[†] and K. Maeda^{††}

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

[†]*Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University
Sendai 982 Japan*

^{††}*Department of Physics, Tohoku University
Sendai 980, Japan*

§ 1. Introduction

One of the thrusts of the research program of the photonuclear tagging group is aimed at resolving the nature of the mechanism whereby a high energy photon (~ 100 MeV) causes protons, neutrons, and correlated p-n pairs to be emitted from a nucleus. This report describes the results of a preliminary experiment where de-excitation γ -rays were detected from states in ^{15}N following the $^{16}\text{O}(\gamma, p)$ reaction. The feasibility of this experimental method in this energy region is discussed, and it is concluded that we will be able to resolve the nature of the reaction mechanism using this method.

§ 2. Physics Involved

2.1 Two Contending Mechanisms

Of the several proposed reaction mechanisms, two are able to explain most features of the experimental data: the Quasi-Deuteron Model (QDM) and microscopic models. Yet these are remarkably different in their basic assumptions. The QDM, as modified by Shier and Schoch¹⁾ treats the nucleons as correlated neutron-proton pairs, coupled

to $S=1$, $T=0$, within the nucleus. In so doing the model hides one of the most fundamental properties that influences the reaction process: the short range correlations between the nucleons. These correlations, meson-exchange effects and ground state correlations would seem to be critical, and are specifically treated in microscopic calculations such as those of Gari and Hebach²⁾ and more recently those of Ryckebusch³⁾.

Specifically in the case of photodisintegration of ^{16}O , the low-lying states that are populated in the residual nuclei depend on the reaction mechanism involved.

Recent experiments, including some by this group, have attempted to resolve population of the excited residual states, as a function of excitation energy, by direct detection of the energy of the emitted proton (for $^{16}\text{O}(\gamma, p)$) or proton-neutron pair (for $^{16}\text{O}(\gamma, pn)$). The necessary resolution of the particle spectrometers is only marginally adequate, and so far definitive data is not available.

The results presented here confirm a novel way to check for excited residual state population as a function of excitation energy, by detecting the de-excitation γ -rays emitted from the excited residual states as a function of excitation energy (initially up to 100 MeV).

2.2 *The Significance of Photo-reactions involving ^{16}O*

A recent high resolution measurement of the $^{16}\text{O}(\gamma, p)$ reaction cross section by van Hoorebeke *et al.*⁴⁾ taken at an excitation energy of about 61 MeV, observed that proton emission from ^{16}O not only populated the GS and 6.3-MeV negative parity states of ^{15}N as expected, but significantly populated the positive parity doublet of 1p-2h states near 5.3 MeV. Confirmation of this observation was made by our group, and reported in January of this year⁵⁾.

The significance of this observation is that, if a two-step reaction process is discounted (as van Hoorebeke *et al.* show), the 5.3-MeV doublet cannot be populated if the generally accepted form of the quasi-deuteron mechanism is involved. They solved the dilemma by proposing a modification of the QDM to include a significant component of quasi-deuterons with isospin $T=1$.

Our paper (ref. 5) suggested that, at least for energies up to 40 MeV or so,

evidence of population of this doublet might be explained in terms of collective effects and the known 2 p-2 h components of the ^{16}O ground state wave function. Certainly this explanation was accepted when population of these states was seen in early studies of de-excitation γ -rays following photodisintegration of ^{16}O (ref. 6).

Van Hoorebeke et al.⁷, refute this explanation in a later response to our comment. They cite evidence from data for the $^{12}\text{C}(\gamma, p)$ reaction that is published in their earlier paper (ref. 4), which shows that population of the equivalent positive parity state in ^{11}B occurs, and increases relative to the population of nearby negative parity states when the excitation energy is increased to 70 MeV. Their data is however limited because of poor resolution; they cannot actually resolve the state from its neighbors.

2.3 A change in reaction mechanism near 60 MeV

It is necessary to clarify this conflicting and incomplete evidence. The importance of defining the reaction mechanism is fundamental to an understanding of photo-reactions in this energy region. This is best done for the case of ^{16}O , since the relevant states in ^{15}N (the positive parity doublet near 5.3 MeV and the negative parity state at 6.3 MeV) are well separated.

The results presented here confirm that it is possible to measure the population of the first three excited states in ^{15}N by detecting γ -rays from their de-excitation.

2.4 Nature of the low-lying states in ^{15}N and ^{15}O

An understanding of the nature of the low-lying states in ^{15}N makes the importance of these measurements evident: The GS (1/2) and 6.3-MeV (3/2) states, are both single p-shell particles coupled to the $S=1, T=0$ GS of ^{14}N . Population of these states is expected on the basis of either the QDM or microscopic models. The positive-parity doublet is however a single particle in the s-d shell coupled to the 1st-excited ($S=0, T=1$) state of ^{14}N ; and as such cannot be populated via the standard QDM involving ($T=0$) quasi deuterons.

One implication of this, that can be proven by simple isospin-coupling arguments, is that the $^{16}\text{O}(\gamma, pn)$ reaction should not populate the 1st excited state (with $T=1$) of ^{14}N if the QDM is dominant. In the full-blown experiment that should derive

from this test, evidence of population of this state at 2.13 MeV in ^{14}N will also be checked by detection the γ -ray emitted in its de-excitation following the $^{16}\text{O}(\gamma, pn)$ reaction cross section.

§ 3. Experimental Details

One could resolve the relative population of the residual states using the immediate γ - ray decay following the proton emission. This imposes a less critical requirement on the proton energy resolution compared with that for direct proton measurement. In order to limit the de-excitation γ -ray detection to those reactions where a proton is emitted, the data acquisition system is triggered only when a proton is detected from the target using an efficient proton detector placed near ^{16}O target.

The proton trigger also allows us to reject any de-excitation γ -rays that follows a decay of higher energy residual state. As an example, the next state in ^{15}N at 7.16 MeV decays mainly via the 5.27 MeV state, thus increasing the count rate of γ -rays from this state. To exclude the γ -rays from this cascade contribution one must determine proton energy with an accuracy of about 2 MeV. This is an advantage over the direct measurement of proton energy in $^{16}\text{O}(\gamma, p)$ reaction which requires proton energy resolution less than 1 MeV. Also the rough measurement of proton energy allows us to distinguish between the de-excitation γ -rays following the decay of residual nuclei in $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ and $^{16}\text{O}(\gamma, np)$ reaction due to different threshold energies of these reactions.

3.1 Expected γ -rays from ^{15}N following $^{16}\text{O}(\gamma, p)$

The 7.16 and 7.57 MeV states give rise to 5.27 MeV state population what could be distinguished using energy of the emitted proton. Fig. 1 shows de-excitation γ -ray decays of ^{16}O and ^{14}N nuclei following the $^{16}\text{O}(\gamma, n)$ and $^{16}\text{O}(\gamma, np)$ reactions respectively. Using the proton energy information we also can identify γ -rays belonging to ^{16}O or ^{14}N decay in the energy region of 5-6 MeV.

For the experiment at Tohoku University (October 1993) a 4" -diameter NaI γ -rays detector was used for measuring the γ -ray spectrum. The energy resolution was determined by the empirical equation $R = 0.09 \times (E_\gamma)^{1/2}$, which gives the following

E_i	E_f	Branch	γ -ray (MeV)
5.27	0	100%	5.27
5.29	0	100%	5.29
6.32	0	$\sim 100\%$	6.32
	5.29	$< 1\%$	1.03
7.16	0	$< 0.01\%$	7.16
	5.27	100%	5.27, 1.89
	5.29	$< 4\%$	5.29, 1.86
7.57	0	1.3%	7.57
	5.27	98.7%	5.27, 2.3
	5.29	$< 4\%$	5.29, 2.28
	6.32	$< 0.5\%$	6.32, 1.25

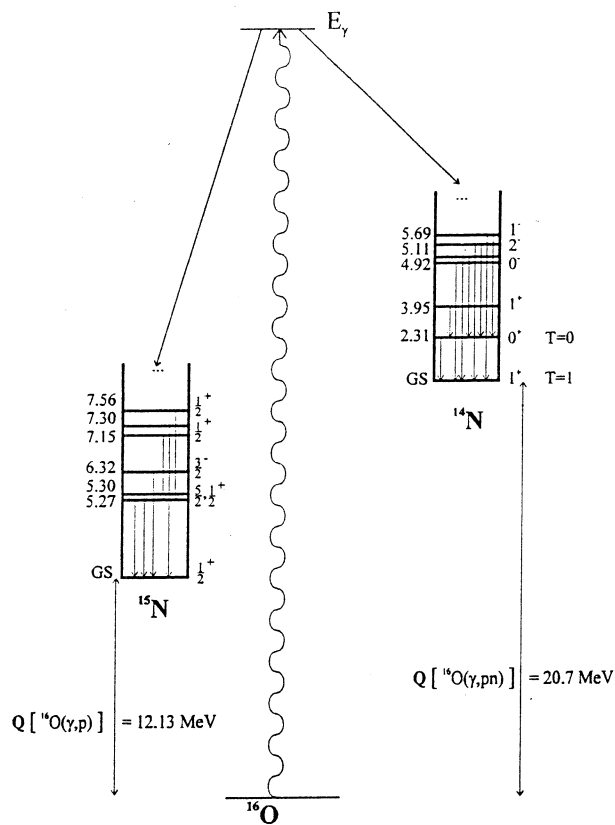


Fig. 1 Scheme of energy levels in ^{15}N and ^{14}N .

resolution

E_γ (MeV)	ΔE (keV)
6.3	200
4.4	180
1.2	100

These figures were checked using a NaI detector and Am- α -Be γ -source (4.43 MeV line) and ^{60}Co source (1.17 and 1.33 MeV lines).

3.2 Estimated count rate

Using the described equipment located as described in the Experimental Layout section, the count rate was estimated. For the reaction leading to the 5.3 MeV doublet and 6.3 MeV state in ^{15}N , triggering by a proton, the count rate of these γ -rays from both 5.3 MeV doublet and 6.3 MeV state was estimated as ~ 12 per day.

3.3 Tagged photon source

The electron tagging spectrometer of the Laboratory of Nuclear Science of Tohoku University was used to provide tagged photons in energy bins of less than 250 keV width between 40 and 80 MeV. The 100% duty factor electron beam was derived from Small Stretcher Ring (SSTR) of the Laboratory.

3.4 Experimental Layout

The experimental layout is shown on Fig. 2. The rate of incident electrons was $10^6\text{e}/\text{sec}$ that producing about 2×10^5 tagged photons. The 2-mm thick water target was placed at an oblique angle of about 15° relative to the beamline thus providing effective thickness of ~ 5 mm for the beam but allowing the protons to leave the target in the direction of proton detectors with an acceptably small energy loss.

The proton detecting arm consisted of nine 20-cm long by 10-cm diameter NE102 plastic detectors. They were chosen because of their fast light response (~ 5 ns) to an ionizing particle. The detectors were assembled in groups of three with a common thin 2 mm plastic delta-E detectors for every assembly. They were placed 25 cm away from the centre of the target, at angles of approximately 75° , 90° and 105° relative to the beamline.

The NaI gamma-detector was placed opposite the proton detectors 30 cm away

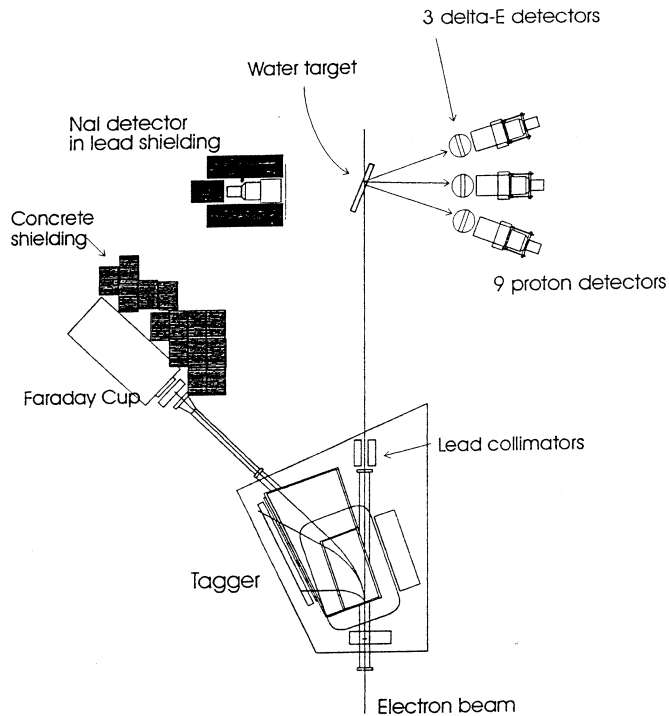


Fig. 2 Experimental setup.

from the centre of the target. In order to eliminate the γ -ray background 10 cm thick lead shield was placed around the NaI detector, leaving a window looking on target. This opening was shielded with 2 mm lead foil to attenuate the low-energy γ -ray background scattered from the target.

In order to discriminate against the large number of false triggers due to electrons entering the proton detectors, thin delta-E detectors were placed in front of the full-E plastic detectors. The delta-E detector was used to identify the particle by using the energy loss characteristics of the particles. The values for energy loss are well known for protons and electrons, and because the properties of a proton are quite dissimilar to those of an electron, the particles can be identified. When a plot of the energy loss in the full-E detector vs the energy deposited in the delta-E detector (a scatter plot) is produced, two distinct bands are present, see Fig. 3. The lower band corresponding to the particles with less energy loss in delta-E detector are electrons and pions and can be excluded from data.

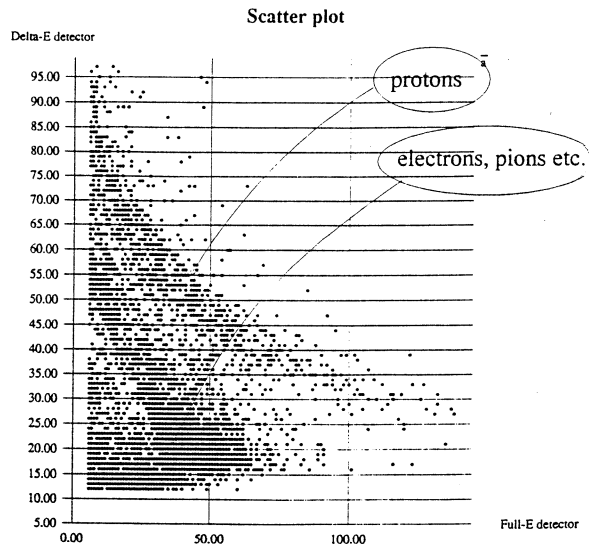


Fig. 3 Scatter plot.

An event was recorded when there was a coincidence between a signal in delta-E detector, a signal in one of the three proton detectors and a signal in the NaI detector. A rough cut of the data from proton arm was applied so to eliminate the triggering of the data acquisition system with the electrons and other background particles.

§ 4. Results

The effective data collection time was about 70 hours and about 60 Mbytes of compressed raw data were collected. The expected number of de-excitation γ -rays in the energy region of 5-6 MeV for this length of run-time was 35 for the conditions described above. The γ -ray spectrum after processing reveals a number of γ -rays in that region of energies consistent with this estimation. A rather high photon background was present in region of energies below 1 MeV, particularly due to neutron capture in NaI crystal and inelastic scattering on lead. These peaks can be seen in the γ -ray spectrum, Fig. 4.

§ 5. Conclusion

This short experiment test gives an indication that under more favourable cond -

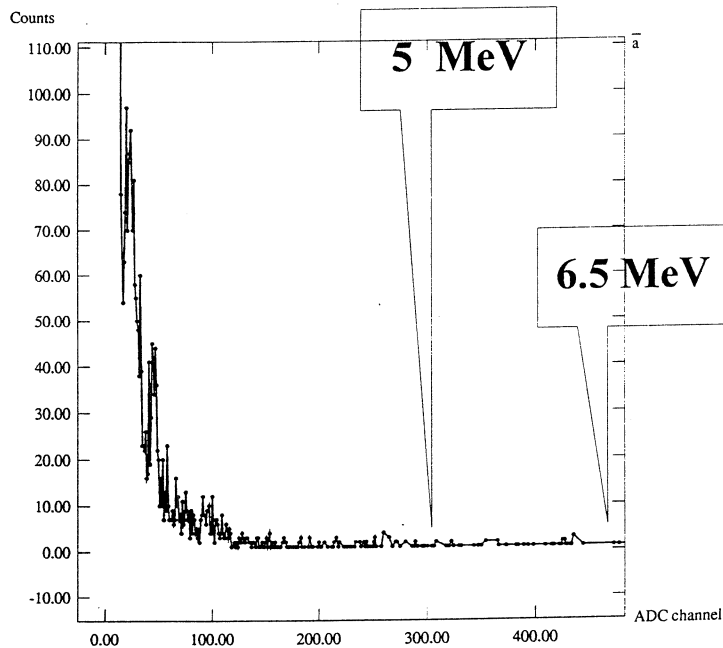


Fig. 4 Final γ -ray spectrum.

itions it will be possible to detect a statistically significant number of de-excitation γ -rays. Thus, using a higher intensity beam ($10^7 e/sec$) and 10" NaI detectors placed closer to the target, the estimation of the de-excitation γ -ray intensity is about 500 per day that gives an opportunity to measure the relative population of first excited states in ^{15}N with significant accuracy.

References

1. H. Schier and B. Schoch : Nucl. Phys. **A229** (1974) 93.
2. M. Gari and H. Hebach : Phys. Rep. **72** (1981) 1.
3. J. Ryckebusch, M. Waroquier, K. Heyde, J. Moreau and D. Ryckbosch, Nucl. Phys. **A475** (1988) 237.
4. L. Van Hoorebeke *et al.* : Phys. Rev. **C42** (1990) 1179.
5. D. A. Sims *et al.* : Phys. Rev. **C45** (1992) 479.
6. J. T. Caldwell, S. C. Fultz and R. L. Bramblett : Phys. Rev. Lett. **19** (1967) 447.
7. L. van Hoorebeke *et al.* : Phys. Rev. **C45** (1992) 482.

Ⅱ. 物 性 物 理

多チャンネル配列検出器による遠赤外パルスラジオリシス

工学部応用物理, 科研*, 核理研**

近藤泰洋・鈴木吉朗・下山克彦

高橋俊晴*・伊師君弘*

荒井史隆*・長谷部茂*

蔦谷 勉*・柴田行男*

大坂俊明*・池沢幹彦*

浦澤茂一**・中里俊晴**

小山田正幸**・山川達也**

§ 1. 序 論

中里らによるコヒーレント放射光スペクトルの報告¹⁾以後, コヒーレント遷移放射²⁾, コヒーレントチェレンコフ放射³⁾発生機構に関する研究が主としてなされてきた。一方, 遠赤外領域に於けるパルスラジオリシスに, このコヒーレント放射を利用する為, 多チャンネル検出器を製作し, これまでにスペクトルの測定を行ってきた⁴⁾。今回, 液体ヘリウム温度に於けるNaCl, KIにパルス電子線を照射, コヒーレント遷移放射をプローブ光として用いたパルスラジオリシスの結果について報告する。

アルカリハライドにUV光やX線, 電子線を照射すると励起子が生成され, 自己束縛状態を通じて欠陥生成に至ることが知られている。この自己束縛状態はハロゲンイオン2個から成る分子様の状態であることが明らかにされている。このハロゲン分子様のイオン2個の中心は格子間の中央, 一方のハロゲンイオンの格子点, またはこの両者の中間の3種類の位置を取ることが吸収, 発光, 欠陥生成などの実験結果から推察されている。即ち, このハロゲン分子様の励起状態(自己束縛励起子)は分子軸方向に移動し易いと考えられ, 軸方向の振動数は母体結晶のフォノンの振動数と比較すると低周波であることが予想される。また, この振動は正孔の中心位置の移動を伴っているので赤外活性のモードである。

上述の予想から, 軸方向の振動数が特に低いと予想されるNaCl及びKI結晶にパルス電子線を照射して自己束縛励起子を生成し, 同時に電子線によって生成されるコヒーレント放射をプローブ光としてこの自己束縛励起子による遠赤外過渡吸収を測定した。

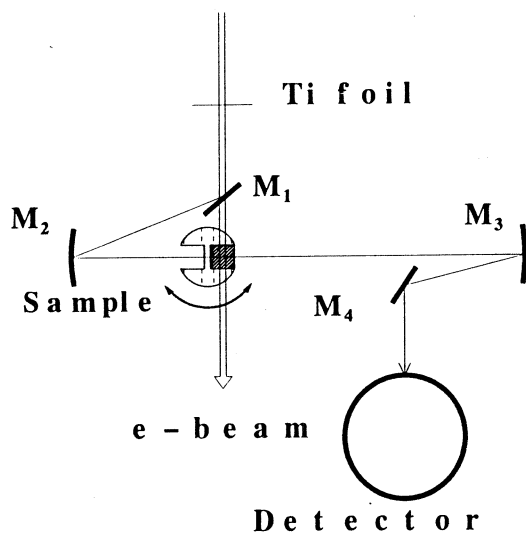
§ 2. 実 験

2.1 10チャンネル遠赤外配列検出器

遠赤外に於けるコヒーレント遷移放射パルスは、パルス毎に強度が変化する。この強度変化による影響を避けるため、遠赤外用10チャンネル検出器を製作し、これまでに性能試験結果を報告してきた。この検出器では単発のパルスで4種類の波長領域 ($54-24\text{cm}^{-1}$, $27-12\text{cm}^{-1}$, $13.5-6\text{cm}^{-1}$, $6.8-3\text{cm}^{-1}$) の内の一領域でスペクトルを測定できる。

2.2 光学系

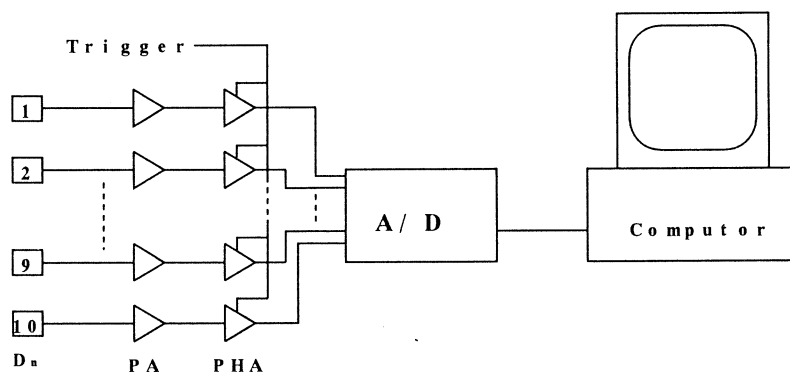
第1図に光学系の概略を示す。試料槽中央に置かれた試料結晶は液体ヘリウム温度に冷却された銅ブロックにシリコングリースで接着されており、ほぼ4.2Kに冷却されている。ライナックからの電子線は試料槽に入射直後チタン薄膜を透過してコヒーレント遷移放射を発生した後、試料結晶に照射される。発生した遷移放射は平面反射鏡M1と凹面鏡M2(曲率半径60cm)によって試料結晶上に集光され、透過した遷移放射は再び凹面鏡M3と平面鏡M4によって10チャンネル検出器の入口スリット上に集光される。遷移放射発生点から試料までの光路長は約135cmであり、試料に電子線が照射後約4.5ns後に試料中を遷移放射が透過することになる。



第1図 光学系の概略図。M₁, M₄:平面鏡, M₂, M₃:凹面鏡。コヒーレント遷移放射は Ti foil で発生される。

2.3 信号処理系

第2図に信号処理系のブロックダイアグラムを示す。10チャンネル検出器からの信号は、各



第2図 信号処理系のブロックダイアグラム

D_1 から D_{10} : 遠赤外検出素子, PA: 前置増幅器, PHA: ピークホールドアンプ。A/D変換器を通してコンピューターに記憶される。

チャンネル毎にプリアンプで100倍に増幅された後、ピークホールドアンプ、A/D変換器を通してコンピューターに取り込んだ。電子線パルスの中に比べて検出器の応答速度は1MHz程度と遅く、積分値を観測していることになっている。

2.4 試料及びクライオスタット

試料にはユニオンマテリアル（筑波）の単結晶 NaCl及びハーショウ（米国）の単結晶 KIを1cm角にへき開して用いた。

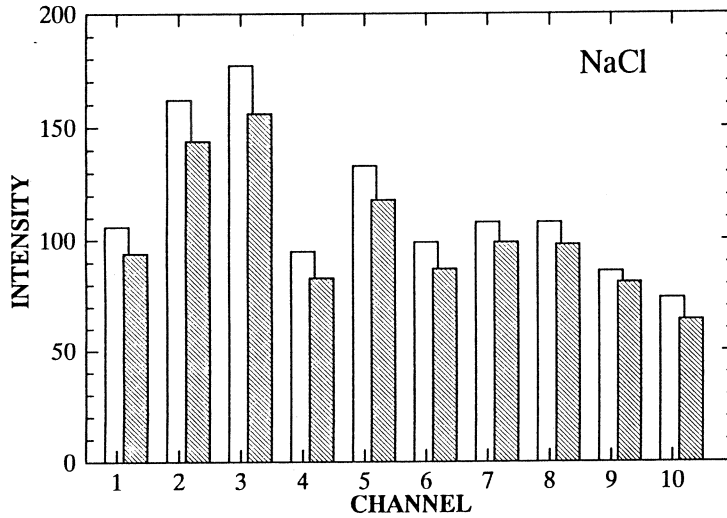
§ 3. 実験結果及び考察

3.1 NaCl

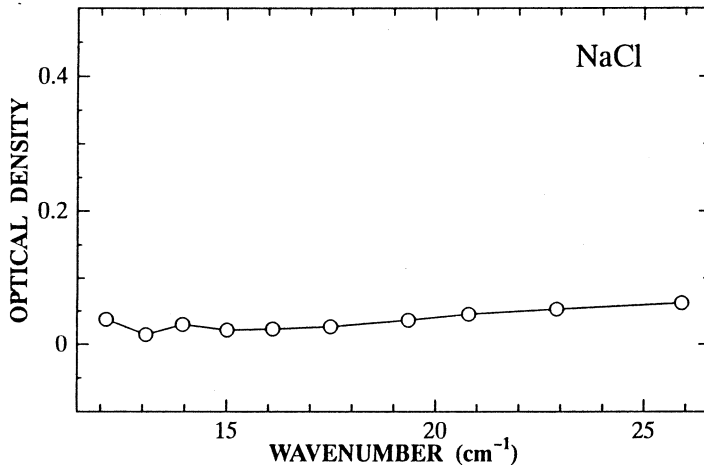
NaCl結晶にコヒーレント遷移放射だけを透過させた場合の強度 I_0 と電子線を結晶に照射中に結晶を透過させた時のコヒーレント放射の強度 I を第3図に検出器の各チャンネル毎のヒストグラムで示してある。電子線がコヒーレント放射を発生した後、試料を通過せず、コヒーレント放射だけが結晶中を通過するようにするため、試料は図1に示すように、クライオスタット中で回転出来るようになっている。試料ホルダーを 180° 回転させると電子線、コヒーレント放射ともに結晶中を透過させることが出来る。この二種類の透過光強度から求めた誘起吸収スペクトルを第4図に示してある。縦軸は光学密度（OPTICAL DENSITY = $-\log(I/I_0)$ ）で表してある。第4図はほぼ平坦なスペクトルを示し、NaClに於ては、 $12\sim 26\text{cm}^{-1}$ の波長領域では、検出できるほどの過渡吸収は生じないことが分かる。

3.2 KI

KIにおける同様な電子線誘起吸収スペクトルを第5図に示す。図で白丸は単発のパルスに



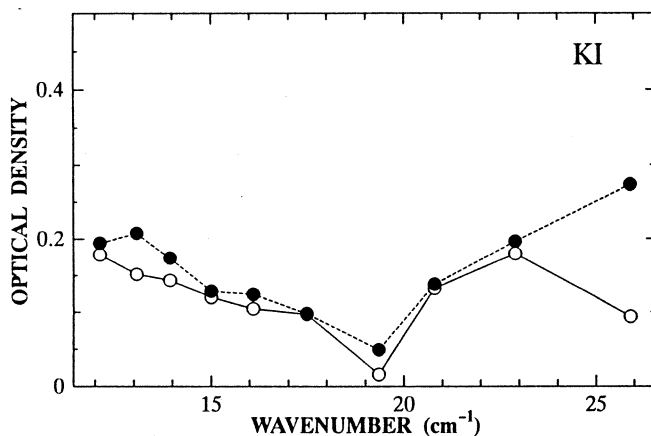
第3図 NaCl結晶を透過した遷移放射の各検出器における強度のヒストグラム。白色：電子線は結晶に照射されず、遷移放射のみが結晶中を透過した時の光強度。ハッチ：電子線を結晶に照射、4.5ns後に結晶を透過させた遷移放射の強度。横軸は検出器の番号。番号の増加と共に検出波長は長くなっている。



第4図 波数の関数として示したNaClに於ける誘起吸収。実線は見やすいように白丸（測定値）間をつないだもの。

よる誘起吸収スペクトルを示し、黒丸は100発のパルスを連続して照射した際の誘起吸収（平均値）を示してある。19及び26 cm^{-1} 付近に変化が見られる。

26 cm^{-1} における誘起吸収は連続パルス照射（黒丸）に於て見られ、単発パルス照射（白丸）には見られない。この連続照射後、約10秒後に単発のパルスで過渡吸収を観測したところ、吸



第5図 KIにおける誘起吸収

白丸は単発の電子線パルス照射後5 nsにおける吸収。黒丸は、同じ測定を連続(50 pps)100回繰り返して平均した結果を示す。見やすいように測定値間を実線及び点線でつないでいる。

吸収は見られなかった。従って、此の誘起吸収は、照射により結晶内に蓄積された欠陥によるものと考えられる。今回の吸収測定では、残念ながら誘起された吸収の低エネルギー側のみが観測されたと考えられ、次回の測定では、より高エネルギー領域の測定が望まれる。

19 cm⁻¹付近に見られる吸収の減少の原因は不明である。試料に電子線が当たらないように回転しているので、此の回転によりプローブ光として用いた遷移放射が部分的に不均一に切られたことによる可能性がある。しかし、試料が取り付けられていない部分を用いて同様な測定を行ったところ、19 cm⁻¹付近にのみ吸収の減少が起きることは観測されなかった。此の現象に関しても再度実験を試みる必要がある。

§ 4. 考 察

4.1 自己束縛励起子による過渡吸収

NaCl, KIいずれの場合も、電子線照射による過渡的な吸収を検出することは出来なかった。電子線パルスの時間巾は約5 nsであり、プローブ光であるコヒーレント放射が結晶中を通過する4.5 ns後迄に電子線の大部分は結晶を通過している。電子線によって生成された励起子は数 ps以内に自己束縛され、かつ寿命は数 μs～数百 μsあるので、もし、自己束縛励起子が、観測した波長領域に十分な振動子強度を持ち、十分な数生成されていれば検出されると思われる。測定にかからなかった理由として以下の二つが考えられる。

1) 自己束縛励起子の並進振動の振動数はもっと高エネルギー側にある。レーザーによる時間

分解分光で観測されている寿命の短い中間状態の振動は、自己束縛励起子になる前の中間励起状態であり、自己束縛励起子とは電子状態が異なる。

2) 振動子強度が小さい。180 MeV, ピーク電流 1 A の場合およそ $10^{15} \sim 10^{16}$ 個の自己束縛励起子が 1 cm^3 の結晶中に生成される。この数は、振動子強度が 1 に近い場合、十分な吸収強度を与える濃度である。自己束縛励起子の正孔が並進運動による振動をした場合、まわりを取り巻いている電子による遮蔽のため分極波との相互作用が弱くなり、振動子強度が小さくなっている可能性がある。

今後、更に高エネルギーの領域の測定を行うとともに、可視領域の時間分解分光を同時に行い、生成されている自己束縛励起子の数を決定しておく必要がある。

4.2 連続照射により誘起される吸収

第 5 図に示されているように、電子線を連続的に照射すると、第 1 チャンネル (26 cm^{-1}) に吸収が見られた。単発の電子線照射では観測されず、連続照射と共に吸収が成長するのが観測されたことから、この吸収は電子線により結晶内に蓄積された欠陥によると見られる。液体ヘリウム温度で電子線を照射すると、F と H 中心 (ハロゲン空格子 + 電子と格子間ハロゲン原子), α と I 中心 (ハロゲン空格子と格子間ハロゲンイオン) のフレンケル対が生成されることが分かっている。一方、K I 結晶中に F 中心が生成されると、 100 cm^{-1} 近傍にギャップモードといわれる振動モードが生成されが、低周波の共鳴モードは観測されていない。H 中心に関しては、各種アルカリハライドに於て、ハロゲン分子の伸縮振動によるピークがラマン散乱スペクトル中 100 から 200 cm^{-1} の領域に観測されている。これらの F, H 中心の振動モードはいずれもラマン活性のモードであり、赤外活性モードは観測されていない。H 中心を形作っているハロゲン分子の並進運動に対応する振動モードは、質量から考えて低周波であることが予想されるがまだ観測されていない。

格子間ハロゲンイオンである I 中心は、H 中心よりも熱的に不安定である。従って、I 中心を格子間に束縛している力は弱く、I 中心の振動はバルクの音響モードの低周波側に現れることが期待される。

電子線照射により生成された色中心は、再結合により大部分が消滅する。その寿命は照射温度、結晶の種類などによって異なる。K I 結晶に電子線を照射した場合、F, H 中心は出来にくく、しかも生成された F, H 中心は消滅しにくい。一方、電子線により過渡的に生成される α , I 中心に関する測定はこれまで行われていない。再結合の活性化エネルギーが低いこと、かつ H 中心が安定であることを考えると、本測定で観測された 27 cm^{-1} よりも高エネルギー

領域に現れると予想される過渡吸収は I 中心である可能性がある。このことを確認するには α , I 中心の電子遷移による紫外部の過渡吸収の測定が必要である。

§ 5. ま と め

電子線照射により自己束縛励起子を生成し、この励起子の正孔を形成しているハロゲン分子状イオンによる低周波振動を遷移放射を利用して検出することを試みた。即ち、10チャンネル遠赤外検出器を用い、遷移放射をプローブ光として遠赤外領域におけるパルスラジオリシスの測定を行った。NaCl, KI 単結晶に低温（約 10 K）で電子線パルス（5 ns 巾）を照射、同じ電子線で生成された遷移放射を 4.5 ns 後に試料内を透過させ、過渡吸収の検出を試みたが自己束縛励起子による吸収は出来なかった。しかし、 26 cm^{-1} に準安定な、電子線照射によって作られた中心による吸収が観測された。これは準安定な格子間 I イオンによる共鳴吸収モードの可能性はある。

参 考 文 献

- 1) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, and M. Ikezawa: Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.
- 2) 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, 浦沢茂一, 中里俊晴, 加藤龍好, 庭野智, 吉岡正裕: 核理研研究報告 **25** (1992) 257.
- 3) 高橋俊晴, 柴田行男, 荒井史隆, 伊師君弘, 大坂俊明, 蔦谷勉, 池沢幹彦, 近藤泰洋, 中里俊晴, 浦沢茂一, 加藤龍好, 庭野智, 小山田正幸: 核理研研究報告 **24** (1991) 182.
- 4) 近藤泰洋, 鈴木吉朗, 枝松圭一, 廣田昇一, 佐藤康彦, 平井正光, 池沢幹彦, 大坂俊明, 柴田行男, 伊師君弘, 蔦谷勉, 木村真一, 高橋俊晴, 荒井史隆, 金井利喜, 小山田正幸, 浦沢茂一, 中里俊晴, 加藤龍好, 庭野智, 吉岡正裕: 核理研研究報告 **25** (1992) 131.

Ⅲ. 放 射 化 学

混合溶媒（メタノール／水）中における Tm^{3+} の 化学的挙動の研究

金研, 静岡大理学部*

菅沼英夫*・佐藤伊佐務・高橋三幸

三浦重幸・原 光雄・三頭聰明

大森 巍*

§ 1. はじめに

外殻電子配置に $4f^{12}5s^25p^6$ を持つ Tm^{3+} は水溶液中においてかなり硬いルイス酸であり、 $2s^22p^6$ 電子構造の F^- もかなり硬い塩基であるので、両イオンは水溶液中で静電的相互作用により内圏錯体をつくる。水溶液中の TmF^{2+} の生成定数については J. B. Walter と G. R. Choppin¹⁾ が電位差滴定法及び溶媒抽出法により、M. P. Menon と J. James²⁾ が電位差滴定法により求めている。しかし混合溶媒中におけるそれらの値はほとんど報告されていない。そこでメタノール／水の混合溶媒中における TmF^{2+} の生成定数を溶媒抽出法により求めた。

§ 2. 実験

2.1 ^{168}Tm と ^{167}Tm の製造

純度99.9%の Tm_2O_3 粉末180mg を直径10mmのディスクに成型し、厚さ10 μm の高純度アルミニウム箔で二重に包装し、石英管に封入し、それを γ 線照射することによりトリウムの特レーサを製造した。照射は核理研の電子ライナックを用いて加速エネルギー50MeV で平均電流約110 μA の電子線を白金コンバーターにより制動放射線に変換したものをを用いて8時間行った。照射された試料は短寿命核種が減衰するまで放置した。放置冷却した試料について金研の Ge 検出器で γ 線スペクトロメトリーを行った。その結果、 $^{169}Tm(\gamma, n)^{168}Tm$ と $^{169}Tm(\gamma, 2n)^{167}Tm$ 反応で生成した ^{168}Tm と ^{167}Tm のみの γ 線が検出された。

2.2 TmF^{2+} の生成定数の測定

ビス(2-エチルヘキシル)リン酸(HDEHP)は銅塩で精製したものをを使用した。水はMilipore社の純水製造装置により精製したものをを用いた。その他の試薬は特級品をさらに精製することなく用いた。

照射されたトリウム試料は 1 mol/dm^3 (M) 過塩素酸溶液に溶解して保存溶液とした。そ

の一部を分取し約pH3.5の溶液にし、その溶液からHDEHP／トルエン溶液でトリウムを抽出した。このトリウム－HDEHPを含んだトルエン相を有機相とし、イオン強度0.1のメタノールの混合溶媒相を水相とする TmF^{2+} の生成定数を求める逆抽出実験を行った。生成定数を求める一連の実験では水相のメタノールのモル分率、温度、トリウム濃度、水素イオン濃度を一定にし、フッ化物イオン濃度を変化させる必要がある。得られたトリウムの分配比の変化に基づき生成定数を算出する。この一つの生成定数を求める一連の実験において、全ての水相の水素イオン濃度を一定にすることは困難であるので、抽出後に水相の水素イオン濃度を測定して補正した。

ポリエチレン製液シンバイアル中に有機相 5 ml 及び水相 15ml 入れ、これをヤマト科学のサーモエリート BH-71, Thomas 社のハンディクーラー TRL-107A, 及び約 70l のステンレス製水槽を組み合わせた恒温槽中で 2 時間振とうさせることにより逆抽出平衡を達成させた。平衡になっているバイアル中の両相を久保田製作所の遠心分離器 KS-5000P で遠心分離し、両相から 1 ml づつ試料溶液を分取し、それぞれの中の γ 線を Packard 社の Auto Gamma Scintillation Spectrometer 5230 で測定し分配比 (D) を求めた。また、平衡後の水相の水素イオン濃度及びフッ化物イオン濃度を東亜電波工業社製のイオン電極と pH メーター HM-30V で測定した。

§ 3. 結果と考察

実験により求めた生成定数 (β_1) を第 1 表に示し、また第 1 図に混合溶媒中のメタノールのモル分率に対してプロットした。第 1 図から混合溶媒中のメタノールのモル分率が大きくなると β_1 の値が大きくなるのがわかる。これは H. Suganuma と G. R. Choppin によって行われたメタノール／水混合溶媒中の EuF^{2+} の結果³⁾ 及び H. Suganuma, I. Satoh 等によって行われた同じ系の AmF^{2+} の結果⁴⁾ と類似した傾向を示した。

β_1 の値の変化を溶液中の比誘電率 (ϵ)⁵⁾ の変化と比較してみる。生成定数と比誘電率の関係は単純な静電的理論によって次のように表される。

第1表 β_1 及び比誘電率のメタノールモル分率依存性。

mole fraction of CH ₃ OH	dielectric constant ⁵⁾	β_1
0.000	78.54	$(0.37 \pm 0.03) \times 10^4$
0.014	77.59	$(0.41 \pm 0.03) \times 10^4$
0.037	75.83	$(0.49 \pm 0.04) \times 10^4$
0.073	73.28	$(0.62 \pm 0.04) \times 10^4$
0.100	71.39	$(0.81 \pm 0.02) \times 10^4$
0.129	69.45	$(1.01 \pm 0.05) \times 10^4$
0.180	66.24	$(1.48 \pm 0.28) \times 10^4$
0.229	63.31	$(2.15 \pm 0.06) \times 10^4$
0.267	61.16	$(3.06 \pm 0.18) \times 10^4$
0.267	61.16	$(2.66 \pm 0.29) \times 10^4$
0.308	58.95	$(3.32 \pm 0.06) \times 10^4$

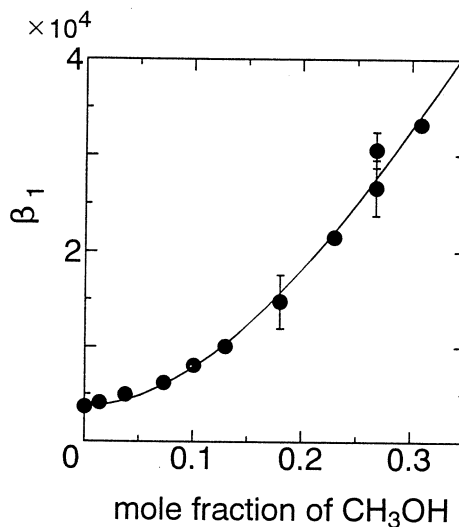
$$\ln \beta_1(\text{mix}) - \ln \beta_1(\text{H}_2\text{O}) =$$

$$N_A e^2 / 2RT (Z_{\text{Tm}}^2 / r_{\text{Tm}} + Z_{\text{F}}^2 / r_{\text{F}} -$$

$$Z_{\text{TmF}}^2 / r_{\text{TmF}}) \{ 1 / \epsilon(\text{mix}) -$$

$$1 / \epsilon(\text{H}_2\text{O}) \} \quad (1)$$

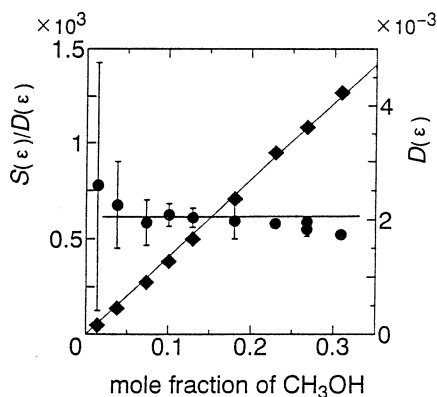
ここで N_A はアボガドロ数, e は電気素量, R は気体定数, T はケルビン温度, Z はイオンの電荷, r はイオン半径, $\epsilon(\text{mix})$ と $\epsilon(\text{H}_2\text{O})$ は混合溶媒と水の比誘電率を表す。(1)式は(2)式のように書き改めることができる。

第1図
メタノールモル分率と生成定数(β_1)。

$$S(\epsilon) / D(\epsilon) = N_A e^2 / 2RT (Z_{\text{Tm}}^2 / r_{\text{Tm}} + Z_{\text{F}}^2 / r_{\text{F}} - Z_{\text{TmF}}^2 / r_{\text{TmF}}) \quad (2)$$

ここで $S(\epsilon)$ は $\{\ln \beta_1(\text{mix}) - \ln \beta_1(\text{H}_2\text{O})\}$, $D(\epsilon)$ は $\{1 / \epsilon(\text{mix}) - 1 / \epsilon(\text{H}_2\text{O})\}$ を意味する。したがって, 静電的理論によって説明されるならば $S(\epsilon) / D(\epsilon)$

はメタノールのモル分率に無関係に一定になるはずである。第2図に混合溶媒中のメタノールのモル分率に対して $D(\epsilon)$ 及び $S(\epsilon)/D(\epsilon)$ をプロットしたものが示してある。メタノールのモル分率に対して $D(\epsilon)$ は大きく変動する一方、 $S(\epsilon)/D(\epsilon)$ はメタノールのモル分率が低いところで大きな誤差を持っているけれども、実験が行われた範囲ではほぼ一定な値であることを示している。この結果はこの系での β_1 の変動が(1)式で表され、溶液中の比誘電率の変化によって(少なくとも見かけ上は)支配されていることを示している。 Tm^{3+} と F^- の両イオンは外殻電子軌道に $s^2 p^6$ 電子構造を持っているので、イオンと溶媒間では配位結合的な相互作用はかなり少なく、溶媒の比誘電率が関係する溶媒の双極子モーメントによる静電的相互作用が主なものになり、二つの溶媒和イオン間の相互作用を支配しているものと考えられる。より詳細な考察は両イオンの溶媒和圏の溶媒組成と関連させてする必要がある。



第2図 メタノールモル分率に対する $S(\epsilon)/D(\epsilon)$ (●) 及び $D(\epsilon)$ (■)。

照射にあたって、大変お世話になった東北大学核理研 榊本和義博士、大槻 勤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) J. B. Walker and G. R. Choppin : *Thermodynamic Parameters of Fluoride Complexes of Lanthanides, in the Lanthanide/Actinide Chemistry*, "Advances in Chemistry Series" 71 (ACS, Washington D. C. , 1967) 127.
- 2) M. P. Menon and J. James : *J. Sol. Chem.* 18 (1989) 735.
- 3) H. Suganuma and G. R. Choppin : *Radiochim. Acta* (in press).
- 4) unpublished data by H. Suganuma, I. Satoh, M. Yagi and G. R. Choppin.
- 5) E. P. Serjeant : *Potentiometry and Potentiometric Titration* (Wiley, New York, 1984) p. 411.

メキシコ, ラ・オルデーニャ地域の火山活動(1) メキシコ火山帯活動初期の火山岩の岩石学, 地球化学

理学部地球物質科学, Comisión Federal de
Electricidad (México)*

長谷中利昭・吉田武義・石川賢一

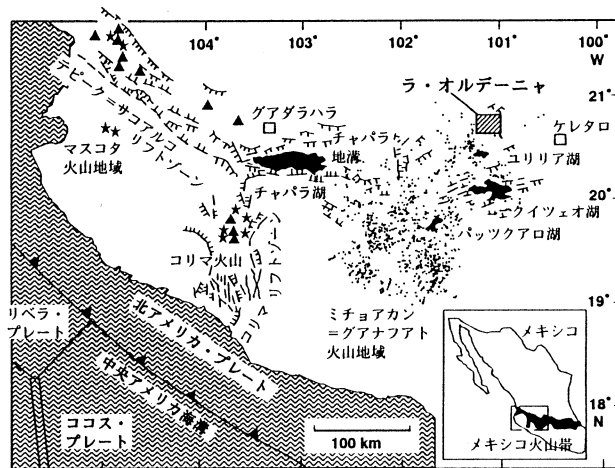
A. R. Salinas*

§ 1. はじめに

沈み込み火山活動を起こすマグマの地球化学的な性格は島弧や陸弧の発達段階, テクトニック・セッティングや応力場の違いによって異なることが知られてきており¹⁾, マグマの生成条件, 分化条件を調べるために重要な情報を提供している。著者らは比較島弧論の立場で東北日本弧とメキシコ陸弧の火山岩の地球化学を比較研究してきたが²⁾, 比較に際しては, 火山弧の発達段階に伴うマグマの性格の変化も考慮する必要がある。長谷中ら³⁾はメキシコ火山帯中央部の第四紀火山岩の地球化学的特徴付けをして, 東北本州弧に比べて, より未分化な玄武岩マグマの活動が認められること, スコリア丘などの小規模な単成火山群の活動が主体であることを報告した。本論では, 時代をさかのぼって, メキシコ火山帯形成初期の火山活動について述べ, 火山岩の組成について現在の火山活動と比較を行う。

調査対象のラ・オルデーニャ (La Ordeña) 地域はメキシコ火山帯中央部, ミチョアカン=グアナフアト (Michoacán-Guanajuato) 火山地域の北に位置する (第1図)。当地域では漸新世~前期中新世に活動した火山帯であるシエラ・マドレ・オキシデンタル (Sierra Madre Occidental) と現在活動しているメキシコ火山帯が交差するので, メキシコ火山帯の初期の活動だけでなく, 異なる火山帯のマグマの組成の変化を調べることが可能である。

著者らはラ・オルデーニャ地域から代表的な火山岩試料20個を採取し, 化学分析を行ったので, その分析結果を報告し, 当地域で活動したマグマの地球化学的特徴を述べる。またメキシコ火山帯中央部で活動したマグマの性格の時代変化と年代測定結果については長谷中ら (本号) の第2部において報告する。



第1図 ラ・オルデーニャ地域の位置図。

ミチョアカン＝グアナフアト火山地域はスコリア丘等の小火山の分布を点表示。黒塗三角：主要複成火山，黒塗星印：スコリア丘等の単成火山群。直線，曲線にハッチをつけたものは正断層を示す。

§ 2. メキシコ火山帯の区分と、中央部の地形構造的特徴

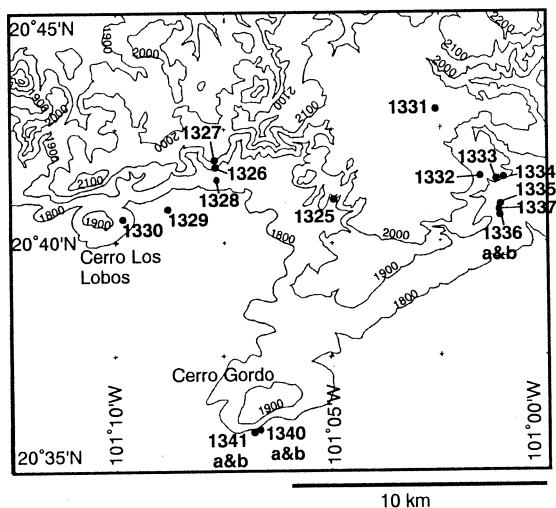
ほぼ東西方向に延びるメキシコ火山帯 (Mexican Volcanic Belt) は、火山の分布および形態から、西部、中央部、東部に分けることができる^{4,5)}。西部は大規模な複成火山とその周辺のスコリア丘などの単成火山列、火山帯の主軸よりさらに海溝側に存在する単成火山群で特徴づけられる。複成火山はカルクアルカリ安山岩溶岩が主体であるが、スコリア丘にはアルカリ岩、しかも非常に未分化な組成のものも認められる。火山帯西部には三つの地溝帯が交差する三重会合点が存在する (第1図)。中央部は広範囲に広がる単成火山群で特徴づけられ、溶岩の組成も玄武岩、玄武岩質安山岩が主体である。カルクアルカリ岩が圧倒的に多いが、アルカリ岩の活動もあり、未分化な組成の溶岩も含まれる。東部は西部と同様、大規模な複成火山が主体で、カルクアルカリ岩が多いが、海溝からの距離が遠くなることに伴い、アルカリ岩の活動も目立つ。玄武岩および安山岩マグマの活動とは別にカルデラの形成を伴う酸性マグマの活動がメキシコ火山帯全ての部分で認められる。

メキシコ火山帯中央部で現在活動している火山は、高度2000m～2200mの地形的高まりの上に位置している。その北側は高度が1800mくらいまで下がり、エル・バヒオ (El Bajío) あるいはバヒオ・デ・グアナフアト (Bajío de Guanajuato) と呼ばれる低地になる。さらに北では2600mの高度にまで再び上昇し、メサ・セントラル (Mesa Central) あるいはシエラ・デ・グアナフアト (Sierra de Guanajuato) と呼ばれる広大な台地を形成する⁶⁾。エル・バヒオと

メサ・セントラルの境界は北西方向の エル・バヒオ断層で明瞭に区切られる⁶⁾。メキシコ火山帯中央部のバヒオ・デ・グアナファトで後期鮮新世～前期更新世の火山活動（スコリア丘や盾状火山）が認められるのに対し、シエラ・デ・グアナファトは主に漸新世の大規模な酸性火山活動の産物から成る。本報告で述べるラ・オルデーニャ地域はシエラ・デ・グアナファトの南東端近くに位置する。

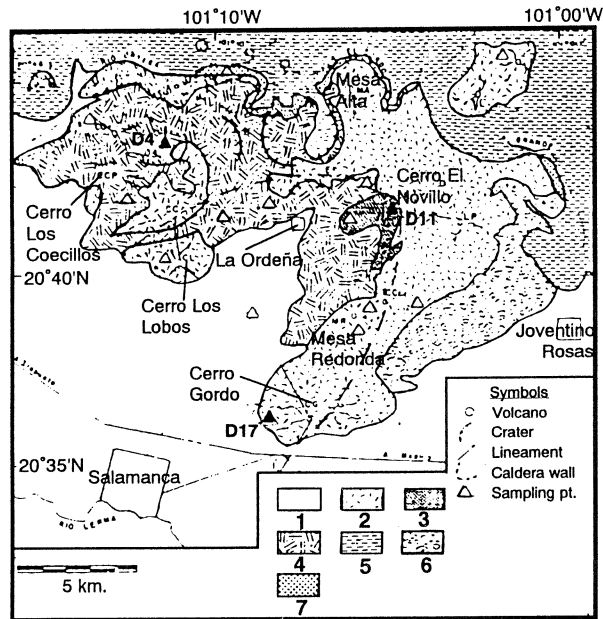
§3. ラ・オルデーニャ地域の地形と地質

ラ・オルデーニャ地域の地形図を第2図、地質図を第3図に示す。調査地域南部には海拔高度1800m弱の平らな地形が広がっている。この低地には1 Ma～3 Maの盾状火山およびスコリア丘が分布し^{8,9)}、第2図はほぼその北端に当たる。西経101°00′、北緯20°30′付近のサンタ・テレサ・スコリア丘から採取したスコリアで2.78MaのK-Ar年代を得た¹⁰⁾。第2図の北半分はこの低地より200～300m高い台地状の地形になっている。台地の北部にはシエラマドレ・オキシデンタルと考えられるイグニンプライトが露出するが、台地南端の崖は分厚い安山岩ないし玄武岩の溶岩から成る（第3図）。Ramos and Flores⁷⁾ はこれらの溶岩流をメサ地形の台地を覆うセロ・ゴルド玄武岩、その下部で台地を構成するラ・オルデーニャ安山岩、最下部を成すエル・ナハンヒヨ安山岩、玄武岩質安山岩および玄武岩に分けた。彼らはまた地形等からラ・オルデーニャ部落を中心にして南西に開くカルデラ壁を推定し、ラ・オルデーニャ部落東に露出する細粒閃緑岩が後カルデラ丘の下部構造であると説明した（第3図）。しかし、カルデラ形成に伴う陥没構造が明瞭でなく、カルデラ壁に沿って上昇したと考えている細粒閃緑岩の年代（14 Ma, 第3図D11）の方がメサを形成する安山岩（12Ma, 第3図D4）より古い。従って、細粒閃緑岩がカルデラ形成に伴った活動の産物ならばカルデラ形成に関与した火山岩類は現在地表に見られる火山岩類により覆われてしまったと考える必要がある。



第2図 ラ・オルデーニャ地域の地形図。

黒丸に 太字の番号で化学分析用試料の採取地点を示す。コンターは100m間隔で、コンター上の数字は海拔高度 (m) を表す。



第3図 ラ・オルデーニャ地域の地質図。

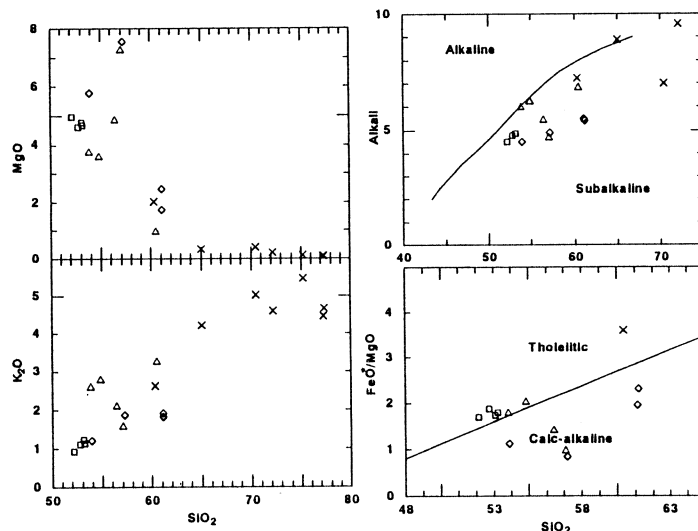
Ramos and Flores⁷⁾を引用したもので、第2図とほぼ同じ範囲を表す。

1：沖積層、礫、凝灰岩層、2：セロ・ゴルド玄武岩、3：エル・ノビヨ火山体深部構成物、4：ラ・オルデーニャ安山岩、5：北部イグニンプライト、6：ラス・ピラス・イグニンプライト、7：エル・ナハンヒヨ安山岩、玄武岩質安山岩および玄武岩

白抜き三角はRamos and Flores⁷⁾の地質調査の為のサンプリング地点。黒塗三角で示した試料、D4、D11、D17からそれぞれ12Ma、14Ma、10MaのK-Ar年代が報告されている。彼らはラ・オルデーニャを囲み、南西に開いた半楕円形のカルデラ壁を推定した。

§ 4. メキシコ火山帯活動初期に大量に流出した台地溶岩

メサ・セントラルにはかなり分厚い溶岩からなるメサ地形が広がっていることから、これらの溶岩台地を造ったマグマは割れ目噴火によって大量に供給されたと考えられる。また台地溶岩 (plateau lava) の年代が狭い年代幅に落ちることから (長谷中ら, 本号), 大量の溶岩流出は地質学的に非常に短いイベントである可能性もある。Ferrari et al.¹¹⁾は台地溶岩がメキシコ火山帯の活動初期に流出し、広範囲に広がり、組成も均質なこと特徴付けられると報告している。台地溶岩はグアダラハラからケレタロに及ぶ範囲 (第1図参照) に分布し、シエラ・マドレ・オキシデンタルの酸性火山噴出物を不整合で覆い、噴出時期は6-10Maの間である。彼らは露出の良いグアダラハラ-アランダス地域の台地溶岩の体積をおおざっぱに3000



第4図 ラ・オルデーニャ地域の火山岩全岩化学組成のハーカー図。

シンボル: 四角=セロ・ゴールド溶岩, 三角=東部の台地溶岩, 菱形=中央および西部の台地溶岩, ×=酸性火山噴出物とそれに伴う石質岩片

km³と見積り, 露出の少ないケレタロ地域でも同程度の体積の溶岩が流出した可能性があると推測した。

台地溶岩の化学分析値はFerrari et al.¹¹⁾を初めとしていくつか報告されているが, すべてカルクアルカリ岩の性格を持ち, それ以前やそれ以後に噴出した溶岩に比べるとより未分化なものが多い。

§ 5. 岩石記載

化学分析を行った試料の採取地点を第2図に示す。これらの試料に著者の一人 (A.R.S.) が採取した溶結凝灰岩試料91-09, 91-28を加えた。Ramos and Flores⁷⁾の地質層序 (第3図)のうち, 調査地南にあるセロ・ゴールドの丘から採取した溶岩試料1340a&b, 1341a&b の他, 西部のセロ・ロス・ロボスの丘から採取した溶岩試料1330, 東部の台地上に露出する侵食の著しいスコリア層から採取したスコリア試料1331が, Ramos and Flores の地質層序 (第3図)のうちのセロ・ゴールド溶岩に相当し, ラ・オルデーニャ部落の2 km西の台地の崖に産する溶岩試料1326, 1327がラ・オルデーニャ安山岩に相当する。これらの溶岩の下位にあたる低地近くの露頭から溶結凝灰岩試料1328, 1329を採取した。ホーベンティノ・ローサスから調査地の東部の台地に登る道路沿いには台地溶岩試料1333, 1334, 1335, 1337が連続的に露出するが,

地質図(第3図)上ではそれより下位のラス・ピラス・イグニンプライトになっている。このルートでは崖の上端近くで流紋岩試料1332を採取し、低地近くの降下軽石層から軽石試料1336aと異質石質岩片試料1336bを採取した。調査地中央部に産する試料1325は彼らのエル・ノビョ火山体深部構成物に相当し、非常に粗粒な安山岩である。

火山岩試料の岩石記載を第1表に、モード組成を第2表に示す。岩石記載から判断すると、斑晶組み合わせの異なる溶岩流が何枚も認められる。ラ・オルデーニャ地域の溶岩台地は組成の均質な溶岩流が一度に流れて溜ったのではなく、おそらく幾つもの異なる溶岩流の流出、堆積を記録しているのであろう。これらの火山岩試料は第四紀のものとなり、酸化や変質が進んでおり、角閃石等の酸化分解生成物や方解石、ゼオライト等の変質鉱物を含むものがある。中央部の試料1325、西部のセロ・ロス・ロボス丘試料1330、南部のセロ・ゴールド丘に産する試料1340a&b, 1341a&bは粗粒であるが、それ以外の溶岩流試料は対照的に細粒で斑晶に乏しい。東部の比較的大きい溶岩台地を形成する火山岩試料1331, 1335は斜方輝石斑晶を含むが、普通輝石斑晶を含まない。これに対し、南部のセロ・ゴールドを形成する火山岩試料は普通輝石斑晶を含むが、斜方輝石斑晶を含まない。

第1表 ラ・オルデーニャ地域の火山岩試料の岩石記載。

試料1325「斑状斜方輝石安山岩」

自形ないし半自形の比較的大きい斜長石斑晶(ほとんどは0.5mmくらい、最大2mm)が卓越する。多くは透明であるが、1/3くらいは細かい褐色ガラスから成る汚濁核を持つ。半自形の斜方輝石は2番目に多い斑晶で、大きさは最大1mm、ほとんどは0.2~0.3mmくらいである。リムやクラックに沿った酸化が半分ほど進み、リムから雲母が成長している箇所もある。半自形の角閃石斑晶(0.2~0.3mm)が少量存在する。石基は長石と間隙を占める褐色ガラスやスフェルライトがほとんどで、微斑晶サイズのFe-Ti酸化物以外のマフィック鉱物が認められない。空隙は方解石で埋められており、その周りを黒雲母やゼオライトが囲んでいる。

試料1326「複輝石安山岩」

斑晶に半自形の普通輝石(0.3~2.0mm)、細長い自形ないし半自形の斜方輝石(0.3~1.0mm)を含むが、ころころした形の微斑晶(0.1~0.3mm)まで、連続的なサイズ分布を持つ。雲母や角閃石がしばしば輝石の周囲に二次的に成長している。斜長石も斑晶鉱物に含まれるが(ほとんどは0.3~0.5mmくらい、最大2mm)、これもサイズが微斑晶まで連続的に変化する。比較的大きい斜長石斑晶は

汚濁帯を持つ。石基は不均質で、おそらくシリカ鉱物が濃集していると思われる優白質なスポットが点在する。優黒質な部分は斜長石、輝石、Fe-Ti酸化物や二次鉱物の雲母や角閃石から成る。

試料1327「斜方輝石安山岩」

半自形ないし他形の角が丸くなった斜方輝石(0.8~2.0mm)が斑晶鉱物として多く、普通輝石は少ない。普通輝石は微斑晶における比率が多く、累帯構造が目立つ。斜長石斑晶ないし微斑晶は認められない。微斑晶に近いサイズのかんらん石が多く目立つが、全て赤褐色のイディングス石に置換されている。石基は填間状組織を示し、短冊状の斜長石、粒状の単斜輝石やFe-Ti酸化物、透明なガラスから成る。単斜輝石の反応縁を持つ融食形石英の捕獲結晶が薄片中に一個認められた。

試料1328「無斑晶流紋岩(溶結凝灰岩)」

斑晶サイズの結晶をほとんど含まず、わずかに石英と長石が認められるだけである。ユータキシティック組織が顕著である。隠微晶質の結晶の集合体から成る包有物や部分的にゼオライトに埋められた間隙が認められる。一部に方解石の成長が見られる。

試料1329「無斑晶流紋岩（溶結凝灰岩）」

試料1328とほぼ同じであるが、石基がやや結晶質である。

試料1330「普通輝石かんらん石玄武岩質安山岩」

非常に粗粒で、石基鉱物も0.1~0.3mmの大きさになったので、モード（第2表）から微斑晶を除いた。斑晶鉱物に半自形のかんらん石（0.5~2.0mm）、普通輝石（0.3~1.0mm）を含む。前者は薄い（<0.03mm）イディンクス石の反応縁をもつ。後者は集斑状になることが多い。石基は間粒状組織を示し、短冊状の斜長石、粒状の単斜輝石、短冊状の斜方輝石、わずかな Fe-Ti 酸化物とこれらの鉱物の隙間を埋める褐色ガラスからなる。時に斜方輝石と単斜輝石の平行連晶が認められる。間隙や小さいクラックは不規則な形の炭酸塩鉱物で埋められている。

試料1331「斜方輝石かんらん石安山岩」

斑晶鉱物として、かんらん石が最も多く、斜方輝石がそれに続く。共に自形ないしやや丸みを帯びた半自形である。比較的大きいかんらん石斑晶（1~3mm）はほぼ完全に蛇紋石ないしイディンクス石に置換されているが、普通のサイズのもの（0.4~1.0mm）はリムに薄いイディンクス石の反応縁を持つのみである。かんらん石微斑晶は少なく、全て赤褐色のイディンクス石に変わっている。斜長石は微斑晶ないし石基サイズのものしか認められない。しかし融食形石英の捕獲結晶は見つかっている。石基は充填状組織を示し、少し流理構造を持ち、隠微晶質である。クラックは比較的大きい短冊状の斜長石と粘土鉱物(?)で埋められている。

試料1332「角閃石流紋岩」

斑晶は半自形ないし他形で角の取れた石英（0.5~3.0mm）や斜長石（0.5~3.0mm）を含む。小さな角閃石斑晶もあるが、ほとんど Fe-Ti 酸化物に置き換えられている。石基は隠微晶質で流理構造がみとめられる。

試料1333「角閃石含有普通輝石かんらん石玄武岩質安山岩」

斑晶鉱物の量は少なく、かんらん石、普通輝石、角閃石の分解物と思われるオバサイトを含む。オバサイト（0.1~0.8mm）は楕円形ないし角の取れた柱状を示し、微斑晶サイズにまで連続的に変わる。かんらん石は斑晶（0.5~1.2mm）、微斑晶（0.1~0.3mm）共、自形であるが、ほとんど全てが赤褐色のイディンクス石、一部が蛇紋石のコアに変わっている。普通輝石の多くは微斑晶サイズ（0.1~0.2mm）で、しばしばセクターズニングを示す。石基は充填状組織ないし間粒状組織で斜長石、輝石、

Fe-Ti酸化物、シリカ鉱物から成る。細長い間隙（多くは0.5mm）は主に雲母類とゼオライトで埋められている。

試料1334「角閃石含有普通輝石かんらん石玄武岩質安山岩」

試料1333とほぼ同じである。

試料1335「斜方輝石安山岩」

自形ないし半自形の比較的大きな斜長石斑晶（0.5~3.0mm）が顕著に見られる。多くは透明であるが、まれに汚濁帯やガラスの包有物を多く持つものが認められる。マフィック鉱物の斑晶はすべて Fe-Ti 酸化物、粘土鉱物、雲母類に置換されている。形から斜方輝石と判断できるものが多いが、中には角閃石の形を示すものもある。融食形の石英捕獲結晶（3.0mm）も含まれている。石基は充填状組織を示し、短冊状の斜長石、針状の斜方輝石、小さな不透明鉱物、シリカ鉱物を含む。ゼオライト、シリカ鉱物、不透明鉱物、角閃石がクラックに沿って成長している。

試料1337「普通輝石含有かんらん石安山岩」

この試料は比較的新鮮で、自形ないし半自形のかんらん石斑晶（0.3~1.5mm）に富む。かんらん石のリムはイディンクス石、緑泥石に変わっているが、コアは変質を免れている。普通輝石斑晶がまれに認められる。微斑晶にかんらん石、普通輝石、斜長石を含む。石基は充填状組織ないし間粒状組織を示し、豊富な短冊状斜長石、粒状の単斜輝石とかんらん石、間を埋めるガラスから成る。単斜輝石の反応縁を持つ融食形の石英捕獲結晶（1mm）を含む。

試料1340 a 「かんらん石玄武岩」

試料は非常に粗粒で、斑晶と思われるサイズのものは斜長石（>1mm）とかんらん石（>0.5mm）を含む。前者は新鮮であるが、後者はほとんど赤褐色のイディンクス石に変わり、斜方輝石の反応縁を持つ。比較的小さい部分（0.2~0.5mm）はサブオフィティック組織を示し、他形の普通輝石と自形ないし半自形の斜長石、かんらん石から成る。微斑晶サイズのかんらん石はイディンクス石と斜方輝石に置換されている。針状の Fe-Ti 酸化物と隠微晶質な基質が隙間を埋めている。

試料1340 b, 試料1341 a, 試料1341 b 「かんらん石玄武岩」

試料1340 a と基本的に同じ鉱物組み合わせであるが、さほど粗粒ではなく、より新鮮で、かんらん石が斑晶コアに残っている。石基は間粒状組織を示す。

第2表 ラ・オルデーニャ地域の火山岩試料のモード組成(体積%)。

Sample	1325	1326	1327	1330	1331	1333	1334	1335	1337	1340a	1340b	1341a	1341b
Rock	And	And	And	And	And	And	And	And	And	Bas	Bas	Bas	Bas
Ol ph	—	—	0.4	3.5	5.4	0.7	0.1	—	5.4	0.6	0.9	1.9	1.4
Ol mp	—	—	—	—	1.2	1.1	2.0	—	0.4	6.2	3.3	5.5	6.0
Opx ph	4.9	1.0	7.1	—	3.2	—	—	0.4	—	—	—	—	—
Opx mp	—	2.7	0.1	—	0.8	—	—	0.4	—	—	—	—	—
Aug ph	—	2.3	0.4	1.3	—	—	0.3	—	0.1	—	—	—	—
Aug mp	—	0.1	0.2	—	—	0.5	0.9	—	0.6	7.4	2.0	3.2	6.9
Pl ph	35.5	11.0	—	0.8	0.4	0.2	0.1	9.2	—	3.8	3.9	3.9	2.5
Pl mp	—	21.2	—	—	—	—	0.5	1.2	0.8	54.2	47.1	48.3	60.6
Opc ph	0.4	—	—	—	—	1.3	1.1	0.3	—	—	—	—	—
Opc mp	—	—	—	—	—	1.2	1.2	0.1	—	—	—	—	—
Opq mp	—	—	—	—	—	0.4	—	0.3	—	0.8	—	—	—
Qz xen	—	—	0.1	—	0.1	0.2	—	—	0.3	—	—	—	—
Bi ph	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
Gm	59.2	61.7	91.7	94.4	88.9	94.4	93.8	88.1	92.4	27.0	42.8	37.2	22.6

略号の説明…

Rock: 岩石名, And=安山岩, Bas=玄武岩, Ol=かんらん石, Opx=斜方輝石, Aug=普通輝石, Pl=斜長石, Opc=オパサイト, Opq=不透明鉱物, Qz=石英, Bi=黒雲母, Gm=石基, mp=微斑晶, ph=斑晶, xen=外来結晶。

§ 6. 分析方法と結果

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て試料を放射化し、光量子放射化分析法によって微量元素の定量を行った。その分析結果を主成分化学組成とともに第3表に示す。主成分元素については東北大学理学部地球物質科学科の蛍光X線分析装置を用いて分析した。K₂O, Na₂Oは炎光光度法, Fe₂O₃は過マンガン酸カリ滴定法, H₂O⁺, H₂O⁻を重量法で各々分析した。微量成分元素については蛍光X線法でも分析したので、元素名のあとに(x)を付して、分析結果を合わせて表に載せた。光量子放射化分析法の分析結果と蛍光X線法の結果を比べると、Crにおいていくらかばらつきが目立つ以外は両者の結果に大きな違いはない。分析試料の組成をハーカー図にプロットしたものを第4図に、液相濃集元素組成のN-MORB規格化パターン図を第5図に示す。

Ramos and Flores⁷⁾の地質層序では玄武岩の溶岩もいくつか記載されているが、今回分析した試料のうちで、玄武岩と呼べるのはセロ・ゴルドの試料だけで、他の溶岩流は全て安山岩組成であった。溶結凝灰岩は流紋岩組成のものとデイサイト組成のもの両方が認められた。

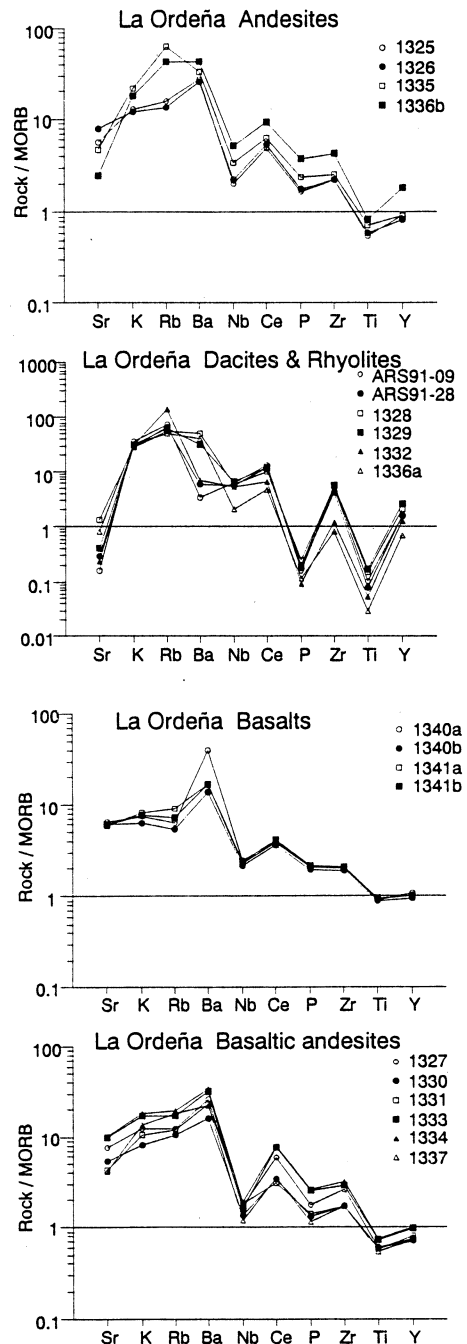
分析した玄武岩および安山岩試料は Gill¹²⁾ の Medium-K ないし High-K に分類された (第 4 図)。アルカリ岩はなく, 全て非アルカリ岩の領域にプロットされた。都城¹³⁾ の図ではカルクアルカリ岩の領域から境界線を少し越えてソレナイト領域に落ちる試料もいくつかあるが, 他の元素の組成からカルクアルカリ岩と考えて差し支えないであろう。MORB 規格化パターン図では全ての分析試料に沈み込み帯に産する火山岩に特徴的な Nb の負異常が認められた (第 5 図)。

分析試料の中から高マグネシア安山岩が 2 つ見つかった。それらは試料 1327 と 1331 で共に台地の最上部に流出ないし噴出したマグマで, 台地を形成する一連の溶岩の中で最も最後に活動したのと考えられる。地域的な違いをみると調査地西部の火山岩試料の方が東部のものよりカリウム, アルカリ, FeO^*/MgO が少なく, マグネシウムに富む傾向がある。Ferrari et al.¹¹⁾ が報告した未分化な玄武岩台地溶岩は本調査地域では見つからなかった。

§ 7. 考 察

(1) セロ・ゴールド溶岩と台地溶岩の組成比較

ここでは調査地の南にあるセロ・ゴールドの丘を構成する溶岩 (1340a&b, 1341a&b) のみをセロ・ゴールド溶岩と呼び, それ以外は Ramos and Flores⁷⁾ の地質層序でセロ・ゴールド玄武岩に含まれていても, 台地溶岩と呼ぶ。K-Ar 年代測定値で両者の間に明確な違いが認められ,



第 5 図 ラ・オルデーニャ地域の火山岩の MORB 規格化図。

第3表 ラ・オルデーニャ地域の火山岩試料の全岩化学組成。

Sample	1325	1326	1327	1328	1329	1330	1331	1332	1333	1334
Rock	AndLv	AndLv	AndLv	DacWT	RhyWT	AndLv	AndBm	RhyLv	AndLv	AndLv
Long	4.88	7.67	7.73	7.64	8.87	9.86	2.60	1.56	1.16	1.01
Lat	41.00	41.68	41.78	41.41	40.76	40.50	42.95	41.46	41.42	41.43
m.a.s.l.	1990	1920	2000	1830	1760	1850	2070	1970	1950	1930
SiO ₂	61.17	61.10	57.17	65.06	72.18	53.89	57.06	77.37	53.84	54.84
TiO ₂	0.84	0.90	0.89	0.23	0.25	0.89	0.87	0.08	1.08	1.12
Al ₂ O ₃	16.30	16.97	14.85	12.70	13.51	16.26	15.08	11.51	16.33	16.76
Fe ₂ O ₃	3.04	2.62	2.39	2.44	2.68	3.15	2.40	0.81	5.43	4.02
FeO	1.30	2.44	4.21	0.52	0.26	3.69	4.86	0.89	1.74	3.53
MnO	0.05	0.07	0.10	0.06	0.06	0.12	0.10	0.02	0.11	0.10
MgO	1.75	2.46	7.55	0.35	0.22	5.80	7.24	0.10	3.74	3.56
CaO	5.73	5.71	6.48	5.40	0.65	9.46	6.05	0.55	8.48	7.44
Na ₂ O	3.50	3.68	3.03	4.66	4.97	3.30	3.11	3.21	3.39	3.42
K ₂ O	1.92	1.83	1.87	4.22	4.59	1.22	1.57	4.68	2.59	2.77
P ₂ O ₅	0.20	0.21	0.21	0.03	0.02	0.16	0.17	0.01	0.30	0.31
H ₂ O ⁺	2.11	0.93	0.67	4.14	0.37	1.84	0.64	0.46	1.88	0.92
H ₂ O ⁻	2.10	1.08	0.57	0.19	0.22	0.22	0.83	0.31	1.09	1.20
Total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
Sc	9.4	9.9	12.4	5.0	5.8	28.4	24.1	2.8	19.3	19.9
V(x)	80	102	138	19	27	168	160	22	170	196
Cr	20.5	27.3	344	—	1.4	179	388	2.1	48.7	44.5
Cr(x)	6	18	402	3	6	188	449	9	50	44
Co	7.5	10.9	26.3	1.7	1.5	23.6	28.3	—	21.1	19.6
Co(x)	8	13	28	—	1	25	37	—	19	21
Ni	2.1	8.9	123	3.2	1.6	13.3	99.6	3.8	17.7	16.8
Ni(x)	3	9	121	3	4	16	97	4	16	19
Cu(x)	6	9	8	5	3	12	21	3	13	15
Zn	59	59	86	5	105	49	56	18	64	81
Zn(x)	59	59	74	51	115	71	79	26	79	88
Ga(x)	19	21	20	21	23	18	18	19	21	21
Rb	32.1	28.7	25.1	110	123	21.3	24.0	274	35.7	37.2
Rb(x)	32	27	25	110	125	21	24	277	35	39
Sr	717	1026	968	171	48	649	539	25	1243	1224
Sr(x)	692	959	915	160	48	630	509	27	1202	1237
Y	24.6	22.5	19.6	62.2	75.0	20.6	22.2	39.5	25.5	28.6
Y(x)	28	25	22	61	75	23	24	38	29	31
Zr	195	185	219	450	484	144	143	106	252	256
Zr(x)	196	198	232	466	503	155	153	109	262	282
Nb	8.5	7.7	6.1	20.5	22.6	5.2	6.5	18.4	6.8	6.5
Cs	0.30	0.14	0.31	0.93	1.40	0.66	0.28	5.94	0.18	0.36
Ba(x)	547	504	533	1036	624	324	457	136	644	691
Ce	48.0	48.8	55.9	88.9	98.6	33.5	33.4	51.7	75.4	75.4
Ce(x)	49	53	58	97	115	34	31	65	77	80
Pb(x)	6	5	4	11	10	6	4	25	5	6
Th(x)	3	3	5	12	13	2	2	23	6	6
Age(Ma)			10.5			10.3	10.2	25.9		

略号の説明

Rock: 岩石名, Bas=玄武岩, And=安山岩, Dac=デイサイト, Rhy=流紋岩, Lv=溶岩, WT=溶結凝灰岩, Bm=火山弾, LF=石質岩片, Pm=軽石, Long: 経度(西経101°), Lat: 緯度(北緯20°), m.a.s.l.: 海拔高度(m), 元素名の後に(x)がつくものは蛍光X線分析で得られた値(ppm), —は検出限界以下。Age(Ma)はK-Ar年代測定値(長谷中ら, 本号)。

第3表 (続き)。

Sample	1335	1336a	1336b	1337	1340a	1340b	1341a	1341b	91-09	91-28
Rock	AndLv	RhyPm	AndLF	AndLv	BasLv	BasLv	BasLv	BasLv	RhyWT	RhyWT
Long	1.08	1.10	1.10	1.13	6.75	6.75	6.78	6.78	—	—
Lat	40.84	40.62	40.62	40.73	35.86	35.86	35.85	35.85	—	—
m.a.s.l.	1860	1860	1860	1830	1760	1760	1760	1760	—	—
SiO ₂	60.48	70.45	60.37	56.42	52.75	52.14	53.08	53.24	75.22	77.25
TiO ₂	1.10	0.04	1.25	0.82	1.39	1.34	1.40	1.41	0.15	0.12
Al ₂ O ₃	16.60	12.83	14.90	16.73	18.06	17.83	17.72	17.80	11.20	10.92
Fe ₂ O ₃	5.51	0.52	5.82	3.58	3.40	3.26	2.38	2.23	1.43	1.44
FeO	1.23	0.72	2.08	3.53	5.65	5.57	6.22	6.45	1.03	0.66
MnO	0.10	0.04	0.12	0.11	0.14	0.14	0.14	0.14	0.02	0.02
MgO	0.96	0.42	2.03	4.84	4.63	4.98	4.79	4.69	0.12	0.08
CaO	4.98	0.95	2.87	6.90	8.43	9.06	8.37	8.38	0.08	0.12
Na ₂ O	3.54	1.98	4.59	3.34	3.68	3.57	3.64	3.72	3.51	3.76
K ₂ O	3.26	5.03	2.64	2.08	1.11	0.93	1.23	1.15	5.48	4.45
P ₂ O ₅	0.28	0.01	0.45	0.14	0.25	0.24	0.25	0.26	0.02	0.02
H ₂ O ⁺	1.03	5.27	1.76	0.84	0.19	0.38	0.46	0.29	1.12	0.71
H ₂ O ⁻	0.93	1.72	1.12	0.66	0.30	0.56	0.32	0.24	0.62	0.46
Total	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00
Sc	15.2	2.8	23.6	18.3	28.9	31.9	24.9	23.8	0.9	1.7
V(x)	116	8	126	145	188	194	182	189	36	58
Cr	31.0	2.4	33.7	236	28.2	106	49.6	57.0	5.3	25.7
Cr(x)	21	8	—	273	26	119	51	54	13	7
Co	12.0	—	9.4	23.1	25.2	29.0	26.1	25.5	—	—
Co(x)	12	—	12	26	26	31	29	29	—	—
Ni	4.2	1.3	6.4	122	8.6	14.9	9.3	7.6	—	3.0
Ni(x)	5	2	8	90	8	15	9	9	3	4
Cu(x)	7	5	13	19	19	22	16	15	5	15
Zn	66	43	121	63	42	77	54	74	—	74
Zn(x)	71	45	142	72	87	83	84	86	76	71
Ga(x)	21	16	21	20	21	20	21	21	21	21
Rb	117	98.5	81.2	34.7	7.8	12.3	16.3	—	146	135
Rb(x)	126	103	85	37	12	11	18	14	147	135
Sr	551	99	288	502	750	718	694	710	17	33
Sr(x)	555	96	292	492	784	739	715	719	19	35
Y	24.8	18.9	51.8	21.1	29.8	26.0	26.9	29.6	45.7	47.6
Y(x)	27	21	54	22	33	28	30	30	48	48
Zr	206	67	346	138	159	148	162	164	417	362
Zr(x)	226	74	380	153	179	168	183	185	435	366
Nb	11.3	7.1	17.5	4.7	8.0	7.6	7.0	8.4	20.9	19.0
Cs	3.55	2.28	1.77	0.45	0.01	0.06	0.15	0.11	3.42	2.03
Ba(x)	671	822	847	453	791	274	330	332	68	112
Ce	55.4	45.9	76.9	30.7	37.6	32.8	35.6	36.0	103.0	96.7
Ce(x)	64	47	91	35	39	37	39	41	128	117
Pb(x)	12	16	17	7	5	4	4	4	15	15
Th(x)	6	8	7	4	1	1	1	2	12	12
Age(Ma)				9.44	7.12					

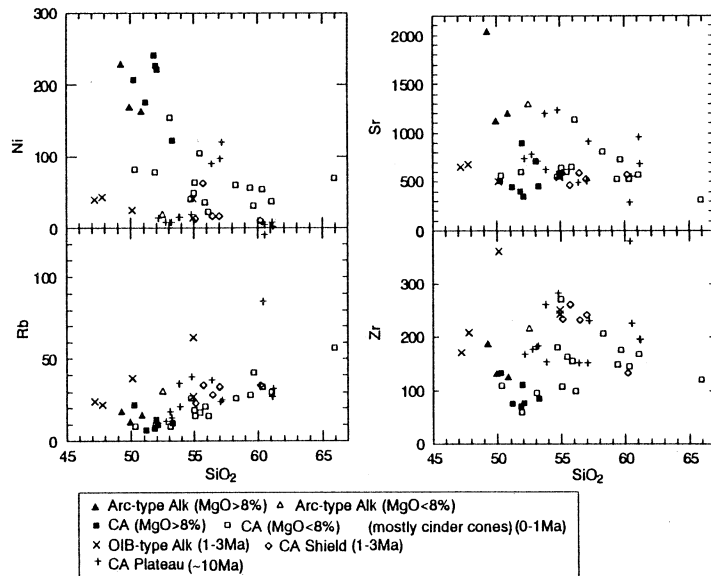
かつ台地溶岩の年代がほとんど一致している（長谷中ら，本号），この分類は妥当であろう。MORBで規格化した微量元素のパターン図を見るとSrからRbまでのパターンで両者の間に少しではあるが違いが認められる（第5図，上から1番目と2番目）。両者の起源物質がおそらく異なっており，結晶分化で関係づけられないことは主要元素のハーカー図からもわかる。セロ・ゴルドの玄武岩溶岩は玄武岩質安山岩組成の台地溶岩と比べると，概ねシリカやカリウムが少ないにも関わらず，マグネシウムも少ない。観察された斑晶鉱物を取り除いたり，加えたりすることによって一方を他方から作るの難しい。セロ・ゴルド溶岩は台地溶岩の活動が終った後の別のマグマの活動であろう。

(2) 台地溶岩とシエラ・マドレ・オキシデンタルの組成比較

ラ・オルデーニャの調査地域に産するメキシコ火山帯の台地溶岩とシエラ・マドレ・オキシデンタルのイグニブライトの組成の比較は前者が玄武岩，安山岩であるのに対し後者が流紋岩，デイサイトであるので，直接的な比較は難しい。しかし，結晶分化やマンテルかんらん岩の部分溶融の際に似通った挙動をすると考えられるカリウムとルビジウムの濃度比に着目すると両者の間で著しい違いがある。この違いはMORBで規格化した微量元素のパターンを比較すると，非常に明瞭である（第5図，下から1番目と2番目）。台地溶岩はBaにピークがあるのに対して，イグニブライトはRbにピークがある。以上の比較は同じシリカ含有量の溶岩どうしではないので，降下軽石層（ホスト=1336a）に含まれていた安山岩の石質岩片（1336b）の微量元素パターンを比較対象にして比べてみた。すると，この試料もイグニブライト同様，Rbにピークがある。従って，この微量元素のパターン特性はイグニブライトの噴出時期かあるいはそれ以前に活動していたマグマに共通のものと考えられる。調査地東部の台地の崖を登る道路沿いで採取した一連の溶岩のうち安山岩試料1335もRbにピークを持ち，イグニブライトと似通ったパターンを示す。試料1337はBaにピークを持つが，他の試料に比べるとRbのピークが高めである。従って，イグニブライトと台地溶岩の間の中間的な性格を持つ溶岩が活動した可能性もある。

(3) 10Ma以降におけるメキシコ火山帯中央部のマグマ組成変化

メキシコ火山帯中央部ではラ・オルデーニャ地域を含めて火山活動の場が時代とともに海溝寄りに移動してきた^{9, 10}。この移動はテクトニクスや海洋スラブの沈み込み形態の変化を伴っていると考えられ，マグマの生成条件も変わってきたと予想される。生成条件の違いを探る目的で，10Ma以降に噴出した溶岩の微量元素組成に時代，岩系毎に異なるシンボルを与えて，ハーカー図にプロットした（第6図）。本報告で述べたラ・オルデーニャ地域の台地溶岩はすべて



第6図 ラ・オルデーニャ地域およびミチョアカン＝グアナフアト火山地域の代表的火山岩全岩化学組成のハーカー図。

やや分化したカルクアルカリ岩で、沈み込み帯に特徴的な Nb の負異常を示す。このようなカルクアルカリ安山岩はメキシコ火山帯中央部では全ての時代に共通して活動しており、時代による大きな組成の違いはない（第6図）。第5図の微量元素の MORB 規格化図を新しい時代のもの（長谷中ら³⁾を参照）と比較しても大きな違いは認められない。台地溶岩の P, Ti含有量が他の元素に比べてやや少なく、図において少々の折れ曲がりが見える程度である。沈み込み帯のマグマを特徴づける Sr, Rb, K, Ba などの元素の相対的な濃度は時代とともに火山と海溝の距離が変わって、マグマの発生場所がより海溝寄りに移動してもほとんど変化を示さない。また火山の噴出形態が台地溶岩、盾状火山、スコリア丘と変わり、噴出率も変わってきているのに噴出した溶岩の組成は影響をほとんど受けていない。これはマンテルで発生したマグマの組成が、マグマの噴出率、おそらくはマグマの生産率の変化にも関わらずほとんど変わっていないことを示す。

§ 8. まとめ

メキシコ火山帯中央部、ミチョアカン＝グアナフアト火山地域の内陸側に位置するラ・オルデーニャ地域では10Ma 頃に大規模な台地溶岩の噴出が起こった。それらは全てカルクアルカリ安山岩で MgO が 8% 近くあるものを含む。休止期において 7 Ma 頃に少し化学的性格の異

なる玄武岩溶岩が活動して海溝寄りに溶岩丘 (lava mound) を作った。その後、おそらく 3 Ma 頃から盾状火山やスコリア丘を形成する火山活動が始まり、主にカルクアルカリ安山岩を噴出したが、同時に少量のアルカリ岩マグマも噴出し、多様な組成のマグマが発生するようになった。この1000万年間、火山活動の場が移動したにもかかわらずカルクアルカリ安山岩の組成に大きな変化はなかった。

ラ・オルデーニャ地域には漸新世のシエラ・マドレ・オキシデンタル火山帯の産物のイグニンプライトも分布しているが、噴出物の化学組成の特徴はメキシコ火山帯のものと明かに異なる。

光量子放射化分析にあたり、東北大学原子核理学研究施設の柘本和義博士、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皆様には大変お世話になった。東北大学理学部地球物質科学科の青木謙一郎教授、蟹沢聰史教授、藤巻宏和助教授には諸般にわたって御助力いただいた。同、土谷信高博士には蛍光X線分析を手伝っていただいた。化学分析に用いた岩石試料は東北大学とメキシコ国立自治大学の共同研究の際の地質調査で採取したものである。現地調査においてはメキシコ国立自治大学、地球物理学研究所の横山泉客員教授(当時)、Gerald Juarez 所長、Jaime Urrutia 教授、Hugo Delgado 博士に大変お世話になった。渡墨および現地調査には文部省科学研究費補助金、国際学術研究(03041014、代表者、青木謙一郎)を使用した。ここに記して以上の方々に深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) M. Wilson : Igneous Petrogenesis. (Unwin Hyman, 1989) p. 466.
- 2) K. Aoki : Subduction volcanism and tectonics of western Mexican Volcanic Belt (Tohoku Univ. 1992).
- 3) 長谷中利昭・吉田武義・青木謙一郎 : 核理研報告 **26** (1993) 256.
- 4) G. T. Nixon : Geol. Soc. Am. Bull. **93** (1982) 514.
- 5) L. Ferrari, V.H. Garduño, G. Pasquarè, and A. Tibaldi : Geofis. Int. **33-1** (1994) 91.
- 6) J.J. Aranda-Gómez, J.M. Aranda-Gómez, and A.F. Nieto-Samaniego : Univ. Nat. Autón. Mexico, Inst. Geología Revista **8** (1989) 33.
- 7) A.Ramos S., and S. Flores. C. : Primer Congreso Mexicano de Mineralogía,

- Convención Evolución Geológica México. **1** (1991) 167.
- 8) T. Hasenaka, M. Ban, and H. Delgado-Granados : Geofís. Int. **33-1** (1994) 125.
- 9) M. Ban, T. Hasenaka, and H. Delgado-Granados : Geofís. Int. **31-4** (1992) 467.
- 10) T. Hasenaka, and I. S. E. Carmichael : J. Volcanol. Geotherm. Res. **25** (1985) 105.
- 11) L. Ferrari, V.H. Garduño, F. Innocenti, P. Manetti, G. Pasquarè, and G. Vaggelli : Geofís. Int. **33-1** (1994) 107.
- 12) J. B. Gill : Orogenic andesites and plate tectonics. (Springer-Verlag, 1981) p. 390.
- 13) A. Miyashiro : Am. J. Sci. **274** (1974) 321.

メキシコ、ラ・オルデーニャ地域の火山活動（2） メキシコ火山帯の活動域の移動

理学部地球物質科学, 地質調査所*, Comisión
Federal de Electricidad (México)**

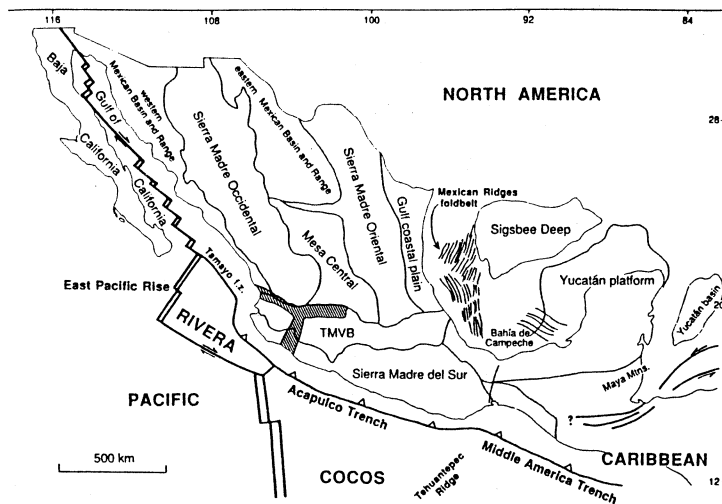
長谷中利昭・吉田武義・宇都浩三*

内海茂*

A. R. Salinas**

§1. はじめに

メキシコ陸弧には分布, 活動年代の異なる新生代の沈み込み帯火山活動が2つある(第1図)。一つは現在活動しているメキシコ火山帯(Mexican Volcanic Belt, 以下MVBと略す)で, ほぼ東西方向に広がり, もう一つは新第三紀の火山帯, シエラ・マドレ・オキシデンタル(Sierra Madre Occidental, 以下SMOと略す)でNNW-SSE方向に広がり, 両者は分布域が一部, オーバーラップしている(第1図)。MVBはココス・プレート, リベラ・プレートの南方からの沈み込み, SMOはグアドルーペ・プレートの西方からの沈み込みに関係している。従って, テクトニック・セッティングの変化に対応して, 新第三紀のある時期にSMOの火山活動



第1図 メキシコの地形構造区分図とプレート境界。

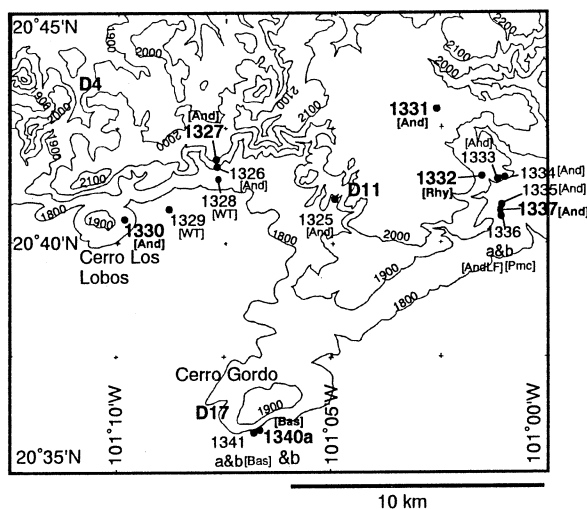
TMVBはメキシコ火山帯を示す。メキシコ火山帯西部の斜線部はテピーク＝サコアルコ地溝帯(北西－南東), コリマ地溝帯(南北), チャペラ地溝帯(東西)を表す。Sedlock et al.²³⁾を引用。

が衰えて、やがてMVBに移行していったものと考えられる。SMOからMVBへの移行時期については、火山岩の絶体年代の報告例が少ない為、はっきりとわかってはいなかった。

本報告で取り上げるラ・オルデーニャ (La Ordeña) 地域は両火山帯がオーバーラップする部分に相当し、両火山帯の移行時期、両火山帯のマグマの地球化学的特徴の違いについて考察するのに適している。本報告ではラ・オルデーニャ地域に産する代表的な火山岩のK-Ar年代測定値を報告するとともに、両火山帯の活動域がオーバーラップするMVB中央部において公表されたK-Ar年代をコンパイルして (第1表)、火山活動域の年代に伴う変遷、諸説²⁴⁻²⁶⁾があったSMOからMVBへの移行時期、火山活動の地球化学的 성격の変化について考察する。

§ 2. ラ・オルデーニャ地域の地形、地質概略

ラ・オルデーニャ地域はミチョアカン=グアナフアト火山地域に北接し、海拔高度約1800mの平らな低地が北に向かって約200mの高度差を持った台地に移行する場所にあたる (第2図)。低地には後期鮮新世に活動したスコリア丘やマール¹⁾、そして中規模の盾状火山が噴出している。これに対し、台地は漸新世～前期中新世に活動したSMOの厚い酸性火山活動の噴出物を玄武岩ないし安山岩の溶岩流が覆っている²⁷⁾。第2図に化学分析と年代測定の両方に用いた試



第2図 ラ・オルデーニャ地域における化学分析試料および年代測定試料の採取地点。地形図のコンターは100m間隔。数字は化学分析試料の採取地点を示す。太字の数字は年代測定もあわせて行った試料。D4, D11, D17の地点からRamos and Flores²⁷⁾によってそれぞれ12Ma, 14Ma, 10MaのK-Ar年代が報告されている。[And] = 安山岩, [Bas] = 玄武岩, [WT] = 溶結凝灰岩, [Rhy] = 流紋岩, [Pmc] = 軽石, [LF] = 石質岩片。

第1表 メキシコ火山帯中央部でのK-Ar年代公表値のコンパイル。

Sample	Volcano/Area	Rock	Min	Long.W	Lat.N	Age (Ma)	Error	Ref
Mx8817	NW of Tafetán	lgnm	San	100° 56'	19° 36'	33.44	± 1.7	(16)
Ped16	Rio Verde	lgnm		102 46	21 5	28.0	± 1.2	(14)
1332	La Ordeña	Rhy	WR	101 2	20 41	25.9	± 0.2	(23)
DCH1	Arandas	lgn		102 1	20 40	24.1	± 0.8	(4)
W4	Rio G. Santiago	And		103 28	21 19	23.9	± —	(18)
Mx8838	N of La Ordeña	Rhy	San	101 13	20 56	23.28	± 1.0	(16)
Mx8841	N of La Ordeña	lgnm	San	101 1	20 52	22.40	± 1.0	(16)
Ped10	Rio G. Santiago	Bas		103 14	21 7	20.9	± 0.4	(14)
Mx882	W of Tafetán	lgnm	San	101 7	19 32	20.53	± 1.0	(16)
Taf1	Tafetán	Bas	WR	100 56	19 30	20.26	± 1.0	(16)
Mx215	W of Los Azfres	And	WR	100 52	19 46	18.20	± 0.6	(16)
Mx8831	S of Cuitzeo Lake	lgnm	Pl	101 8	19 41	17.70	± 0.5	(16)
Mx883	W of Los Azfres	And	Pl	100 49	19 39	16.20	± 0.8	(16)
Ls23	SW of Los Azfres	And	WR	100 55	19 39	14.1	± 0.7	(7)
Mx8832	Nocupétaro	And	Bi	101 16	19 3	13.87	± 0.7	(16)
1325	La Ordeña	And	WR	101 5	20 41	13.2	± 0.2	(23)
S1	Arandas	Bas		102 12	20 40	12.0	± 2.0	(21)
S6	Arandas	BAnd		102 32	20 41	11.0	± 2.0	(21)
DCH2	Arandas	Bas		102 14	20 35	10.8	± 0.9	(4)
1327	La Ordeña	And	WR	101 8	20 42	10.5	± 0.1	(23)
1330	La Ordeña	BAnd	WR	101 10	20 41	10.3	± 0.1	(23)
1331	La Ordeña	And	WR	101 3	20 43	10.2	± 0.1	(23)
1131	Arandas	Bas		102 19	20 42	10.20	± 0.30	(15)
Az20	Los Azfres-2700m	And	WR	100 41	19 45	10.1	± 0.6	(2)
M203a	Chapala	And		103 27	20 4	10.10	± 0.40	(1)
S8	Arandas	Bas		102 26	20 46	10.00	± 2.00	(21)
Ped14	Rio Verde	Bas		102 51	20 52	9.97	± —	(14)
Ped12	Rio Verde	Bas		102 54	20 50	9.58	± 0.35	(14)
W711	Rio G. Santiago	Bas		103 19	20 51	9.50	± 0.10	(22)
1337	La Ordeña	And	WR	101 1	20 41	9.44	± 0.10	(23)
DCH5	Arandas	Bas		102 21	20 28	9.30	± 0.90	(4)
W712	Rio G. Santiago	Bas		103 20	20 51	9.20	± 0.10	(22)
W713	Rio G. Santiago	lgnm		103 19	20 50	9.10	± 0.10	(22)
W714	Rio G. Santiago	Bas		103 20	20 49	9.00	± 0.20	(22)
ZI43	Pathé	And		99 24	20 47	9.00	± 0.30	(5)
HF7	Pathé	And		99 36	20 30	9.00	± 0.80	(20)
Roe142	E of Chapala Lake	Bas		102 23	20 2	8.80	± 0.80	(17)
Mx8820	Querétaro	Bas	WR	100 22	20 37	8.10	± 0.8	(16)
Ped11	Rio G. Santiago	Bas		103 14	20 46	8.02	± 0.10	(14)
Ped12'	Rio G. Santiago	Bas		103 7	20 48	8.02	± 0.10	(14)

Rock (岩石名): Dior=閃緑岩, And=安山岩, Dac=デイサイト, Bas=玄武岩, Ignm=イグニンプライト, Rhy=流紋岩, BAnd=玄武岩質安山岩, RDac=流紋岩質デイサイト, Min (測定鉱物): San=サニディン, WR=全岩, Pl=斜長石, Bi=黒雲母, Glass=ガラス, Age (年代), Ref (引用文献), 参考文献リスト中に表示。

第 1 表 (続 き)。

Sample	Volcano/Area	Rock	Min	Long.W	Lat.N	Age (Ma)	Error	Ref
Cu8	S of Cuitzeo Lake	And	WR	101° 10'	19° 45'	7.81	± 0.4	(16)
HF24	Pathé	Rhy		99 43 20	38	7.80	± 0.40	(20)
KA4289	Guadalajara	lgnm		103 2 20	43	7.73	± 0.20	(10)
S92	Pathé	Bas		99 36 20	36	7.70	± 0.10	(19)
HF25	Pathé	Rhy		99 43 20	38	7.60	± 0.30	(20)
W2	Rio G. Santiago	And		103 26 21	2	7.50	± —	(18)
W3	Rio G. Santiago	And		103 25 21	7	7.30	± —	(18)
KA3100	Guadalajara	lgnm		103 19 20	47	7.15	± 0.20	(10)
1340a	La Ordeña	Bas	WR	101 7 20	36	7.12	± 0.32	(23)
C3	Rio G. Santiago	BAnd		103 9 21	1	6.80	± —	(18)
N701	Pathé	Rhy		99 44 20	37	6.70	± 0.10	(13)
N702	Pathé	Bas		99 44 20	37	6.50	± 0.20	(13)
CHP717	Chapala	Bas	WR	103 20 20	3	6.22	± 0.96	(6)
CHP563	Chapala	Bas	WR	103 1 20	4	6.15	± 0.79	(6)
Mx8819	NW of Tafetán	lgnm	Pl	100 56 19	36	6.12	± 0.6	(9)
Pu3	W of Cuitzeo Lake	And	WR	101 32 20	1	6.06	± 0.4	(16)
CHP555	Chapala	Bas	WR	102 57 20	3	5.76	± 1.12	(6)
CL14	W of Cuitzeo Lake	Bas	WR	101 27 19	58	5.58	± 0.3	(16)
Mx8843	NE of Los Azfres	Rhy	San	100 26 20	5	5.45	± 0.5	(9)
Aca2	NE of Cuitzeo Lake	Dior	WR	100 56 19	59	5.32	± 0.2	(16)
CHP533	Chapala	And	WR	103 26 20	25	5.15	± 0.61	(6)
CHP552	Chapala	And	WR	103 22 20	6	5.01	± 0.79	(6)
Az6	Los Azfres-700m	And	WR	100 40 19	46	5.00	± 0.4	(2)
CHP726B	Chapala	And	WR	102 56 20	1	4.79	± 0.59	(6)
Mx8828	Cd. Hidalgo	Dac	Bi	100 28 19	38	4.30	± 0.4	(9)
CHP106	Chapala	And	WR	103 31 20	20	4.28	± 0.64	(6)
CHP705	Chapala	Bas	WR	103 14 20	0	4.21	± 0.99	(6)
CHP551	Chapala	Bas	WR	103 11 20	6	4.12	± 0.64	(6)
CHP535	Chapala	And	WR	103 26 20	26	3.86	± 0.65	(6)
CHP601B	Chapala	And	WR	103 16 20	20	3.85	± 0.42	(6)
Mx8822	MGVF:North	lgnm	Pl	100 48 20	22	3.83	± 0.4	(9)
Az20'	Los Azfres-800m	Dac	WR	100 41 19	45	3.10	± 0.2	(2)
Mx138	MGVF:North	And	WR	101 25 19	54	2.90	± 0.1	(9)
Mor4	MGVF:North	lgnm	San	101 13 20	6	2.80	± 0.2	(9)
555A	MGVF:Santa Teresa	Bas	WR	100 60 20	30	2.78	± 0.07	(11)
CHP504	Chapala	And	WR	102 51 20	18	2.52	± 0.37	(6)
997	MGVF:C. Grande	And	WR	100 53 20	25	2.35	± 0.25	(3)
Mx116	MGVF:North	And	WR	101 17 20	6	2.26	± 0.1	(16)
995	MGVF:C. Curiacan	And	WR	100 58 20	20	2.23	± 0.23	(3)
Pu12	MGVF:North	And	WR	101 24 20	5	2.19	± 0.2	(16)

第 1 表 (続 き)。

Sample	Volcano/Area	Rock	Min	Long.W	Lat.N	Age (Ma)	Error	Ref
Mx8833	MGVF S:Villa Madero	Dac	Bi	101° 21'	19° 18'	2.16	± 0.2	(16)
978	MGVF:Brco del Diablo	And	WR	101 44	19 56	1.97	± 0.23	(3)
Ls443	Los Azfres	Rhy	WR	100 45	19 53	1.60	± 0.1	(7)
CHP549	Chapala	And	WR	103 22	20 10	1.56	± 0.50	(6)
Ar5	W of Los Azfres	Rhy	WR	100 48	19 51	1.53	± 0.13	(9)
CL7	MGVF:North	And	WR	101 38	19 48	1.40	± 0.2	(16)
Pu7	MGVF:North	And	WR	101 37	20 8	1.30	± 0.1	(16)
CHP538	Chapala	And	WR	103 31	20 29	1.29	± 0.43	(6)
999	MGVF:C. Camataran	And	WR	101 34	20 11	1.22	± 0.13	(3)
Ar3	W of Los Azfres	Rhy	WR	100 51	19 51	1.21	± 0.04	(9)
MC84	MGVF:San Nicolas	And	WR	101 15	20 23	1.20	±	(12)
Ar4	W of Los Azfres	Rhy	WR	100 51	19 53	1.19	± 0.09	(9)
CHP290	Chapala	And	WR	102 45	20 8	1.19	± 0.46	(6)
Ar2	Los Azfres	Rhy	WR	100 43	19 49	1.14	± 0.04	(9)
DM851	Los Azfres	And	WR	100 38	19 49	1.03	± 0.2	(8)
DM852	Los Azfres	Rhy	Glass	100 38	19 46	1.03	± 0.02	(8)
CHP666	Chapala	Dac	B	103 38	20 28	0.98	± 0.20	(6)
DM853	Los Azfres	Rhy	WR	100 38	19 46	0.93	± 0	(8)
N340	MGVF:South	And	WR	101 24	19 37	0.87	± 0.05	(15)
Mex219	MGVF:North	BAnd	WR	101 45	19 53	0.87	± 0.17	(9)
DM854	Los Azfres	Rhy	Glass	100 40	19 48	0.84	± 0.02	(8)
Mx126	MGVF:North	And	WR	101 24	19 59	0.83	± 0.0	(16)
Mex211	N of Los Azfres	And	WR	100 44	19 60	0.76	± 0.15	(9)
Mx222	N of Cuitzeo Lake	BAnd	WR	101 5	19 54	0.75	± 0.0	(16)
Ve4	MGVF S:Villa Escalante	And	WR	101 38	19 22	0.66	± 0.0	(16)
929	MGVF:C. Buena Vista	And	WR	102 37	19 9	0.58	± 0.09	(3)
974	MGVF:C. Yahuarato	And	WR	101 33	19 37	0.56	± 0.07	(3)
1023	MGVF:C. Tancitaro	And	WR	102 25	19 17	0.55	± 0.06	(3)
Mx232	SW of Cuitzeo Lake	And	WR	101 25	19 47	0.54	± 0.2	(16)
426L	MGVF:C. Pelon	Bas	WR	101 55	19 18	0.37	± 0.05	(11)
455	Cd. Hidalgo	Bas	WR	100 29	19 32	0.36	± 0	(7)
DM855	Los Azfres	Dac	Pl	100 37	19 49	0.33	± 0.07	(8)
DM856	Los Azfres	Rhy	Bi	100 42	19 45	0.30	± 0.07	(8)
988	MGVF:(W C. El Picacho)	And	WR	101 58	19 50	0.18	± 0.03	(3)
DM857	Los Azfres	Rhy	Bi	100 42	19 47	0.15	± 0.05	(8)
DM858	Los Azfres	Rhy	Glass	100 43	19 48	0.14	± 0.02	(8)
909	MGVF:C. Paracho	And	WR	102 2	19 35	0.06	± 0.02	(3)
452	Cd. Hidalgo	RDac	WR	100 23	19 32	0.05	± 0.03	(7)
Mx230	SW of Cuitzeo Lake	BAnd	WR	101 23	19 45	0.05	± 0.0	(16)

料の採取地点を示している。Ramos and Flores²⁷⁾がこの地域の地質図を作成し、3つの火山岩試料についてK-Ar年代測定値を報告している。それらの試料は第2図中に採取地点を示したD4, D11, D17で、得られた年代はそれぞれ12Ma, 14Ma, 10Maである。彼らは南西方向に開いた馬蹄形のカルデラを推定しているが、そのカルデラの内部に対応する細粒な閃緑岩試料(D11)がもっとも古く、台地地形の下部(D4)がその次に古く、ラ・オルデーニャ地域南部にあるセロ・ゴルド(D17及び1340, 1341試料の採取地点)が最も新しい。彼らは台地の最上部を覆う溶岩をセロ・ゴルド溶岩に対比した。

§ 3. 年代測定実験および結果

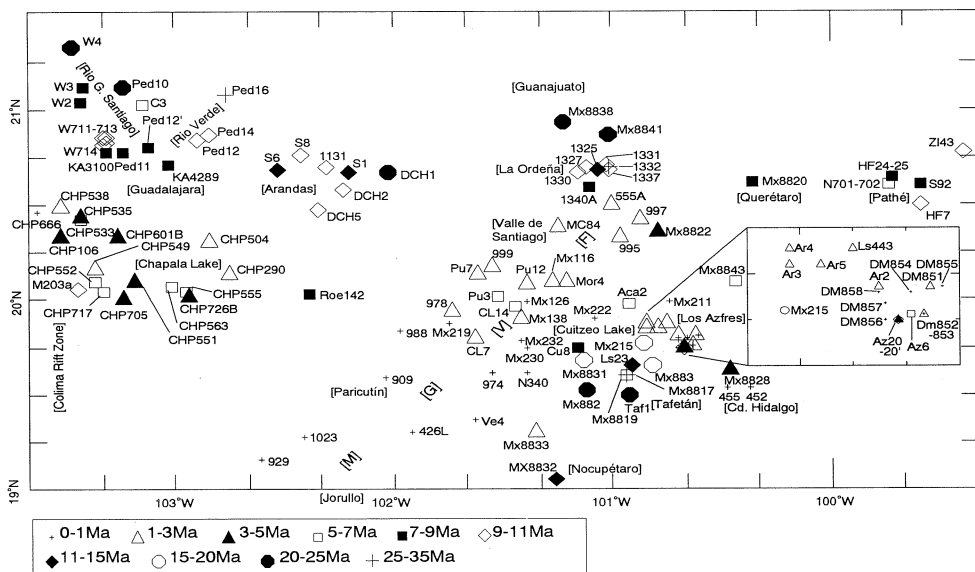
K-Ar年代測定用の全岩石試料の新鮮な部分を選んで、地質調査所で粉碎し10-16メッシュの粒径にふるい分けた。アルゴンの定量にはそのサイズの試料を約6グラム(試料1332については4グラム)用い、カリウムの定量には、約5グラム分取した後、さらに石川式自動乳鉢で細粉碎したものを用いた。岩石試料からのアルゴン抽出、精製は、パイレックスガラス製高真空装置を用いて行った。アルゴン同位体分析は、VG Micromass 603型希ガス用質量分析計を用いた。カリウムの定量は松本²⁸⁾に従い、炎光光度法により行った。年代計算に用いた諸定数は以下の通りである： $\lambda_{\beta}=4.962 \times 10^{-10}/\text{yr}$, $\lambda_{\alpha}=0.581 \times 10^{-10}/\text{yr}$, $^{40}\text{K}/\text{K}=0.01167$ (Steiger and Jäger²⁹⁾)。

年代測定結果を第1表に示す。年代値の誤差はCox and Dalrymple³⁰⁾の式に従い、 1σ の値で示した。本報告とRamos and Flores²⁷⁾が報告した年代との間に若干のずれはあるが、両者ともセロ・ゴルド溶岩が他の台地溶岩より若いということで一致している。台地を形成する溶岩が東西の流出位置にも上下の層準にも関係なく、全て約10Maの年代値になったのは注目に値する。約200mの厚さで広範囲に分布している溶岩流が地質学的に非常に短い時間に形成されたことになる。おそらく割れ目噴火で短時間に大量の溶岩が流出したものと考えられる。MVBの北に広がる溶岩台地の形成年代をコンパイルしたFerrari et al.³¹⁾は6-10 Maの値と玄武岩ないし玄武岩質安山岩の科学分析値を報告している。今年代値を得た試料のうちセロ・ゴルドのものだけが玄武岩で他の台地溶岩は安山岩であった。さらに調査地域東部の台地上端近くで採取した流紋岩溶岩で25.9Maの年代値を得たが、これはSMOの酸性火山活動の時期に一致する。台地の下部や低地に露出している降下軽石層(1336a)やイグニブライト(1328, 1329)は層序的に下位と思われるので26Maと同じかさらに古い活動に相当する可能性がある。

§ 4. メキシコ火山帯中央部の火山岩年代のコンパイル

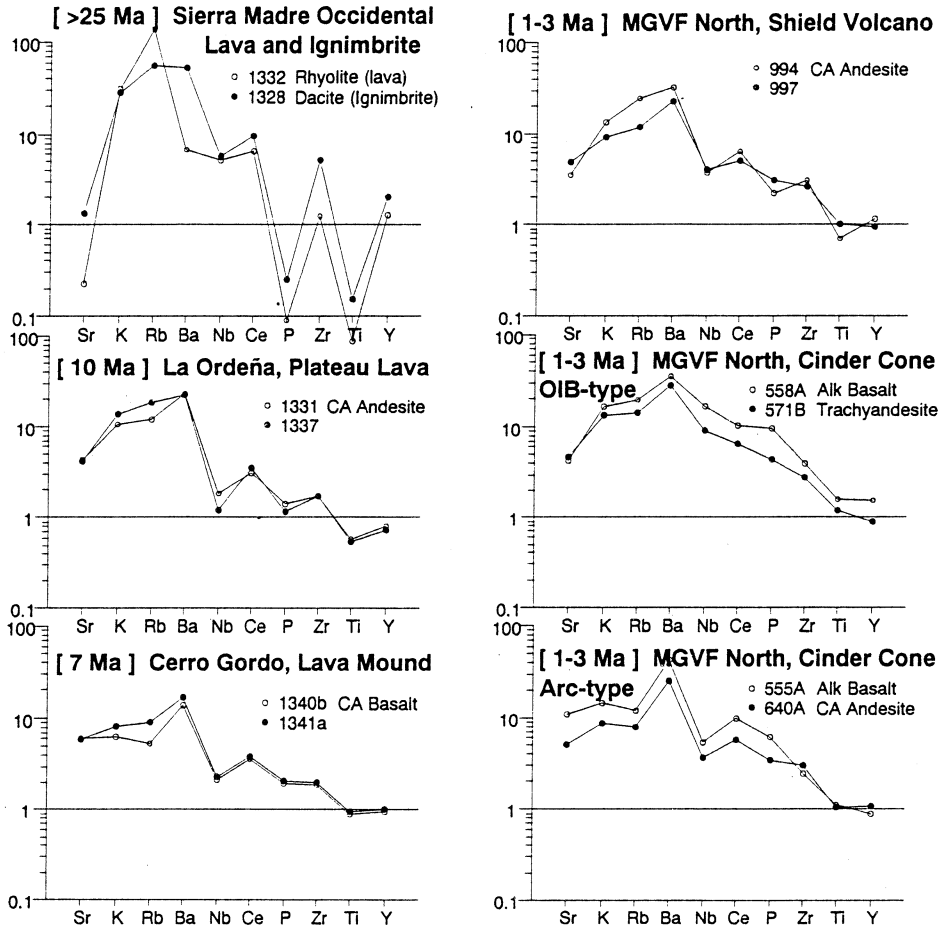
第3図はMVB中央部のうち、グアダラハラ地域、チャパラ地溝、ミチョアカン＝グアナフアト火山地域、ロス・アスフレス火山地域を含む部分について、K-Ar年代の得られている試料の位置をプロットしたものである。出版物などで公表されている全てのK-Ar年代測定値を年代順にコンパイルし（第1表参照）、年代区分ごとに異なったシンボルを与えて、試料の採取位置をプロットした。20Maより古いSMOの岩石も含まれている。15Ma以前には南北いずれの位置にも年代試料採取シンボルが分布していたのが、15Ma以降には現在のMVBと同じ東西方向に延びた分布に変化している。7-15Maの年代幅に落ちる試料は図の北端約1/3の東西の帯に、1-5Maの年代幅に落ちる試料は図の中央約1/3の東西の帯に限られている。0-1Maの年代値を持つ試料はさらに南の海溝側にまで延びて分布している。以上から火山活動域が段階的に海溝寄りに移動してきている傾向が読みとれる。

MVB中央部のミチョアカン＝グアナフアト火山地域には小規模な単成火山が海溝から190km～430kmに分布しているが、4万年より若い火山の位置が海溝より300km以内にしか噴出していないこと¹¹⁾や、1～3MaのK-Ar年代が得られた盾状火山が海溝より遠い地域、1Ma



第3図 K-Ar年代測定値が得られた火山の位置図。

メキシコ火山帯中央部について、出版物などで入手可能な全てのK-Ar年代測定値をコンパイルし（第2表参照）、年代区分ごとに位置をプロットした。20Maより古いSierra Madre Occidentalの岩石も含まれている。15Ma以降には現在のメキシコ火山帯の東西方向の分布が顕著になってきている。7-15Ma, 1-5Ma, 0-1Maの年代グループの順で、火山活動域が海溝寄りに移動してきている。

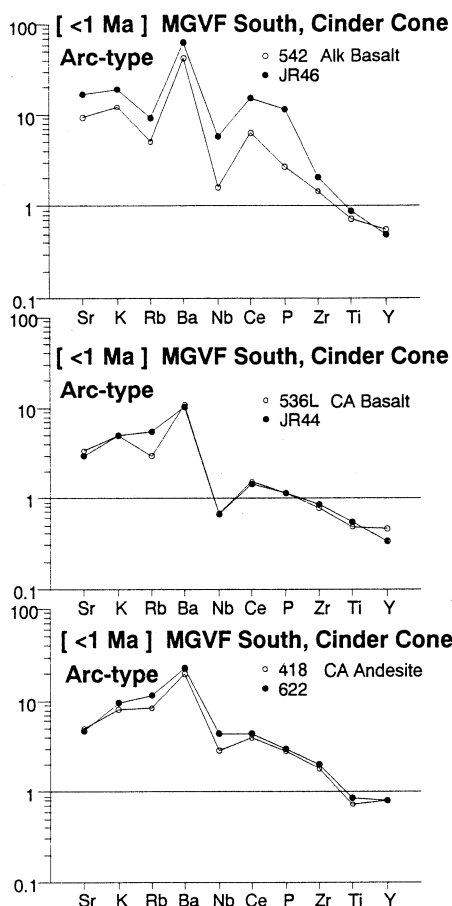


第4図 メキシコ火山帯中央部の各時代区分を代表する火山岩のMORB規格化パターン図。

よりK-Ar年代が得られたものが海溝に近い地域に分布すること³⁾などから、火山活動の場が年代とともに海溝寄りに移動していることが指摘されていたが、今回得られた測定値で、さらに長い年代幅で移動し続けていることが確かめられた。この図の分布から判断して火山活動域の移動は連続的ではなく、ある時期にジャンプしているように見える。

§ 5. 各時代区分に代表的な火山岩の化学組成

これまでに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て光量子放射化分析法で微量元素の定量を行ったメキシコの火山岩試料から、各活動年代区分を代表し得るものを選んで第4図に図示し、年代における火山岩の化学組成の変化をまとめた。



SMOとMVBのマグマの組成の違いが顕著に現れているほか、3 Ma以降にカルクアルカリ岩とアルカリ岩のマグマが同時に活動するようになったこと、両者の微量元素の特徴が似通っており、共通の起源物質を示唆していること、それらとは別に1-3 Maに明らかに微量元素組成の異なる海洋島型マグマ (IOB-type) が活動していることがわかる。

§ 6. まとめ

MVB中央部のラ・オルデーニャ地域の火山岩のK-Ar年代測定を試み、台地溶岩ではほぼ10Maの一致した年代値を得た。これ以外に流紋岩試料でSMO火山帯に相当する25.9Maの年代値、南部のセロ・ゴールドから少し若い7.12Maの年代値を得た。

これまで公表された年代値をコンパイルし、地図にプロットして、15Ma頃に火山分布の方向が変化し、SMOからMVBに移行したこと、MVB形成以来、中央部で火山活動域が年代とともに段

第2表 ラ・オルデーニャ地域の火山岩のK-Ar年代測定値。

KA No	Smp. No	Longitude (100°W)	Latitude (20°N)	K ₂ O (wt.%)	⁴⁰ Ar _{rad} (10 ⁻⁶ m/STP/g)	Atm ⁴⁰ Ar (%)	Age (Ma)	Error (Ma)
2165	1327	7'44''	41'47''	1.87	0.637	23.3	10.5	0.1
2166	1330	9'52''	40'30''	1.13	0.376	74.0	10.3	0.1
2167	1331	2'36''	42'57''	1.52	0.500	20.2	10.2	0.1
2168	1340A	6'45''	35'52''	1.21	0.279	89.1	7.12	0.32
2173	1332	1'34''	41'28''	4.59	3.87	30.4	25.9	0.2
2177	1337	1'08''	40'44''	2.17	0.662	54.5	9.44	0.10

階的に海溝側に移動したことを確認した。

光量子放射化分析にあたり、東北大学原子核理学研究施設の柘本和義博士、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皆様には大変お世話になった。K-Ar年代測定においては地質調査所地殻化学部同位体地質課課長の富樫茂子博士のよきご理解とご助力を得ることができた。東北大学理学部地球物質科学科の青木謙一郎教授、蟹沢聰史教授、藤巻宏和助教授、土谷信高博士には諸般にわたって御助力いただいた。年代測定および化学分析に用いた岩石試料は東北大学とメキシコ国立自治大学の共同研究の際の地質調査で採取したものである。現地調査においてはメキシコ国立自治大学、地球物理学研究所の横山泉客員教授（当時）、Gerald Juarez所長、Jaime Urrutia教授、Hugo Delgado博士に大変お世話になった。渡墨および現地調査には文部省科学研究費補助金、国際学術研究（03041014、代表者、青木謙一郎）を使用した。ここに記して以上の方々に深く感謝する。

参 考 文 献

- 1) J.F. Allan : Geol. Soc. Am. Bull. **97** (1986) 473.
- 2) F.Aumento and N.A. Gutierrez : Comisión Fédéral de Electricidad, Instituto de Geología, U.N.A.M., Internal Rep. (1980) 15.
- 3) M. Ban, T. Hasenaka, H. Delgado-Granados and N. Takaoka : Geofís. Int. **31-4** (1992) 467.
- 4) C.F.E. : Gerencia de Proyectos Geotermoeléctricos, Departamento de Exploración, Morelia, Mich. (1991) 35.
- 5) J.M. Cantagrel and C. Robin : J. Volcanol. Geotherm. Res. **5** (1979) 99.
- 6) H. Delgado-Granados : Doctoral Thesis, Tohoku Univ. (1992)
- 7) A. Demant, R. Movaois and L. Silva-Mora : Comisión Fédéral de Electricidad, Instituto de Geología, U.N.A.M. Internal Rep. (1975)
- 8) P.F. Dobson and G.A. Mahood : J. Volcanol. Geotherm. Res. **25** (1985) 273.
- 9) L. Ferrari, V.H. Garduño, G. Pasquarè and A. Tibaldi : J. Volcanol. Geotherm. Res. **47** (1991) 129.
- 10) C.M.G. Gilbert, Mahood, G. and I.S.E. Carmichael : Geofís. Int. **24-1** (1985) 169.
- 11) T. Hasenaka and I.S.E Carmichael : J. Volcanol. Geotherm. Res. **25** (1985) 105.

- 12) G.P. Murphy and I.S.E. Carmichael : Geol. Soc. Am. Abstr. Prog. **16** (1984)
- 13) R.C. Nichols : Ph.D. Thesis, Univ. Oklahoma (1970)
- 14) O.J. Nieto, A.L. Delgado and P.E. Damon : Asoc. Ing. Min. Met. Geol. Mex. Memoria XIV^o Conv. Nac. (1981) 327.
- 15) G.T. Nixon, A. Demant, R.L. Armstrong and J.E. Harakal : Geofís. Int. **26-1** (1987) 109.
- 16) G. Pasquare, L. Ferrari, V.H. Garduño, A. Tibaldi and L. Vezzoli : Geol. Soc. Am., Map and Chart Ser. **MCH072** (1991) 20.
- 17) J. Rosas-E., J. Urrutia-Fucugauchi and R.F. Maciel : Geotermia, Rev. Mex. Geoenergía **5** (1989) 3.
- 18) J. Spinnler, V.H. Garduño and E. Ceragioli : Geofís. Int. (1994) in press.
- 19) M. Suter, M. Carrillo and M. Lopez : GEOS, Bol. Un. Geofís. Mex. **12-5** (1992) 12.
- 20) S. Vengas, J.J. Herrera and F.R. Maciel : Geofís. Int. **24-1** (1985) 47.
- 21) S.P. Verma, M. Lopez-Martinez and D.J. Terrell : Geofís. Int. **24-1** (1985) 31.
- 22) N.D. Watkins, B.M. Gunn, A.K. Baksi, D. York and J. Ade-Hall : Geol. Soc. Am. Bull. **82** (1971) 1955.
- 23) R. L. Sedlock, F. Ortega-Gutiérrez, and R. C. Speed : Geol. Soc. Am. Spec. Pap. **278** (1993) 153p.
- 24) A. Demant : Revista Inst. Geol. U.N.A.M. **2** (1978) 172.
- 25) J.M. Cantagrel and C. Robin : J. Volcanol. Geotherm. Res. **5** (1979) 99.
- 26) B.M. Gunn and F. Mooser : Bull. Volcanol. **34** (1978) 577.
- 27) A. Ramos S. and S. Flores C. : Primer Congreso Mexicano de Minerología, Convención Evolución Geológica México **1** (1991) 167.
- 28) 松本哲一 : 地質調査所月報 **40** (1989) 65.
- 29) R.H. Steiger and E. Jäger : Earth Planet. Sci. Lett. **36** (1977) 359.
- 30) A. Cox and G. B. Dalrymple : J. Geophys. Res. **72** (1967) 2603.
- 31) L. Ferrari, V.H. Garduño, G. Pasquare, and A. Tibaldi : Geofís. Int. **33-1** (1994) 107.

IV. 加 速 器 ・ 測 定 装 置

V系輸送ビームのデューティ・ファクターの改善

核理研

武藤正勝・今野 収・柴崎義信
玉江忠明・伊藤祥子・篠崎章久
寺沢辰生

§ 1. はじめに

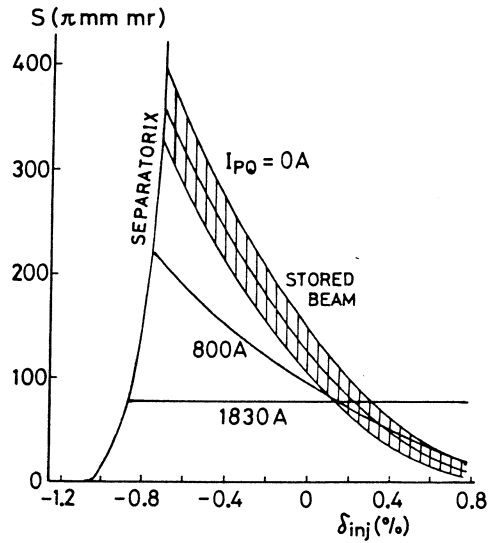
核理研では平成3年度～平成5年度の科研費の補助により、第2実験室と第1実験室を結ぶ新ビーム輸送系（V系）が完成した¹⁾。150MeVパルスビーム・ストレッチャー（SSTR）からの連続電子線をV系を使って第1実験室に導き、主に標識光子による光核反応実験が行われている。

V系完成直後に第1実験室へ輸送したビームの性能を調べた結果²⁾、エミッタンスやビーム強度に問題はないものの、ビームのデューティ・ファクターが50%（SSTRから取り出された直後では約85%）程度に悪化していることが分かった。これはSSTRから取り出されるビームの角度がバースト内で時間に応じて変化し、ビームの一部がV系の途中で消失しているものと考えられる。デューティ・ファクターの悪化は実験の実効時間の減少となり、実験の効率を著しく低下させることになる。そこで、SSTR直後に偏向コイルを置き、ビームに同期した鋸歯状の電流をコイルに流し、V系に入射するビームの角度変化を補正してデューティ・ファクターを改善する実験を行なった。

§ 2. SSTRからのビーム特性

SSTRのパルス四極電磁石（PQ）は、ビームをリングへ効率良く入射させるためと、更に取り出しビームのエネルギー幅やエミッタンスを悪化させないために設置されている。しかし、PQを励磁してビームを入射すると、結合共鳴によってビームが上下に拡がるのが判明し³⁾、それ以来SSTRの運転でPQを使っていない。PQを使わずに入射した場合、エネルギーの低いビームは位相空間で大きな面積を持ち、エネルギーの高いビームは位相空間で小さな面積を持って蓄積される。その様子を第1図に示す。リング内に蓄積されたビームは、シンクロトロン放射によってエネルギーを失い図の左方向へ並行移動し、安定領域と不安定領域のセパトリックスを横切ったビームがリングから取り出される。この図から分かるように、位相空間で

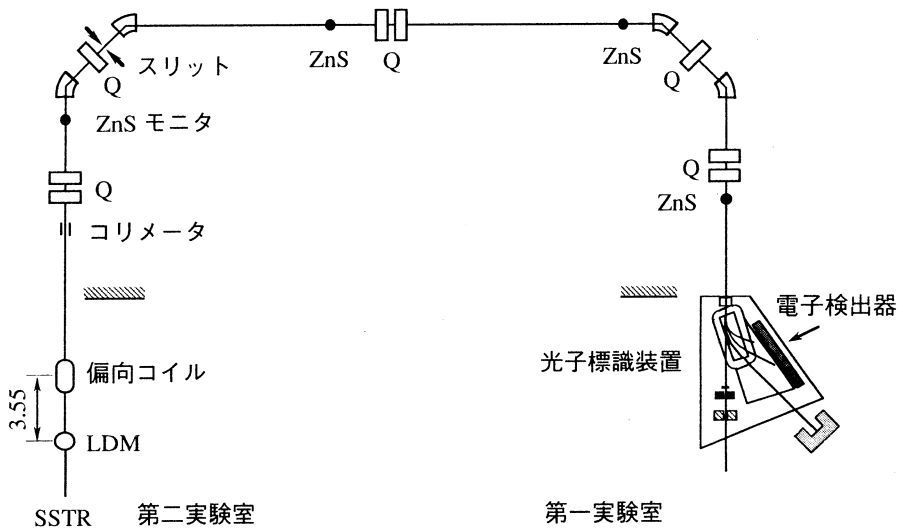
の面積の大きなビームが先に取り出され、時間と共にその面積は小さくなる。このことから、SSTR からV系へ入射されるビームの傾きが、バースト内で時間に応じて変化することになり、このことがデューティ・ファクターを悪化させる原因になっている。V系は全長80mのビームラインで、エミッタンス $\epsilon < 5 \text{ mm} \cdot \text{mrd}$ のビームを輸送する設計になっていて、エミッタンスの大きなビームは第1直線部の中間にあるコリメータ等で取り除かれる。V系が完成する以前は、SSTRの取り出しビームの特性の時間的変化はあまり問題にはならなかったが、V系を使った実験では、デューティ・ファクターの悪化は大きな障害になる。



第1図 入射ビームのエネルギーと位相空間に於けるビームサイズ。PQが励磁されないで、ハッチを引いた範囲にビームが蓄積される。

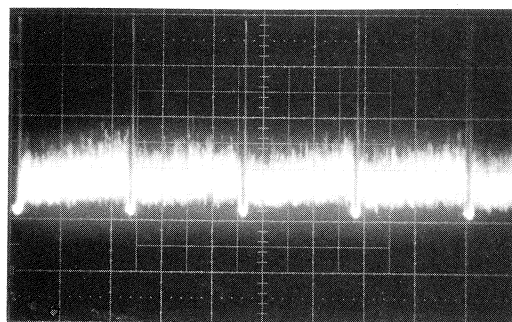
§ 3. 実験と結果

デューティ・ファクターの悪化を改善するため、SSTR直後に偏向コイルを置き、ビームに



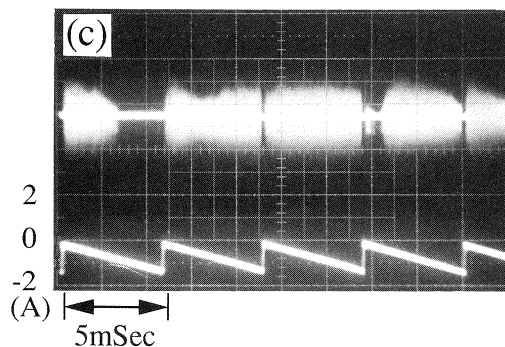
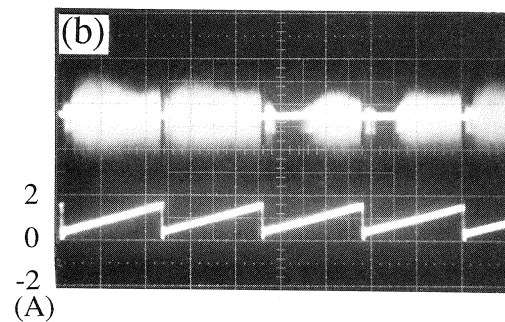
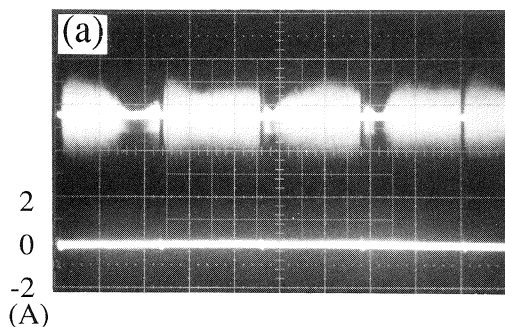
第2図 V系ビームラインの機器構成。

同期した鋸歯状の電流をコイルに流し、V系に入射するビームの角度変化を補正することにした。第2図にV系に設置した偏向コイルの位置を示す。偏向コイルはV系のステアリング・コイルとして使われているものとはほぼ同じで、長さは400mm、幅60mm、巻数25回のコイルをLDM 散乱槽の中心から3.55m 下流の外径60mm のダクトの上下に取付た。この偏向コイルに鋸歯状の電流を取り出しビームに同期して加え、電流の波形を可変しながら第1 実験室へ導かれたビームのデューティ・ファクターを観察した。第3図はシンチレーション・カウンタで観測した取り出しビームの様子で、約85%のデューティ・ファクターが得られている。それに対し、V系を通過して、第1 実験室の光子標識装置で観測したビームの様子は第4図(a)で、この写真からデューティ・ファクターが悪化していることと、更にバースト毎にビームの特性が異なっていることが分かる。偏向コイルに電流を流したのが第4図(b), (c)で、各写真の下のような波形の電流を偏向コイルに加えた。偏向コイルの電源はひとつの波形しか発生できなかつたため、あるバーストに対しては有効に作用していても、他のバーストに対してはデューティ・ファクターをかえって悪くし、全体のデューティ・ファクターの改善にはならなかつたが、偏向コイルを使ってデューティ・ファクターを改善するとい



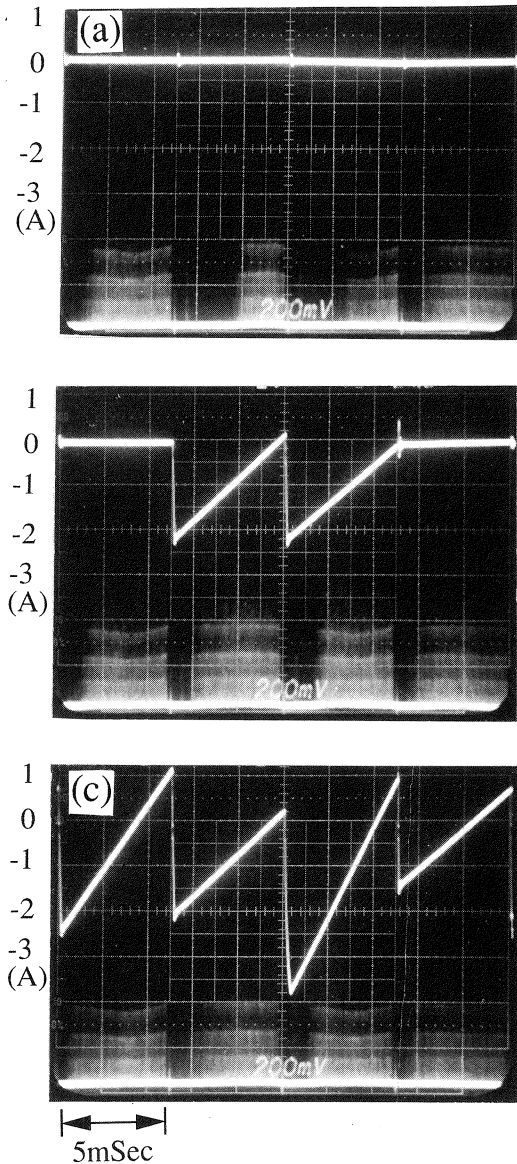
5mSec

第3図 シンチレーション・カウンタで観測したSSTRからの取り出しビーム。



第4図 V系を通過したビーム(上)と偏向コイルの電流波形(下)。

う考え方の有効性は確認できた。バースト毎にビームの特性が異なるのは、ライナックからのビームのスペクトルがパルス毎に変動していることが主な原因である。現在のライナックは商用の電源周波数に同期して運転しているが、ビームに50Hzの成分が残り、そのことが300ppsで運転したときは6種類、200ppsでは4種類の特性を持ったビームを作っている。今回の実験は200ppsで行なったので、ビームは第4図(a)に示されている左から4つの連続したバーストの繰り返しであることを確認した。そこで、個々のバーストのビーム特性に応じて可変できる電流波形を作り、それを偏向コイルに加えてテストすることにし、300ppsで運転したときは6種類、200ppsでは4種類の電流波形を発生する電源を製作した。第5図に改良した電源を使ったときの測定結果を示す。各写真の上が偏向コイルの電流波形で、下が光子標識装置のシンチレーション・カウンタで観測したビームである。第5図(c)は、ほぼ最良な状態に調整したときの様子で、各バーストでビームが均一になっているのが観測できた。

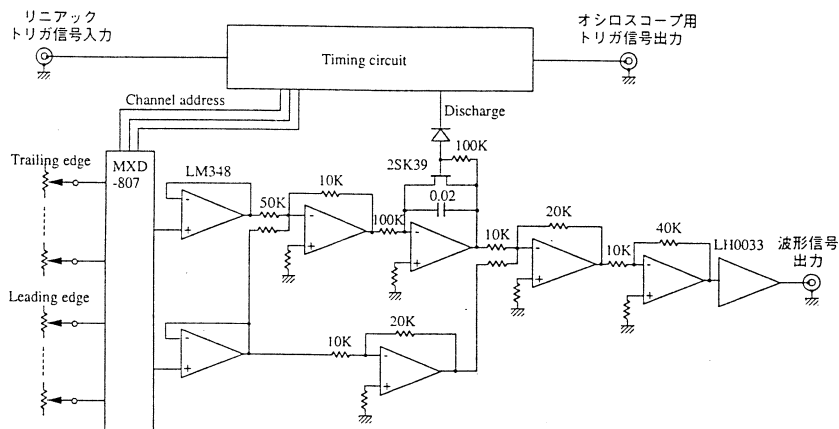


第5図 V系を通過したビーム（下）とマルチ波形発生装置を使った偏向コイルの電流波形（上）。

§ 4. 偏向コイル電源回路

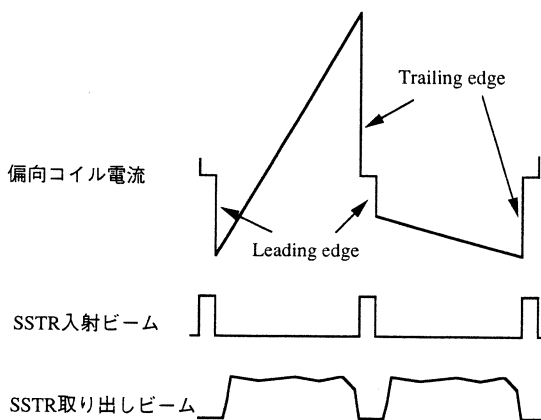
電源は最大6パターンの電流波形を作り出す波形発生装置と、偏向コイルを駆動するパワーアンプで構成される。

波形発生装置の回路図を第6図に示す。装置は12個のヘリポット（ヘリカル・ポテンションメータ）、波形を作るアナログ演算回路、タイミングを制御するデジタル回路から成る。第



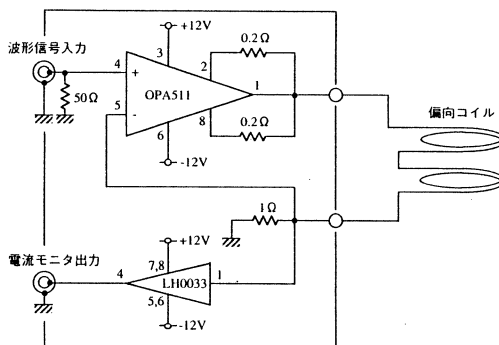
第6図 波形発生装置の回路図。

7図のように、各偏向コイルの波形の Leading edge 及び Trailing edge の振幅は各波形毎に独立に変えられるようになっている。可変範囲は偏向コイルの電流で±4 (A)である。ライナックからのトリガ信号で、Leading edge 及び Trailing edge の電流振幅を与えるヘリポットが順次切り替わり、それぞれのバーストのビーム特性に合った電流波形が作れるようになっている。



第7図 偏向コイルの電流波形とビームのタイミング。

パワーアンプの回路図を第8図に示す。回路はハイパワー・オペアンプを使って、定電流回路を構成している。偏向コイルに供給される電流波形は、バッファ・アンプを介して第1測定室に送られ、デュティ・モニタ用の信号と一緒にオシロスコープ上に表示される。



第8図 パワー・アンプの回路図。

§ 5. まとめ

実験に先立って単一波形の電源を作った

が、先に述べたようにデューティ・ファクターの改善にはならず、マルチ波形を発生させる電源を急遽作ることになった。このため十分なデータを取る時間的な余裕が無かったのが残念である。しかし、この方式の有効性は確認でき、一応満足できる結果を得ることができた。

参 考 文 献

- 1) H. Itoh *et al.* : Proc. 17th Liner Accelerator Meeting in Japan, Sendai, *Sept.* (1992) 228.
- 2) S. Ito *et al.* : Proc. 18th Liner Accelerator Meeting in Japan, Tsukuba, *July* (1993) 383.
- 3) T. Tamae *et al.* : Nucl. Instrum. Meth. **A264** (1988) 173.

Outgassing Characteristics and Surface Analysis of Pure Aluminum Plates Following Electron-Beam Irradiation

Tsutomu Ohi and Osamu Konno

Superconducting and Cryogenic Technology Centre, Kobe Steel Ltd.

1-5-5 Takatsukadai, Nishi ku, Kobe 651-22 Japan

Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University

1-2-1 Mikamine Taihaku ku, Sendai 982 Japan

In order to develop aluminum with suitable surface properties for use in beam lines and scattering chambers, where ultrahigh vacuum is required, tests were carried out on aluminum samples with two different surface preparations. For one sample (specimen N) the surface was milled with a diamond cutter whilst in an atmosphere of dry nitrogen; for the other (specimen EP), the surface was electro-polished.

The surface properties and the outgassing of each sample were studied, after the samples had been irradiated with a flux of 60 MeV electrons. The outgassing from specimen N was found to be the lower. The surface composition was studied using X-ray Photo-Electron Spectroscopy (XPS), and indicated that the surface hydration of specimen N was lower than for specimen EP; this was true both before and after irradiation. It is shown that before irradiation, both specimens had surface layers of a mixture of $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$; after irradiation the surface of specimen N contained only $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ whilst the surface of specimen EP contained a mixture of $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$. Not only does the proportion of $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$ on the surface change after irradiation, but so does the thickness of the hydroxide layer.

The dissociation of water from the hydroxide layer by the electron beam irradiation would appear to be a significant source of gas desorption. Thus the indications are that surface preparation as with specimen N (machining in dry nitrogen) is preferable if the aluminum is to be used in a high-vacuum situation.

§1. Introduction

In a high-radiation situation such as might exist in the beam-lines of an electron linear accelerator, the high radiation level might cause problems. For example, electrons scattered from the energy analysing slit may hit the beam duct and cause a number of possible problems including a rise in the pressure in the local area, cracking of welds, corrosion of water pipes and induced activity in the beam duct. Material used for beam transport ducting, must have good thermal conductivity, and a low propensity for induced activity, but because of the vacuum requirements, it must also have a low electron-induced desorption yield. Aluminum meets the first two requirements, and it is the purpose of this paper to investigate the desorption characteristics.

Energy loss by electrons in matter depends on the density of the material and the energy of the electrons. For low-energy electrons (several hundred keV) the energy is lost in the surface layer. At higher energy (~ 30 MeV) the electron produces many secondary electrons and X-rays as it interacts with the material. In studies of desorption characteristics using low-energy electrons^{1,2}, traces of H₂, CO, CO₂ and CH₄ were found, whilst Konno and Ohi³, using electrons with energies of several MeV found traces of H₂O as well.

Since the thickness of the surface oxide layer determines the gas desorption, it is important in high-vacuum applications to have this surface layer as thin as possible; so that surface treatment methods that produce thin surfaces must be studied. In addition where the material is to be used in a high-vacuum situation, it is necessary to know the rate at which electron irradiation induces desorption. In a previous study³ the present authors studied desorption in two samples of A6063-T5 aluminum alloy which were differently surface treated. When irradiated in a high-vacuum system with a 30-MeV electron beam, the partial pressures of CO, CO₂ and H₂O for the sample that had been extruded in air were greater than those for the sample that had been extruded in a dry nitrogen atmosphere. The oxide layer was also thicker.

In the conclusions to the work of ref. 3, the question was raised as to whether the humidity was the same in the atmospheres in which the samples were extruded, and whether this could have affected the results. An additional complication was the

presence of magnesium as an impurity in the aluminum sample. For these reasons the present study uses very pure (99.99%) aluminum plate to study the effect of the humidity of the atmosphere during the surface treatment, on the surface-layer composition. The change in this composition as a result of electron irradiation is also studied.

§2. Experimental Procedures

2.1 Specimens

Each specimen had dimensions 30x40x1 mm. The electron beam was incident normal to the surface, passing through the 1 mm thickness. The scattering of electrons in this thickness of aluminum is such that essentially all the emerging electrons will exit the scattering chamber via the thin titanium foil (50 μm) window. They will not hit the walls of the chamber so that any observed outgassing may be assumed to be due to energy loss in the sample rather than the chamber (see ref. 3 for more detailed discussion)

The surfaces of the two aluminum plates were polished using two different methods:
Specimen N Cut with a diamond cutter in a dry nitrogen atmosphere with a dew point below 200K, then degreased in an ultrasonic acetone bath.

Specimen EP Electropolished for 3 minutes at room temperature, in a solution of 20% perchloric acid and 80% ethyl alcohol by volume, using a current density of 2500 A m^{-2} supplied at 15 V. This gave a surface depletion rate of approximately 30 \AA per minute. The sample was then rinsed in distilled water and dried in dry nitrogen gas.

2.2 Radiation procedure

The same aluminum vacuum chamber was used as in the previous experiment (ref. 3). It was outgassed for 24 hours at a temperature of 423 K to produce an ultimate pressure of 6.7×10^{-8} Pa. After this the samples were mounted in the chamber on a water-cooled actuator, after which the system was again baked for 24 hours at 423 K.

Each specimen was irradiated with a 10-mm-diameter beam of 60-MeV electrons at a current of 55 μA for one hour; there was a 30 min. period of no beam between irradiations. The cycle of irradiation was: no specimen, specimen N, specimen EP,

specimen N, specimen EP. In order to measure the temperature, a type K thermocouple was fitted 15 mm away from the centre of each sample.

2.3 Outgassing and partial-pressure measurement

The outgassing rate was measured using the throughput method; the conductance of the orifice was calculated to be 2.9ls^{-1} for nitrogen gas. Bayard-Alpert gauges were used to measure the total pressure, and in deducing the outgassing rate the total surface area of the specimens was used.

The partial pressure of the outgassing components was measured using a quadrupole mass spectrometer, which had been previously calibrated with a mixture of H_2 , N_2 , Ar^1 , Kr and Xe . The total and partial pressures were simultaneously recorded using a computer system.

2.4 Surface analysis

Surface analysis, using X-ray Photo-Electron Spectroscopy (XPS), was done in order to investigate the effect of the electron-beam irradiation on the composition and thickness of the surface layer of oxide and hydroxide. The XPS method is non-destructive, and provides a mean value of not only the surface thickness, but a quantitative analysis of its components.

After irradiation each sample was transported to the XPS instrument in a sealed container with silica gel. The XPS spectra were taken using a Pekin-Elmer PHI-5400 photo-electron spectrometer set to a pass energy of 40 eV, and used at a pressure of 10^{-8} Pa. The X-ray radiation was the 1253.6 eV MgK_α line, and the operating power was 400 W. All the binding energy values were referenced to the $2p$ peak at 73eV in Al metal.

The relation between the molar concentration of oxygen (N_{O}) to that of Al^{3+} ions ($N_{\text{Al}^{3+}}$) in the surface layer is simply related to the measured elemental components as recorded in the areas of the oxygen (I_{O}) and Al^{3+} ($I_{\text{Al}^{3+}}$) spectral peak envelopes, by the formula⁴⁾:

$$N_{\text{O}}/N_{\text{Al}^{3+}} = I_{\text{O}}/I_{\text{Al}^{3+}} \alpha_{\text{Al}}/\alpha_{\text{O}} \quad (1)$$

In the above equation α_{Al} and α_{O} are the elemental sensitivities for Al and O, and have the values 0.234 and 0.711 respectively for the instrument used in the

measurement. The values of I_O and $I_{Al^{3+}}$ were obtained by fitting Gaussians to the spectral data. As a test of the analysing equipment the ratio of molar concentrations $N_O/N_{Al^{3+}}$ were determined using Eq. (1) from experimental measurements for pure Al_2O_3 , $Al_2O_3(H_2O)$ and $Al_2O_3 \cdot 3(H_2O)$. The results were consistent with the theoretical values of 1.5, 2 and 3 respectively, and are listed in Table 1.

Table 1 Quantitative analysis of $Al_2O_3(H_2O)$ and $Al_2O_3 \cdot 3(H_2O)$

Photoelectron	Peak Area (eV. cps)	Elemental Sensitivity Factor	$N_O/N_{Al^{3+}}$
Al_2O_3			
O 1s	77662	0.711	1.57
Al 2p-oxide	16235	0.234	
$Al_2O_3 \cdot 3H_2O$			
O 1s	88665	0.711	3.03
Al 2p-oxide	9635	0.234	

The approximate thickness of the surface layer was determined from the Al 2p spectrum. When the surface layer is relatively thin, the spectrum consists of contributions from the oxide, hydroxide and the underlying metal. The thickness in nm, t , can be obtained from the formula⁴⁾:

$$t = \lambda \ln(1 + I_{Al^{3+}}/I_{Al}) \cdot (N_{Al}/N_{Al^{3+}}) \quad (2)$$

where λ is the inelastic mean free path of the 2p electron (in nm), and the other symbols are defined as for Eq. 1. The term $N_{Al}/N_{Al^{3+}}$ can be expressed in terms of the densities of Al (ρ_{Al}) and the oxide layer (ρ_{oxide}):

$$N_{Al}/N_{Al^{3+}} = (\rho_{Al}/(k \rho_{oxide})) \quad (3)$$

where k is the fraction of Al^{3+} in the oxide layer.

The term λ is given⁵⁾ as:

$$\ln(10 \lambda / \sin(\theta)) = 0.1196(\ln E_k)^2 - 0.932 \ln E_k + 3.65 \quad (4)$$

where θ is the viewing angle of the spectrometer (45° in this case), and E_k is the kinetic energy of the photoelectrons.

§3. Results and discussions

3.1 Gas desorption

1. Outgassing rate

The measured outgassing rate per unit electron beam current as a function of time in the irradiation cycle is shown in Fig. 1. During these measurements the temperature registered by the thermocouple was about 300 K. The data labelled C in Fig. 1 was obtained with the electron beam passing through the chamber without either specimen in the path. This outgassing rate of $7.6 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\mu\text{A}^{-1}$ provides a reference.

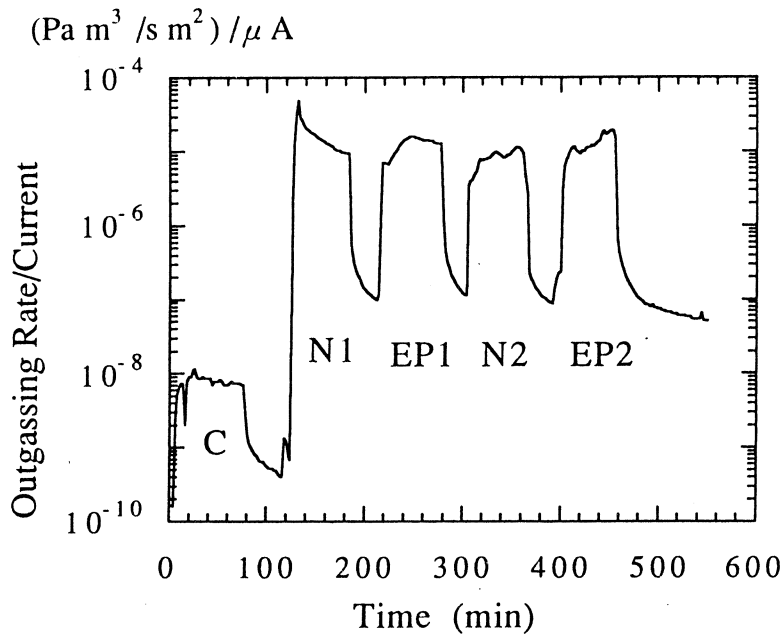


Fig. 1 Outgassing rate as a function of irradiation time for the two specimens N and EP.

(see text)

The initial outgassing rate of $4.9 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\mu\text{A}^{-1}$ was measured immediately after the start of first of irradiation on specimen N (N1 in Fig 1), and might be due to the surface roughness of specimen N. It decreased gradually to $8 \times 10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\mu\text{A}^{-1}$. In the second irradiation of specimen N (N₂ in Fig.1) a similar high outgassing rate was not observed, and the mean value was $9.7 \times 10^{-6} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\mu\text{A}^{-1}$.

No such similarly high outgassing rate was observed for the initial irradiation of specimen EP; the mean outgassing rate was $1.5 \times 10^{-5} \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\mu\text{A}^{-1}$ (EP1 in Fig.1)

This was possibly because the surface was smoother than that of specimen N. In the second irradiation the outgassing rate per current decreased to $1.2 \times 10^{-5} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \mu\text{A}^{-1}$ (EP2 in Fig.1). The mean outgassing rate of specimen EP was larger than that of specimen N.

2. Partial pressure

The result for the measurement of the partial pressures is shown in Fig.2. Immediately after the start of the electron beam irradiation on specimen N, (N1 in Fig.2) the partial pressures of H_2 , H_2O , CO, and CO_2 were all larger than those of specimen EP, and their values decreased rapidly. This tendency is consistent with the behaviour of the outgassing rate shown in Fig.1. Comparing the mean partial pressures averaged over both irradiations for specimen N and specimen EP, the mean partial pressures for specimen EP are a little larger than those for specimen N. This observation is consistent with the outgassing rate shown in Fig. 1.

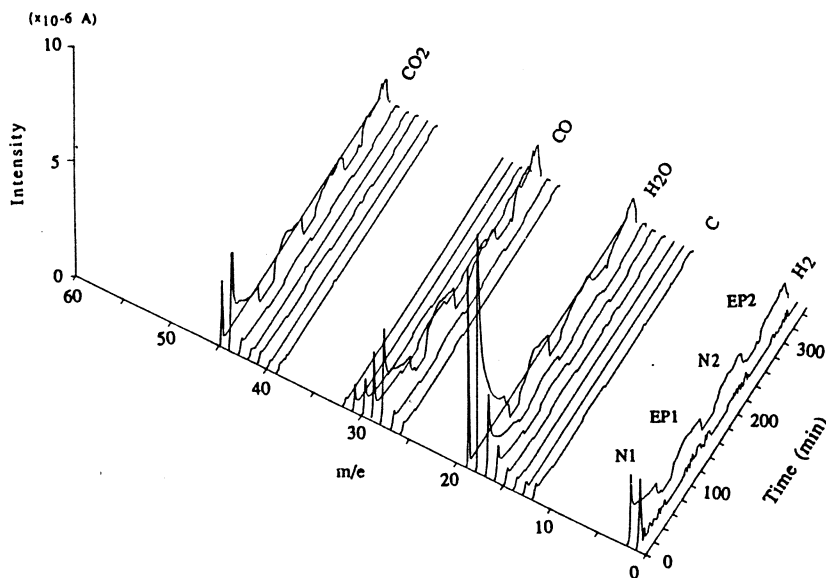


Fig. 2 The partial Pressure as a function of irradiation time for the two specimens N and EP.

3.2 Surface analysis

The XPS spectra taken before and after irradiation are shown in Fig. 3 and Fig. 4 respectively. Figs. 5 and 6 show the Al $2p$ spectra before and after irradiation. Two distinct peaks are observed in each of the Al $2p$ spectra. The small peak at 73 eV is

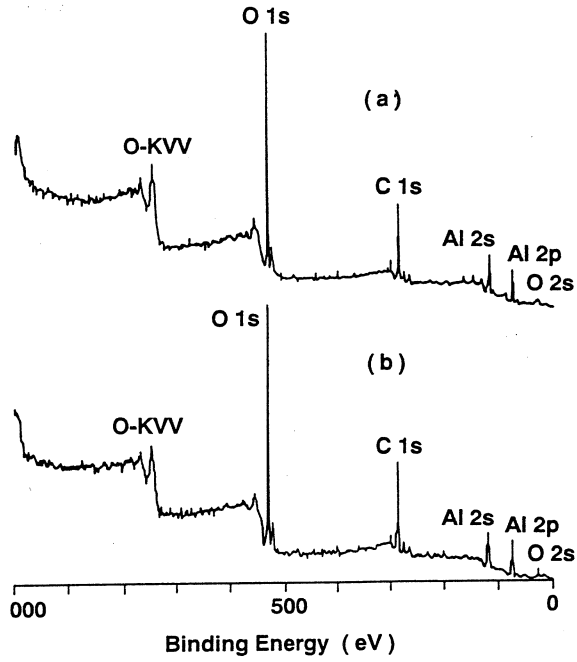


Fig. 3 The XPS spectra of the surface of the pure aluminum plate before electron beam irradiation. (a) for specimen N, (b) for specimen EP.

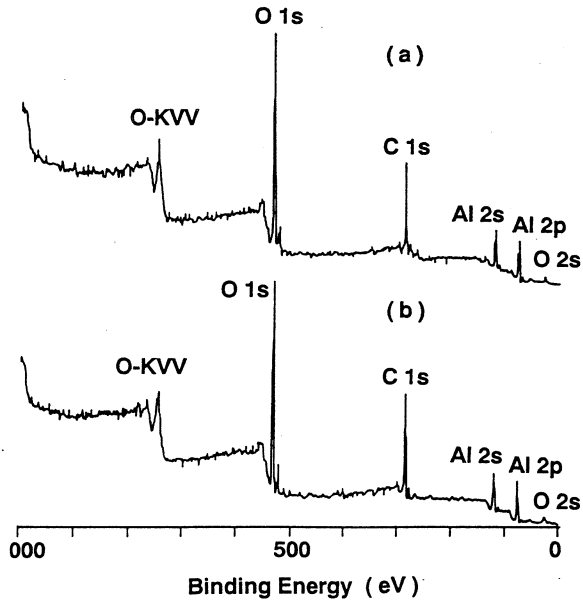


Fig. 4 The XPS spectra of the surface of the pure aluminum plate after electron beam irradiation. (a) for specimen N, (b) for specimen EP.

characteristic of aluminum metal, and the main peak at 76 eV is characteristic of aluminum oxide or hydroxide.

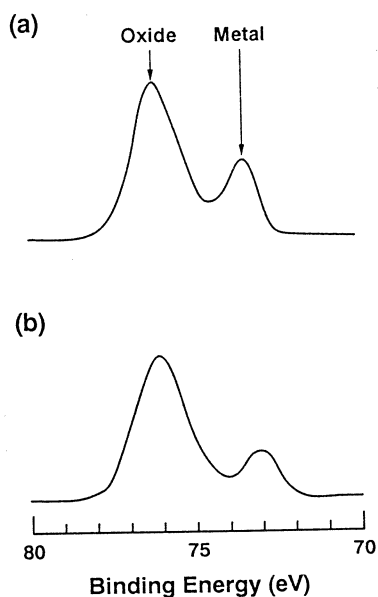


Fig. 5 Al 2p spectra before electron beam irradiation (a) for specimen N, (b) for specimen EP.

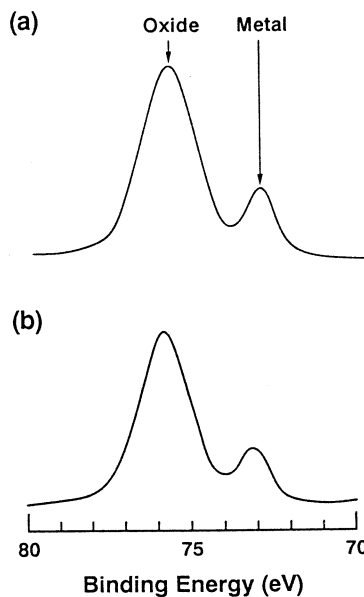


Fig. 6 Al 2p spectra after electron beam irradiation (a) for specimen N, (b) for specimen EP.

The O 1s peak before (Fig.7) and after irradiation (Fig.8), was deconvoluted into two components, corresponding to aluminum oxide and aluminum hydroxide. The binding energies of the two deconvoluted spectra are 531.3 and 532.7 eV for specimen N, and 530.8 and 532.6 eV for specimen EP before irradiation. After irradiation these binding energies are 531 and 532.8 eV for specimen N, and 531 and 532.2 eV for specimen EP. The aluminum hydroxide content of specimen EP is higher than that of specimen N both before and after irradiation. The peak intensity corresponding to aluminum hydroxide decreases, and that corresponding to aluminum oxide increases in both specimen N and specimen EP as a result of electron irradiation.

The oxide film formed on the aluminum consists of two layers⁶⁾: a compact layer of oxide adjacent to the metal, and an outer layer of porous hydroxide covering this. Since the outer layer of porous hydroxide is probably formed from the compact layer

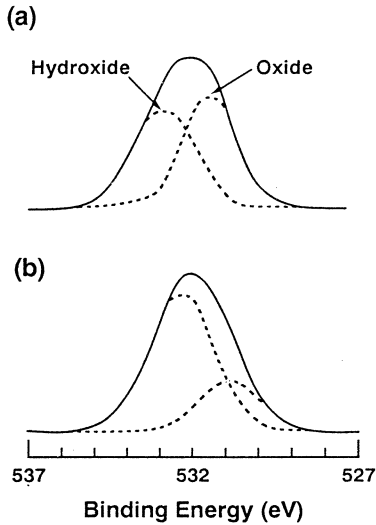


Fig. 7 O $1s$ spectra before electron beam irradiation (a) for specimen N, (b) for specimen EP.

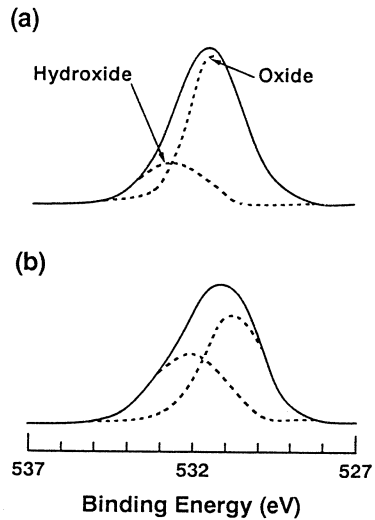


Fig. 8 O $1s$ spectra after electron beam irradiation (a) for specimen N, (b) for specimen EP.

of oxide by hydration, it follows that a film formed in a moist atmosphere contains an appreciable amount of water⁷⁾. Considering this and the strength of the deconvoluted O $1s$ peak before and after irradiation shown in Fig. 7 and Fig. 8, the extent of surface hydration of specimen EP is higher than that of specimen N.

Using Eq. 1 the ratios $N_{\text{O}}/N_{\text{Al}^{3+}}$ before irradiation were 2.22 for specimen N and 2.51 for specimen EP. The ratios $N_{\text{O}}/N_{\text{Al}^{3+}}$ after irradiation were 1.96 for specimen N and 2.23 for specimen EP. As mentioned above the value of $N_{\text{O}}/N_{\text{Al}^{3+}}$ for $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ is 2, and 3 for $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$. Comparing the experimental values for these ratios, with the known values corresponding to $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$, the outermost surfaces of both specimen N and specimen EP before irradiation were covered with a mixture of $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$. On the other hand, the outermost surface of specimen N was covered with $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and that of specimen EP was covered with the mixture of $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$ after irradiation. From the obtained value, the proportion of $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$ in the surface layer of specimen EP is higher than in the surface layer of specimen N. In both cases the proportion of $\text{Al}_2\text{O}_3\cdot 3(\text{H}_2\text{O})$ decreases after electron irradiation.

Using the known densities of $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3(\text{H}_2\text{O})^9$, and considering the surface of each specimen to be a known mixture of $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{H}_2\text{O})$ and $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3(\text{H}_2\text{O})$, k and the density of the oxide surface layer were determined from Eq. 3. The estimated value of δ using Eq.4 is 1.48 nm. Hence, the thickness of surface oxide layer of before irradiation was determined to be 3.2 nm for specimen N and 5.1 nm for specimen EP. After irradiation the thickness of the surface layer was determined to be 2.8 nm for specimen N and 4.3 nm for specimen EP.

The decrease in the size of the aluminium hydroxide peak, the increase of the oxide peak as shown in Fig. 7 and Fig .8, and the decrease of surface oxide layer thickness may indicate a decrease of aluminium hydroxide content, and an increase of aluminium oxide content in the surface layer as a result of electron irradiation. Namely, H_2O contained within the aluminium hydroxide may be dissociated by electron beam irradiation and released into the vacuum. Thus aluminium hydroxide in the surface oxide layer is a source of gas desorption due to electron beam irradiation. The differences in the outgassing rate, the extent of surface hydration, and the oxide layer thickness between specimen N and specimen EP are caused by the different humidity conditions during the specimens' surface treatment.

The electropolished aluminium was in contact with water to a greater extent than the specimen that was cut in dry atmosphere. Namely, the extent of surface hydration of the electropolished aluminium is greater than that of the aluminium cut in dry atmosphere.

In a previous measurement⁹ the outgassing rate of an aluminium vacuum chamber of size 540 mm x 540 mm x 520 mm, cut in dry nitrogen was $1.5 \times 10^{-10} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ after baking for 24 hours at 423 K. On the other hand, the outgassing rate of an electropolished aluminium vacuum chamber of the same size after similar baking, was $1 \times 10^{-9} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$: for a large aluminium chamber there is a significant difference in the outgassing rate between one cut in a dry atmosphere and an electropolished one. Thus for an aluminium chamber that is to be used in high vacuum where electron irradiation is likely, it is important to prepare the surface in dry nitrogen.

§ 4 Summary

The outgassing rate, and the thickness and composition of the surface oxide layer of pure aluminum plates irradiated with 60 MeV electrons have been investigated in order to develop a surface-treatment method for aluminum to be used in high-vacuum applications associated with electron accelerators.

The tests show that the surface layer contains aluminum hydroxide; the amount of this is less in the surface prepared in a dry nitrogen atmosphere. In both specimens the amount of aluminum hydroxide on the surface decreases with the length of irradiation.

From the tests it seems that H_2O may be dissociated from the aluminum hydroxide by the electron irradiation, and released into the vacuum. Thus aluminum hydroxide in the surface layer is probably a source of gas desorption when irradiated with an electron beam.

The results indicate that for aluminum that is to be used in high-vacuum applications, the surface should be prepared in a dry nitrogen atmosphere.

Acknowledgements

The authors would like to thank Prof. M. N. Thompson of Melbourne University, Prof. T. Saito and Dr. K. Matsumoto for their valuable comments and advice. They also thank the operation staff of the electron linac for their diligence.

References

- 1) A. G. Mathewson, J. P. Bacher, K. Booth, R. S. Calder, G. Dominichini, A. Grillot, N. Hilleret, D. Latorre, F. LeNormand and W. Unterlerchner: *J. Vac. Sci. Technol.* A7 (1989) 77.
- 2) Marie-Helene Achard, R. Calder and A. Mathewson: *Vacuum* 29 (1978) 53.
- 3) O. Konno and T. Ohi: *J. Vac. & Sci. Tech. A* 9 (1991) 3134
- 4) M. P. Seah: *Practical Surface Analysis by Auger and X-ray Photoelectron Spectroscopy*, ed. D. Briggs and M. P. Seah (John Wiley & Sons 1990), Chap. 5 pp. 244.

- 5) C. R. Brundle: *J. Vac. & Sci. Tech.* **11** (1974) 212.
- 6) M. S. Hunter and P. Fowle: *J. Electro. Soc.* **103** (1956) 482.
- 7) F. Kellwe and J. D. Edwards: *Metal Progr.* **54** (1948) 195.
- 8) D. Pape'e and R. Tertian: *Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology*, ed. H. F. Mark, J. J. McKetta Jr., and D. F. Othmer (John Wiley & Sons, 1963), Vol 2, p. 41.
- 9) T. Ohi, Y. Muroo and O. Konno: *J. Vac. Soc. Jpn.* **33** (1990) 514.

水晶からのコヒーレントなチェレンコフ放射

科研, 工学部応用物理* 核理研**,

高橋俊晴・柴田行男・伊師君弘

長谷部茂・蔦谷 勉・大坂俊明

池沢幹彦・近藤泰洋*・鈴木吉朗*

下山克彦*・中里俊晴**

小山田正幸**・浦澤茂一**

山川達也**

§ 1. 序 論

これまでの短パルス電子ビームによるコヒーレントな放射の発生の研究の過程で, コヒーレント放射光^{1,2)}, コヒーレント遷移放射³⁾の基礎的性質が明らかにされた。

コヒーレントなチェレンコフ放射の研究は, 誘電媒質としてガスを用いた実験から始まった⁴⁾。この実験におけるミリ波領域と可視領域の測定結果から, 次のことが明らかになった。チェレンコフ放射の発生メカニズムには形成層の長さ L_f が関与しており, 一般に言われているような電子の速度 ($v = \beta c$) と媒質の屈折率 (n) に関するチェレンコフ条件 $\beta n > 1$ 以外に, 電子の飛程すなわち媒質の長さ (L) に関する条件 $L \geq L_f$ を新たに加えなければならないということである。

電子の軌道と角度 θ を成す方向に伝播する波長 λ の光に対する形成層の長さ L_f は次式で与えられる⁴⁾。

$$L_f = \frac{\beta \lambda}{|1 - \beta n \cos \theta|} \quad (1)$$

ヘリウムガスでは, 屈折率が1に非常に近い ($n=1.000035$) ので, ミリ波領域での形成層の長さ L_f は数十メートルと大きく, また可視領域では L_f が10mm 程度である。そのため, $L \sim 150\text{mm}$ に対して, $L \ll L_f$ と $L \gg L_f$ の場合しか調べることができなかった。それに対して水晶 ($n=2.1$) やテフロン ($n=1.4$) の場合には, 数センチから数十センチの長さの媒質を用意すれば, 新しい条件 $L \geq L_f$ を満足し始める長さ ($L \sim L_f$) の近傍での振る舞いを, ミリ波領域において調べることが可能である。

チェレンコフ放射の強度は, 単位立体角, 単位波長当りの光子数で表わすと次の式で与えられる⁵⁾。

$$\frac{d^2 P_0}{d\Omega d\lambda} = \frac{\alpha n}{\lambda} \left(\frac{L}{\lambda}\right)^2 \left(\frac{\sin X(\lambda, \theta)}{X(\lambda, \theta)}\right)^2 \sin^2 \theta \quad (2)$$

$$X(\lambda, \theta) = \frac{\pi L}{\beta \lambda} (1 - \beta n \cos \theta), \quad (3)$$

ここで、 α は微細構造定数である。さらに、第(1)式の L_f を用いると

$$\frac{d^2 P_0}{d\Omega d\lambda} = \frac{\alpha n}{\lambda} \left(\frac{L_f}{\lambda}\right)^2 \left(\frac{\sin(\pi L/L_f)}{\pi L/L_f}\right)^2 \sin^2 \theta \quad (4)$$

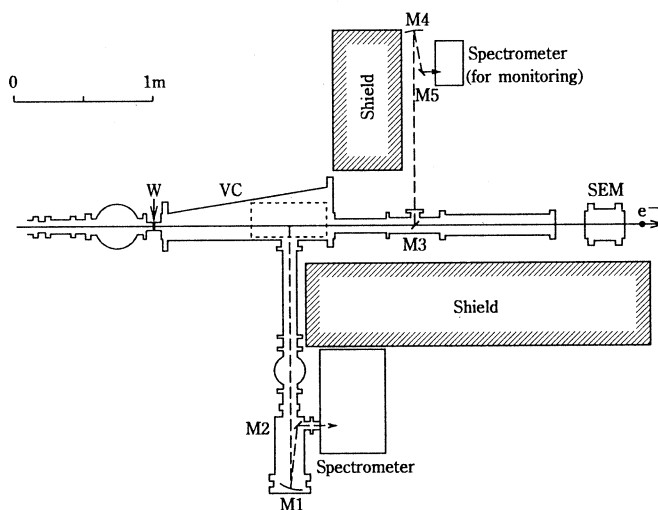
のように書ける。従って、 $L > L_f$ では $P_0 \propto L$ 、また $L < L_f$ では $P_0 \propto L^2$ のような振る舞いを示すはずである。

前回の実験では⁶⁾、長さ100mmのテフロン ($n=1.4$) の中心孔に電子ビームを通したときに発生する光を観測し、それがコヒーレントなチェレンコフ放射であることを初めて確認した。しかし、媒質の長さを変えての系統的な測定に至らなかった。

本研究では、誘電媒質としてサイズの異なる3種類の結晶水晶を用い、コヒーレントなチェレンコフ放射の角分布、偏光度、スペクトル、電流依存性を測定する。また、水晶の長さとの放射強度の関係から、形成層の効果を調べる。

§ 2. 実験方法

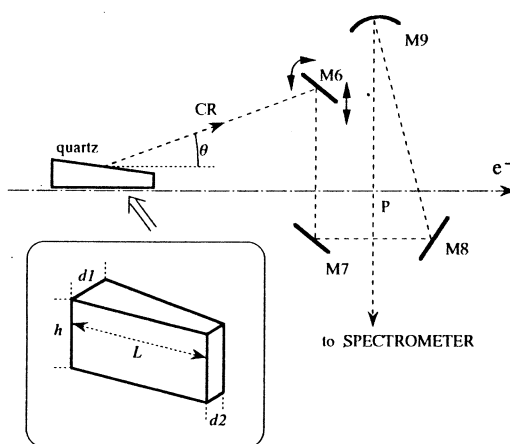
測定系の配置を第1図に示す。ライナックのビームトランスポート系と真空容器 (VC) と



第1図 測定系の配置図。記号はそれぞれ以下のものを表す。
CV, 真空容器; W, チタン箔窓; M2, M3, M5, 平面鏡; M1, M4, 球面鏡; SEM, 二次電子放出モニター; e^- , 電子ビーム。

は、厚さ $50\mu\text{m}$ のチタン箔(W)で区切られており、真空容器内の真空度は約 1 Pa である。真空容器内で放射された光は、 70mrad の受光角を持つ集光鏡(M1)で集光され、回折格子型遠赤外分光器に導かれる。検出器は液体ヘリウム温度に冷却されたシリコンボロメーターであり、出力信号はロックインアンプにより増幅される。また、測定された光の強度は、 1200 K の黒体放射の強度を用いて較正された。

真空容器内の拡大図を第2図に示す。電子ビームの中心が、水晶の表面から 5 mm 離れた位置を通るようにセットした。水晶は、挿入図に示されているような形に形成し、第1表に挙げてある3種類を用意した。結晶水晶は単軸結晶であり、ミリ波、サブミリ波領域では常光線に対する屈折率が $n(O) = 2.11$ 、異常光線に対しては $n(E) = 2.15$ である⁷⁾。本実験では方位を無視して成形してあるので、屈折率は $n = 2.1$ として計算する。ビーム側とは反対の表面には 5.7° のテーパーが付いている。理由は、 150 MeV の電子と水晶に対するチェレンコフ角($\theta_c = \cos^{-1}(1/\beta n)$)が 62° であ



第2図 真空容器(第1図VC)内の拡大図。M6, M7, M8, 平面鏡; M9, 球面鏡; e^- , 電子ビーム。角度 θ は電子ビームに対する角度であり、チェレンコフ放射(CR)の角分布は平面鏡(M6)を移動、回転することにより測定する。

第1表 実験に使用した水晶のサイズ。

L (mm)	$d1$ (mm)	$d2$ (mm)	h (mm)
60	15	9	40
40	13.2	9.2	40
20	9.4	7.4	40

り、テーパーがなければ光が全反射して外部に取り出せないからである。この水晶から放射されるチェレンコフ放射は、水平面内では平行光束と考えられるから、集光鏡(M9)により点Pに集光されてから分光器側へ導かれるような光学系になっている。角分布は平面鏡(M6)を移動することにより測定できる。角度 θ は電子ビームの方向に対する角度であり、 $15^\circ \sim 35^\circ$ の範囲を測定できる。

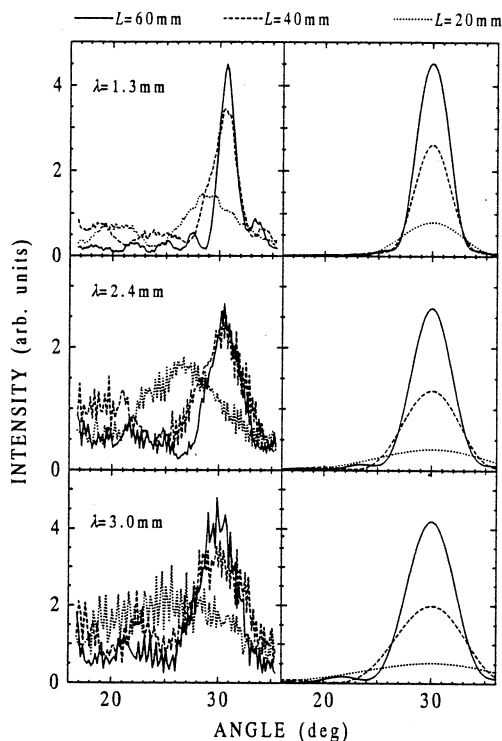
ライナックの運転条件は、加速エネルギー (E) 150MeV、エネルギー幅 ($\Delta E/E$) 0.5%、パルス幅 $2 \mu s$ 、パルスの繰り返し周波数300 Hzである。繰り返しパルスはさらに75 Hzの周期でON-OFFされるため、1秒間のパルス数は150である。この75Hzの信号はロックインアンプの同期信号として使用される。平均ビーム電流は二次電子放出モニター (SEM) で測定され、およそ $1 \mu A$ であった。この電流に対応するバンチ内電子数は 7.2×10^6 である。また、電子ビームの横方向のサイズは約7 mmであった。これは、水晶の位置から約20cm上流のビームポジションモニターをテレビカメラで撮影し、測定した。

ビーム電流の時間変動による光強度の変化は、下流のアルミ蒸着膜 (M3) からの遷移放射を用いて補正した。このモニター用の光は波長1.25mmであり、小型の遠赤外分光器で分光されシリコンボロメーターで検出される。

§ 3. 結果と考察

3.1 角分布

150MeVの電子と水晶 ($n=2.1$) に対するチェレンコフ角は 62° である。これを 5.7° のテーパーがついた表面から取り出す場合、屈折のために $\theta=30^\circ$ (第2図の角度 θ) がチェレンコフ角に相当する角度になる。第3図の左側に示されているのが、3種類の波長 (1.3, 2.4, 3.0mm) で測定された角分布である。偏光方向は水平偏光、つまり、第2図の面内に偏光した光である。水晶の長さは線の種類で区別している。強度が最大になる角度は、 $L=60\text{mm}$, 40mm では $30^\circ \sim 31^\circ$, $L=20\text{mm}$ では $25^\circ \sim 29^\circ$ となっており、波長が長くなるほど角度が小さくなっている。これは、予想とは異なった結果である。角度が異なる理由として、水晶がビーム軸に対して正しい角度で取り付けられていなかった可能性、あるいは結



第3図 放射の角分布。左側が測定値、右側がそれに対する理論計算である。線の種類で水晶の長さを区別している。

晶水晶の異方性を無視したことによる屈折率 n の任意性が考えられる。しかし波長の違いによるピーク角の変化については説明できない。

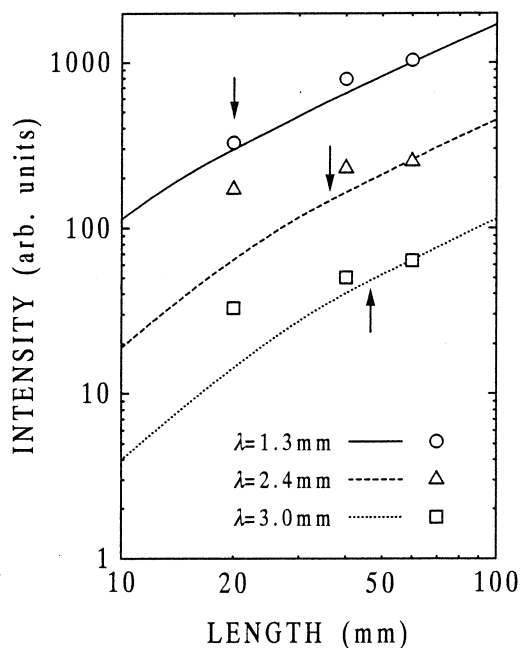
図の右側には第(2)式を用いて計算した結果が示されている。波長、水晶の長さの種類は、左側の測定結果と対応させている。測定値の傾向としては、長さ L が長くなるほど強度が大きくなっているが、その変化の割合は理論計算とは異なったものとなっている。長さ L と強度の関係については次節で詳しく扱う。

長波長では、一見 S/N 比が悪くなっているように見えるが、数回の測定で再現しておりノイズではない。光路の異なる光が干渉して、このような構造になっているものと思われる。しかし、その原因は今のところ特定できない。

3.2 水晶の長さ と放射強度の関係

第4図は、水晶の長さ L と角分布のピーク強度の関係を示している。横軸が長さ、縦軸が放射強度で、両軸とも対数目盛で描かれている。実線、破線、点線は、それぞれ波長 1.3, 2.4, 3.0mm での理論的な計算値に対応しており、見易くするために各波長間の相対的な強度は任意に選んである。図中の矢印で示された位置は、各波長での形成層の長さ L_f に対応している。その値は $L_f = 20\text{mm}$ ($\lambda = 1.3\text{mm}$), 37mm ($\lambda = 2.4\text{mm}$), 47mm ($\lambda = 3.0\text{mm}$) である。序論で述べたように、この理論計算による値は、 L が L_f よりも長い場合には、強度は L に比例し、短い場合には L の2乗に比例していることがわかる。

一方、図中の丸、三角、四角 (○, △, □) の記号は、第3図の測定値から読み取った各波長でのピーク強度である。理論計算の傾きと比較するために、 $L = 60\text{mm}$ のデータを計算値と重ねてある。波長 1.3mm はほぼ理論計算の傾きと一致している。とこ



第4図 水晶の長さ とピーク強度との関係。実線、破線、点線が理論的な計算値であり、○, △, □の記号が、それぞれに対応する測定値である。各波長間の相対強度は任意であり、 $L = 60\text{mm}$ のデータで計算値と重ねてある。図中の矢印で示された位置は、各波長での形成層の長さ L_f に対応しており、 $L_f = 20\text{mm}$ ($\lambda = 1.3\text{mm}$), 37mm ($\lambda = 2.4\text{mm}$), 47mm ($\lambda = 3.0\text{mm}$) である。

ろが波長2.4, 3.0mm では、測定値の傾きがかなり緩やかであり、 L にも、 L の2乗にも比例していない。

ここでの理論計算は次のようなモデルを仮定している。誘電体のサイズは電子ビームの方向には有限の長さを持っているが、垂直な方向への制限がない、という仮定である。実際には、電子ビームに垂直な方向の水晶のサイズが波長に比べて十分大きいとはいえなくなってきており、水晶の厚さ（第2図の d_1, d_2 ）も解析の中で考慮しなければならないものと思われる。

3.3 偏光度

水平偏光（第2図の面内）の強度を P_{\parallel} 、垂直偏光（第2図の紙面に垂直）の強度を P_{\perp} として、水平偏光度 R_p を次のように定義する。

$$R_p = \frac{P_{\parallel} - P_{\perp}}{P_{\parallel} + P_{\perp}} \quad (5)$$

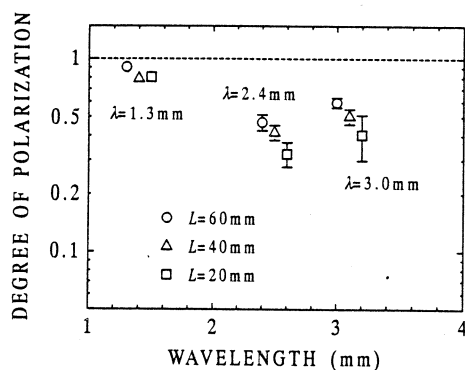
角分布のピークの位置での偏光度 R_p を対数目盛でプロットしたのが第5図である。破線は理論計算での値であり、この波長領域では $R_p \simeq 1$ としてよい。

測定値から求めた偏光度は丸、三角、四角（○, △, □）の記号で示されている。見易さのために、 $L=14, 20\text{mm}$ のデータは横軸を僅かにずらしてある。波長1.3mm については $R_p = 0.8 \sim 0.9$ で理論に近い値である。しかし波長2.4, 3.0mm については $R_p = 0.4 \sim 0.6$ と、かなり小さい値になっている。また、水晶の長さ L が短くなるほど偏光度 R_p が小さくなっている。この理由は今のところ不明である。

3.4 スペクトル

長さ $L=60\text{mm}$ の水晶を用い、角度 $\theta=30^\circ$ 、水平偏光で測定したスペクトルを第6図に示す。強度は黒体放射で較正し、波長幅1%、ビーム電流 $1 \mu\text{A}$ 当たりの光子数で表わされている。破線は、測定と同じ実験条件でコヒーレンス効果を考えない場合（インコヒーレントな放射）の理論的な計算値である。測定値は、インコヒーレントな放射強度に比べ数桁増強されている。例えば、波長3mm では約3000倍である。

完全にコヒーレントであればバンチ内電子数 (7.2×10^6) 程度放射強度が増強されるはずで

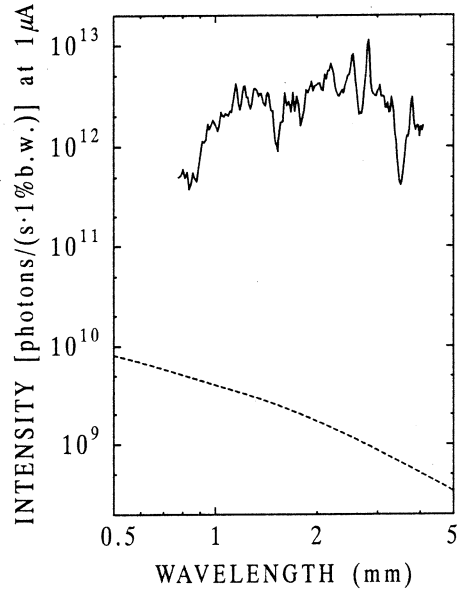


第5図 水平偏光度。破線は理論計算による値。測定で得られたデータは○, △, □の記号で示されている。見易さのために、△, □は横軸を僅かにずらしてある。

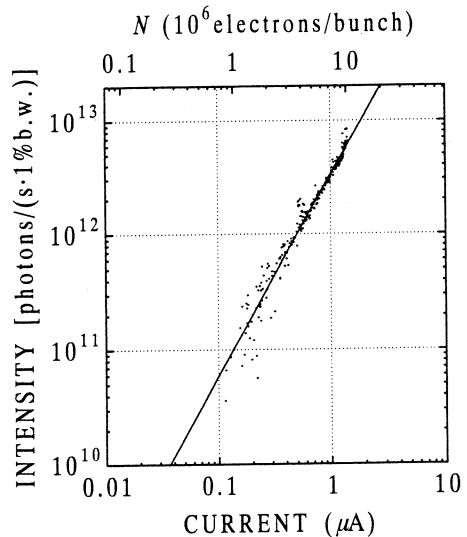
ある。実際、コヒーレント放射光²⁾、コヒーレント遷移放射³⁾の場合には電子数倍近く増強されていた。ところが、今回のチェレンコフ放射ではかなり小さい値になっている。これには、2つのことが考えられる。まず、電子ビームの横方向の広がりによるコヒーレンスの低下である。チェレンコフ放射では放射角が大きい($\sim 60^\circ$)ため、シンクロトロン放射光や遷移放射($\sim 10^\circ$)よりも電子ビームの広がりの効果が大きい。2つめは光学系の問題である。水晶から放射されるチェレンコフ放射は、水平面内であれば平行光束であるが、垂直方向に角度を持って放射される光は平行光束としては受光できず、かなりの損失があるはずである。従って、コヒーレントなチェレンコフ放射を用いてバンチ形状因子を計算し、ビーム形状診断を行なうには、コヒーレンスの低下や受光損失の量を見積もらなければならない。

3.5 電流と放射強度の関係

ビーム電流と光強度との関係を第7図に示す。波長1.3mm, 角度30度でのデータである。ビーム電流は、ビームトランスポート系にあるスリット(SDII-X)を開閉することにより変化させた。横軸、縦軸とも対数目盛で表示されている。また横軸上部には、電流に対応するバンチ内電子数(N)も示してある。図中の実線は最小二乗法を用いてフィッティングした直線($P=N^k P_0$)であり、その傾き k は 1.76 ± 0.02 である。コヒーレントな放射であれば、光強度はビーム電流の2乗、すなわちバンチ内電子数の2乗に比例するから、 $k=2$ となるはずである。測定値から求めた k の



第6図 長さ $L=60\text{mm}$ の水晶, 角度 $\theta=30^\circ$, 水平偏光で測定したスペクトル。強度は黒体放射で校正し, 波長幅1%, ビーム電流 $1\ \mu\text{A}$ 当たりの光子数で表されている。破線はコヒーレンス効果を考えないときの理論値。



第7図 光強度とビーム電流との関係。実線は最小二乗法で当てはめた直線($P=N^k P_0$)であり, その傾きは $k=1.76 \pm 0.02$ である。

値が小さい理由は次のように考えられる。スリット (SDII-X) を閉じるとバンチ内電子数が減少するだけでなく、バンチの横方向のサイズも小さくなる。すると光のコヒーレンスが良くなるため放射強度を増やす方向に働き、強度の減少が緩められるからであろう。いずれにしても k の値は 2 に近いので、観測された光がコヒーレントな放射であると結論して良いであろう。

§ 4. 結 論

水晶からのコヒーレントなチェレンコフ放射を観測し、チェレンコフ角付近にピークのある角分布を得た。波長 1.3mm については、水晶の長さとの放射強度の関係、偏光度が理論と一致しており、観測された光がチェレンコフ放射であると結論できる。また、放射強度がバンチ内電子数のほぼ 2 乗に比例していることから、コヒーレントな放射であることがわかった。一方、その他の波長についてのデータは必ずしも理論通りの結果が得られているとはいえない。そのため、チェレンコフ放射における形成層の効果が確認できなかった。今後は、電子ビームに垂直な方向の水晶のサイズやバンチのサイズ、あるいは光学系の受光効率など、実際の測定により近いパラメーターでの解析が必要である。

本実験を行なうにあたり、核理研マシングループの栗原亮氏、高橋重伸氏、柴崎義信氏に協力頂いた。ここに感謝の意を表す。また、本研究の一部は文部省科学研究補助金の援助により行われた。

参 考 文 献

- 1) T. Nakazato, M. Oyamada, N. Niimura, S. Urasawa, O. Konno, A. Kagaya, R. Kato, T. Kamiyama, Y. Torizuka, T. Nanba, Y. Kondo, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ohsaka, and M. Ikezawa : Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1245.
- 2) K. Ishi, Y. Shibata, T. Takahashi, H. Mishiro, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, N. Niimura, R. Kato, Y. Sibasaki, and M. Oyamada : Phys. Rev. A **43** (1991) 5597.
- 3) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, T. Kanai, F. Arai, S. Kimura, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, K. Kato, S. Urasawa, T. Nakazato, S. Niwano, M. Yoshioka, and M. Oyamada : Phys. Rev. E **49** (1994) 785.
- 4) T. Takahashi, T. Kanai, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ihara, T. Tsutaya, T. Ohsaka, M.

- Ikezawa, M. Oyamada, T. Nakazato, S. Urasawa, and T. Yamakawa : Research Report of Laboratory of Nuclear Science, Tohoku University **26** (1993) 137.
- 5) I. E. Tamm and I. M. Frank, Dok. Akad. Nauk SSSR : **14** (1937) 107.
- 6) 柴田行男, 伊師君弘, 高橋俊晴, 長谷部茂, 井原泰介, 蔦谷 勉, 大坂俊明, 池沢幹彦, 近藤泰洋, 中里俊晴, 浦沢茂一, 小山田正幸, 山川達也 : 核理研研究報告 **26** (1993) 304.
- 7) E. E. Russell and E. E. Bell, J. Opt. Soc. Am.: **57** (1967) 341.

コヒーレントな回折放射の観測

科研, 工学部応用物理*, 核理研**

柴田行男・伊師君弘・高橋俊晴

長谷部茂・井原泰介・蔦谷 勉

大坂俊明・池沢幹彦・近藤泰洋*

鈴木吉朗*・下山克彦*・

中里俊晴**・小山田正幸**

浦澤茂一**・山川達也**

§ 1. はじめに

電子ライナックの短バンチ電子ビームが金属箔を通過するとき、ミリ波～サブミリ波域ではコヒーレントな遷移放射が観測される¹⁻⁴⁾。そのような長波長域では放射の形成層が重要な役割を果たすことも明らかにされてきている^{4, 5)}。しかし、電子ビームが直接金属箔を通過しない場合でも、金属箔の近くを通過するとき電磁気的な相互作用の結果として光が放射される。このような放射は、電子が金属箔を通過するときの遷移放射や誘電体を通過するときのチェレンコフ放射と区別し、回折放射と呼ばれている⁶⁾。

今回、金属板にあけた円孔を短バンチ電子ビームが通過するときの回折放射を観測し、その性質を調べた。その際、回折放射の性質を明らかにするため遷移放射を参照基準とした。それ故、電子ビームがアルミ箔を通過するとき発せられるコヒーレントな遷移放射も併せて測定した。

§ 2. 円孔からの回折放射

長波長域では金属は完全導体でよく近似できる。その場合、直径 d の孔のある無限に大きな金属箔の孔の中心を、相対論的な電子1個が通過するときの回折放射、即ち単位立体角・単位波長当り光子数は次式で表される⁷⁾。

$$\frac{d^2W}{d\Omega d\lambda} = \frac{\alpha}{\pi^2 \lambda} \frac{\beta^2 \sin^2 \theta F^2}{(1 - \beta^2 \cos^2 \theta)^2} = I_0 F^2 \quad (1)$$

$$F = J_0(\pi d \sin \theta / \lambda) X K_1(X) \quad (2)$$

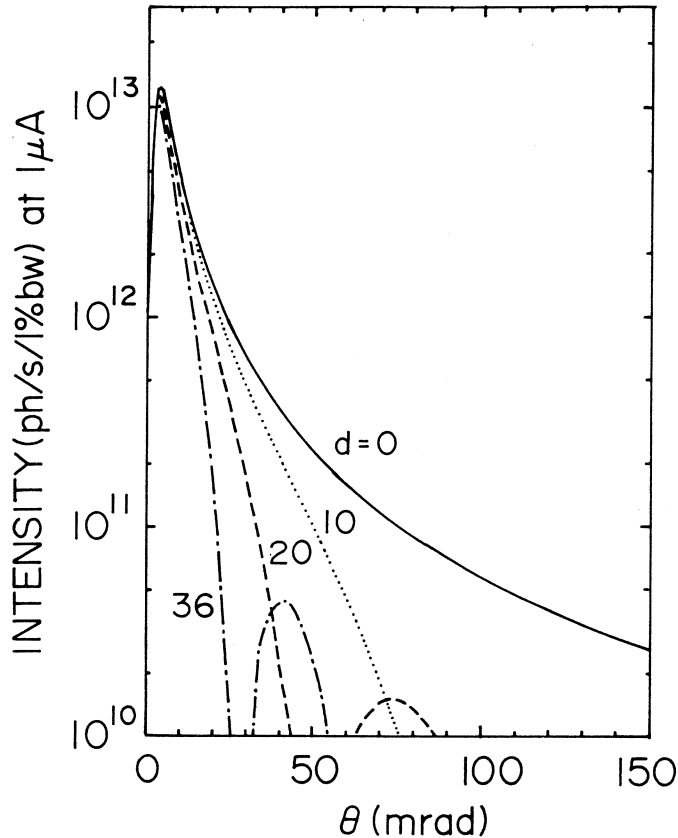
$$X = \pi d / (\beta \gamma \lambda) \quad (3)$$

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、 γ はローレンツ因子、 θ はビー

μ 軸からの方位角を表す。因子 F は零次のベッセル関数 J_0 と 1 次の変形ベッセル関数 K_1 の積で与えられる。今、 $d/\lambda \rightarrow 0$ のとき、 $J_0 \rightarrow 1$ 、かつ $XK_1(X) \rightarrow 1$ であり、 F は 1 で近似できるようになる。 $F = 1$ のときの第(1)式は、電子が 1 枚の金属箔を通過するとき十分遠方で観測した場合に測定される遷移放射を表す。いま、それを I_0 と表すことにする。

第(1)式は、後方放射に対しても前方放射と同様に適用できる。また、 $K_1(X)$ は X とともに指数関数的に減少するため、回折放射は長波長域 ($\lambda > \lambda_{\min} = \pi d / \gamma$) でのみ観測される。

電子エネルギー 150 MeV に対する波長 1.3 mm での回折放射の強度を θ の関数として第 1 図に示す。 $d = 0$ の場合が金属箔からの遷移放射を表し、穴径が大きくなるほど回折放射は遷移放射に比較し弱くなっている。しかし、 $\theta \ll 1$ のビーム軸に沿った方向では、円孔が波長に比較しかなり大きくても遷移放射と同程度の強度の回折放射が発せられている。



第 1 図 150 MeV の電子ビームによる回折放射。横軸はビーム軸からの角度を表し、縦軸はビーム電流 $1 \mu A$ のコヒーレンスの効果を考慮しない場合の強度 (単位時間・単位立体角・1%の相対波長幅当り光子数) を表す。図中の d は円孔の直径を表し、 $d = 0$ は遷移放射を示す。

回折放射は、電子が円孔を通過するとき瞬時に発せられるのではなく、放射の過程に一定の時間 (formation time) を必要とする⁶⁾。それに対応して放射の形成層 Z_f が定義されているのは遷移放射の場合と同様である⁶⁾。

$$Z_f = \lambda / [2 \pi (1 / \beta - \cos \theta)] \quad (4)$$

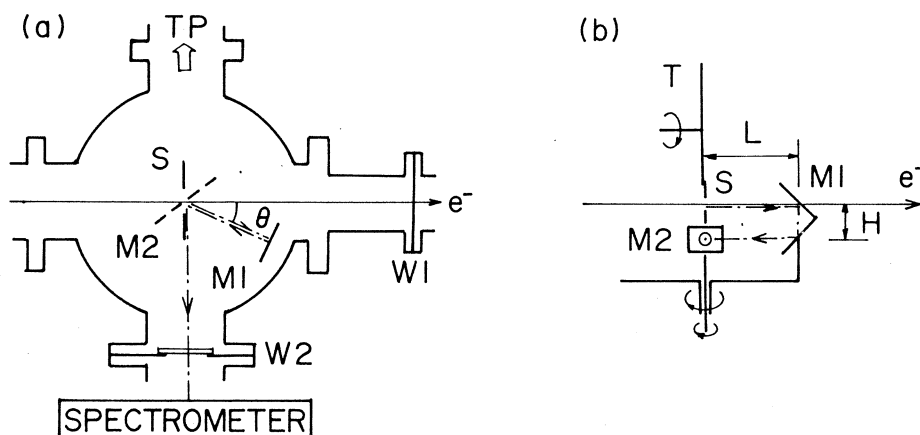
これまでのコヒーレントな遷移放射の実験において⁴⁾、金属箔からの前方遷移放射を電子ビームの軌道上でその下流にある鏡で測定する場合、前方遷移放射と鏡からの後方遷移放射の重ね合わせが測定された。それ故、円孔からの回折放射を測定する場合にもビーム軸上の鏡との干渉が予想される。その放射強度は次式で表されると類推される。

$$I = I_0 [1 + F^2 - 2 F \cos(L / Z_f)] \quad (5)$$

ここで、 I_0 、 F は第(1)、(2)式で与えられており、 Z_f は形成層で、 L は放射体と鏡 M1 間の距離である。第(5)式で $d = 0$ 即ち $F = 1$ とおいた場合、それはアルミ箔と鏡からなる系からの遷移放射の強度を表す式に帰する⁴⁾。

§ 3. 実 験

回折放射測定用チャンバーの模式図を第2図に示す。(a)は平面図を示し、電子軌道上に置かれた放射体 S からの光は平面鏡 M1、M2 で反射され遠赤外分光計に導かれる。鏡 M1 と M2 は連動して回転し、ビーム軸からの放射角 θ が 0° から 360° まで測定できる。方位角 θ が 90° より小さい場合には前方回折放射が測定され、 $\theta > 90^\circ$ の場合は後方回折放射が測定され



第2図 実験模式図。(a)平面図：S、放射体：M1、M2、アルミ蒸着石英鏡：W1、チタン窓：W2、水晶窓：TP、ターボポンプ。直線 e^- は電子ビームを表し、一点鎖線は光軸を表す。(b)側面図：T、放射体取付け用回転盤。鏡 M1 は直交する平面鏡 2 枚で構成され、光軸をビーム軸から 40mm 下げている。

る。図(b)は θ が 0° の場合の垂直面に投影した模式図であり、M1は厚さ1mmで縦×横が40×30mmのアルミ蒸着石英鏡2枚を 90° に組み合わせた屋根型反射鏡であり、M1で中心方向へ反射された光束の光軸はビーム軸から40mm下である。それ故、鏡M2（アルミ蒸着石英鏡、縦×横×厚：30×50×1mm）もビーム軸から40mm下にある。鏡M1とM2は真空容器外部に取り付けられた1個のパルスモーターで駆動される。放射の角分布を測定するため鏡を回転しても分光計への光路が変わらぬように、M1/M2の回転角速度比が2対1となるように回転機構が製作されている。放射体Sと鏡M1の距離Lは100mmである。

本実験の測定光学系では、方位角が 90° 近くの測定では鏡M1自身が分光計への光路を遮るため、 $\theta=90^\circ$ を中心とした 30° （ $75\sim 105^\circ$ ）の範囲が正しく測定できない。同様に -90° 付近では測定すべき光束が鏡M2に対し 90° に近い斜入斜となるため、 -90° を中心とした 34° （ $-107\sim -73^\circ$ ）の範囲が正しく測定出来ない。

回折放射測定光学系の受光角は70mradであり、集光された光は回折格子型遠赤外分光計に導かれる。その分光計は多数の回折格子とフィルタおよび偏光子を備えており、波長0.1mmから4mmまでの分光測定が可能である。遠赤外光の検出にはシリコンボロメーターを使用した。

電子ビームはエネルギーが150MeV、そのエネルギー幅は0.2%であった。パルス幅は2 μ sで繰り返しは300ppsであるが、2パルスずつon/offするよう機能するタイミング回路を使用し、ロックインアンプの同期周波数は75Hzにしている。ビーム電流はこれまでの実験と同様に下流に設置されたSEM（2次電子モニター）で測定した。測定中の平均ビーム電流は0.2 μ A程度であり、放射体を通過する点でのビーム直径は約7mmであった。

3.1 放射体

放射体Sは直径50mm厚さ2mmのアルミ板の中心にそれぞれ直径10mmと20mmの穴をあけたものであり、試料回転盤Tに取り付けられている。その回転盤は直径150mm厚さ3mmのアルミ板であり、回転盤の試料取り付け部は直径36mmの円孔があけてあるので、放射体を取り付けないときは、36mmの円孔の回折放射源となる。回転盤は真空容器天板上部に取付けられたパルスモーターで駆動し、真空を破ることなく放射体を交換できる。

回折放射の性質を調べるために、これまでにその性質が明らかになってきている遷移放射を参照基準とする。そこで、放射体として厚さ15 μ mのアルミ箔も用意した。

回転盤はビーム軸に直交しており、放射体を回転盤に取り付けると、機械的な精度内で電子ビームは円孔中心に垂直入射する。大半の実験は電子ビームが放射体に垂直に入射する配置で

行った。その配置では、後述するように円孔からの回折放射と鏡 M1 の遷移放射との重ね合せを観測している。

回折放射だけを観測するためには、後方回折放射は鏡面反射の方向に放射されるから、放射体を電子ビームに対し傾けて取り付ければよい。そのため、電子ビームは円孔の中心を通過するが円孔に 12° の斜入射となるように治具を用いて取り付けられるようにした。それにより斜入射ビームによる回折放射の測定も行った。

回転盤には、必要に応じてビーム位置を確認するために、目盛りを入れた BeO のフィルムをビーム軸に対し 45° 傾けて取り付け、ターボ分子ポンプの排気方向から観察窓を通して TV カメラで観察できるようにした。

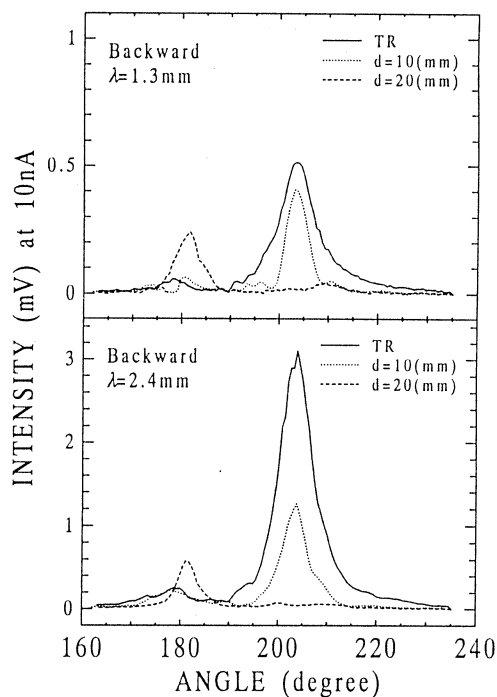
§ 4. 実験結果とその考察

4.1 斜入斜ビームによる後方回折放射

電子ビームが放射体に対し 12° の斜入射（垂直入射から 12° 傾斜）となるよう、直径 10mm と 20mm の円孔のあるアルミ板およびアルミ箔を回転盤に取り付け、その後方放射を測定した。

その測定結果を第3図に示す。図の横軸は方位角を表し、 180° 方向がビームの上流方向であり、 204° がビーム軸の放射体による鏡面反射方向である。測定結果は 204° 方向を中心とした放射と 180° 方向を中心とした放射の二つのピークを示した。 204° を中心とした放射が求める後方回折放射であり、後述するように 180° 方向の放射は別の源からのものである。

アルミ箔からの後方遷移放射は鏡面反射方向を中心とした単一のピークを

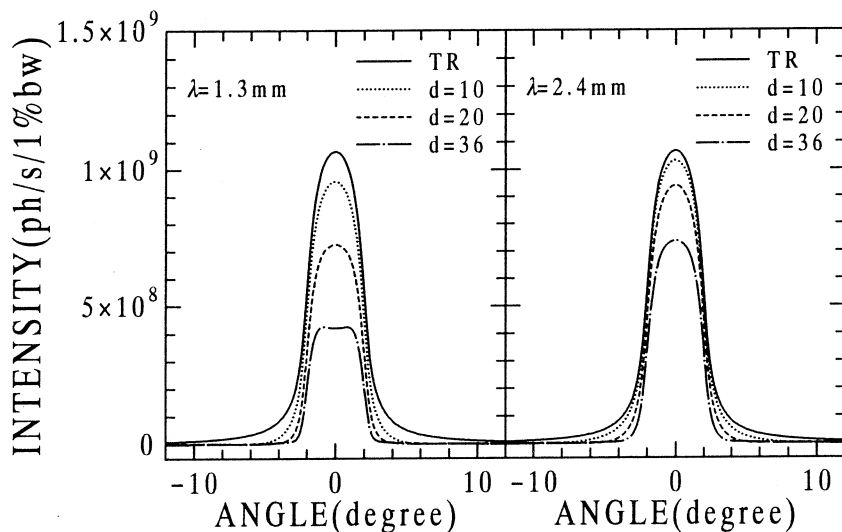


第3図 斜入射電子ビームによる直径 10mm と 20mm の円孔からの後方回折放射。測定波長は 1.3mm と 2.4mm である。横軸は方位角で 180° がビーム軸上流方向を示し 204° 方向が正反射方向を示す。実線は比較のため測定したアルミ箔からの後方遷移放射を表す。

示しその半値幅は波長1.3mmでも2.4mmでもほぼ同じ 7° である。直径10mmの円孔からの後方回折放射も同様のピークを示すが、ピークの強度・半値幅ともに減少している。また、そのピークはほぼ対称な形をしている。直径20mmの円孔では雑音レベル程度の非常に弱い放射が観測された。

第(1)式を実験条件のもとで計算した結果を第4図に示す。計算は後方放射が単一ピークとして観測されること、金属箔からの遷移放射に比較して金属箔にあげた円孔からの回折放射が全体として弱いこと、また半値幅が小さくなることを示している。その点で計算は実験を説明している。しかし、計算では直径20mmの円孔からの回折放射は遷移放射に比較して、実験に示された程極端に弱くはない。また直径10mmの円孔からの回折放射の波長による強度変化をみると、回折放射の遷移放射に対する相対強度が、計算では波長2.4mmの方が1.3mmに比較し強いのに、実験結果は逆である。さらに、計算ではピークの半値幅が、アルミ箔からの遷移放射の場合を含め、波長に依らず約 4° であるが、実験ではアルミ箔からの遷移放射の半値幅は約 7° でありかなり大きい。これらの不一致が何に起因するのか現在の所不明である。

直径20mmの円孔の放射体については、回転盤への取り付け方が悪く回折放射の光軸が水平面からずれていた可能性がある。また、測定系のビーム上流に予想されない回折放射の源があるような場合には、単一の放射体として計算した第4図と相違するのは当然なので、実験配置を



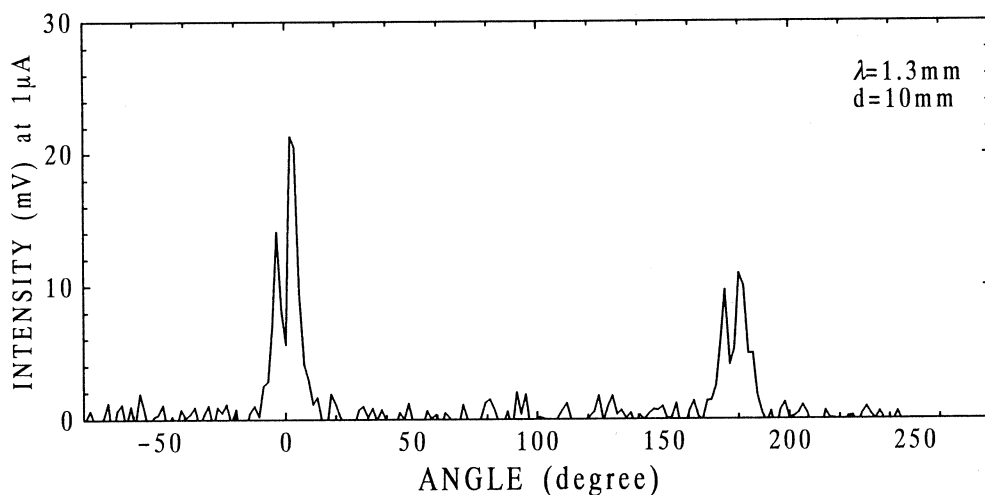
第4図 後方回折放射の計算。横軸は正反射方向からの角度を表し、縦軸は測定系にビーム電流 $1\mu\text{A}$ 当り入射する非コヒーレントな放射強度(単位時間 $\cdot 70\text{mrad}$ の立体角 $\cdot 1\%$ の相対波長幅当り光子数)を表す。図中、実線はアルミ箔からの後方遷移放射を表す。

再吟味する必要がある。

第3図で 180° 方向の放射は直径20mmの円孔のとき最大であることから、放射体より約300mm下流にあるチタン箔（第2図参照）からの後方放射が20mmの円孔を通して観測されているものと思われる。なお、アルミ箔でも弱い放射が観測されているが、それは θ が 180° の測定配置では鏡M1がビームと交差しており、M1自身も前方遷移放射を発生しているのもその迷光と思われる。

4.2 垂直入射ビームによる回折放射の測定

全方位に対する放射の角度分布の測定の一例として、直径10mmの円孔に対する測定データを第5図に示す。測定波長は1.3mmで、角度の測定範囲は $-80^\circ < \theta < 250^\circ$ であり、平均ビーム



第5図 直径10mmの円孔からの放射の角分布。測定波長は1.3mm、方位角が $\theta < 90^\circ$ のとき前方放射、 $\theta > 90^\circ$ のとき後方放射が観測される。

電流は $0.16 \mu\text{A}$ であった。方位角 $\theta = 0^\circ$ および 180° の方向に放射が観測されるが、それ以外の方向では検出器出力は雑音レベルである。

これは、他の孔径の測定およびアルミ箔からの遷移放射の測定においても同様であった。そこで、 $\theta = 0^\circ$ 方向の前方放射と 180° 方向の後方放射について、それぞれの結果を示す。

4.2.1 前方放射

円孔直径が10mm、20mmおよび36mmの場合の前方回折放射の測定結果を第6図に示す。図(a)が波長1.3mmでの測定であり、(b)が波長2.4mmの結果である。それぞれの図には、基準となるアルミ箔からの遷移放射の測定結果も示されている。

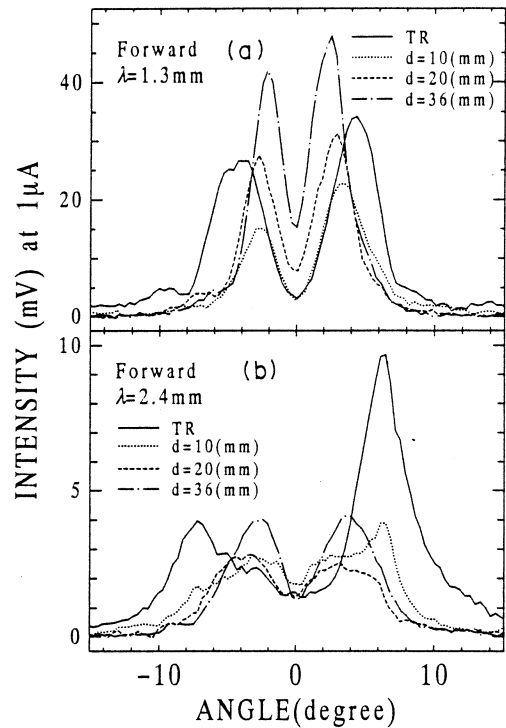
測定結果はビーム軸に対称とみなすことができ、大きな二つのピークを示す。しかし、

そのピーク角は第1図に示されている1個の円孔からの回折放射のピーク角に比較し著しく大きい。アルミ箔からの遷移放射の測定結果もそうになっている。

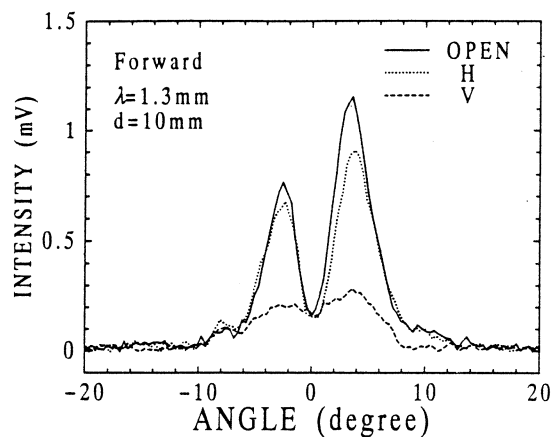
前方放射の測定配置で $|\theta| < 8.5^\circ$ の範囲では、電子ビームが鏡 M1 に当たっている。従って、鏡 M1 からの後方遷移放射も測定される。アルミ箔の測定結果は、箔からの前方遷移放射と鏡からの後方放射の干渉として解析できる⁴⁾。その類推から、第6図の測定結果は、円孔からの前方回折放射と鏡からの後方遷移放射が放射の形成層よりも短い距離で組み合わせられた場合の干渉結果を示していると解される。即ち、単一の放射体から予測されるピーク角より広がったピークが観測されたのは、その干渉の結果であろう。

第6図の測定結果は、また次の事をも示している。即ち、波長2.4mmの測定に見られるように、円孔が無い状態から孔径を大きくしてゆくと一旦ピーク強度が減少し、それから孔径が増すとともにピーク強度が増大する。そのピーク角は孔径が増すとともに減少している。また、ピーク半値幅もアルミ箔からの遷移放射のそれに比較し小さい。

直径10mmの円孔からの回折放射について、波長1.3mmでの、偏光成分による放射の角分布を測定した。その結果を第7図に示す。ピーク角では水平方向に強く偏光している。この偏光特性は、以前に実験したアルミ箔



第6図 円孔からの前方回折放射の測定。測定波長は1.3mmと2.4mmであり、実線は比較のため測定したアルミ箔からの前方遷移放射を表す。



第7図 直径10mmの円孔からの前方回折放射の偏光観測。測定波長は1.3mm。

からの遷移放射の偏光特性⁴⁾と同じとみてよい。

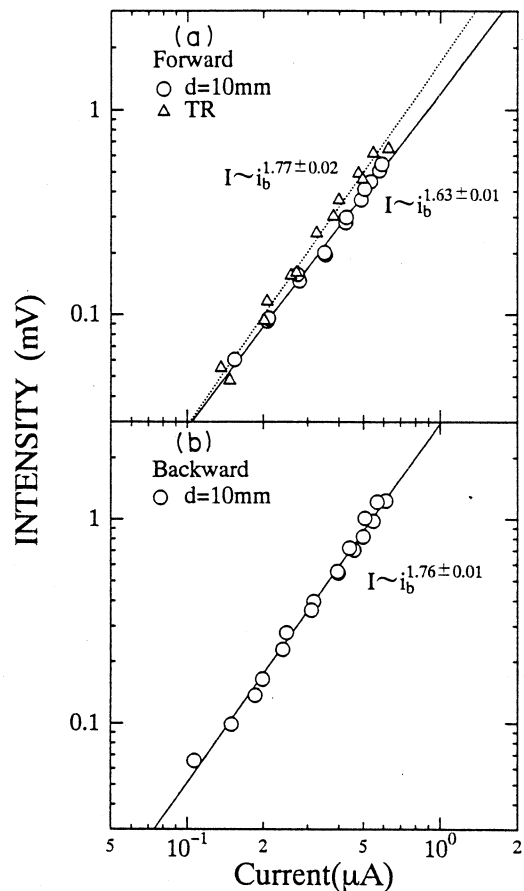
放射の角分布およびその偏光特性が、アルミ箔からの遷移放射の測定結果と同様であることから、回折放射も、ビーム軸から円錐状に放射され、その電気ベクトルはビーム軸と観測方向を含む面内にあると解される。これは、理論的に予測されたことでもある⁷⁾。

直径10mmの円孔からの放射について、ビーム電流依存性を測定した。その結果を第8図(a)に丸印で示す。なお、同図にはアルミ箔からの遷移放射の測定結果も三角印で示してある。データ点を通る直線は最小自乗により得られたもので、その勾配は10mmの円孔で 1.63 ± 0.01 、アルミ箔に対し 1.77 ± 0.02 であり、短時間の測定に対するデータ処理では表せない誤差をも考慮すると、測定結果はともにビーム電流の2乗に比例しているとみなせる。このことは測定された放射がコヒーレントな放射であることを示している。

4.2.2 後方放射

直径10, 20, および36mmの円孔からの後方放射の角分布の測定結果を第9図に示す。測定波長は1.3mmと2.4mmである。図中の実線は、比較のため測定したアルミ箔からの後方放射を示す。

後方放射の測定では、全体として、孔径とともに強度が減少している。直径10mmの円孔からの後方放射はピーク角・ピーク強度ともにアルミ箔からの遷移放射に比較し減少しているが、それでもビーム軸に対称な二つのピークを示す。しかし、円孔の径が20mm以上では放射強度はさらに弱くなっており、全体としてなだらかでピークがあるか否か不明である。例えば直径20mmの円孔については、波長2.4mmでは $\theta = 180 \pm 6^\circ$ のところに小さなピークがみられるが、波長1.3



第8図 直径10mmの円孔からの回折放射のビーム電流依存性。(a)は前方放射、(b)は後方放射の測定結果を示す。(a)の三角印は比較のため測定したアルミ箔からの遷移放射のビーム電流依存性を示す。図にはデータに最適化するように最小自乗法により得られた直線を示す。

mmではそのようなピークは認められない。

なお、36mmの円孔の場合ビーム軸 ($\theta = 180^\circ$) 方向に弱いピークがあるように見える (特に波長1.3mmで顕著である)。しかし、第2図(a)の実験配置に見られるように、放射体の下流約300mmの位置に厚さ50 μm のチタン箔 (W1) があり、電子ビームが通過するとき後方放射を発生している。それが36mmの円孔の場合にはビーム軸を中心に7度の範囲で測定系に入射してくると推定される。そのことを考慮すると、36mmの円孔からの後方放射では中心に弱いピークがあるとは断定できない。

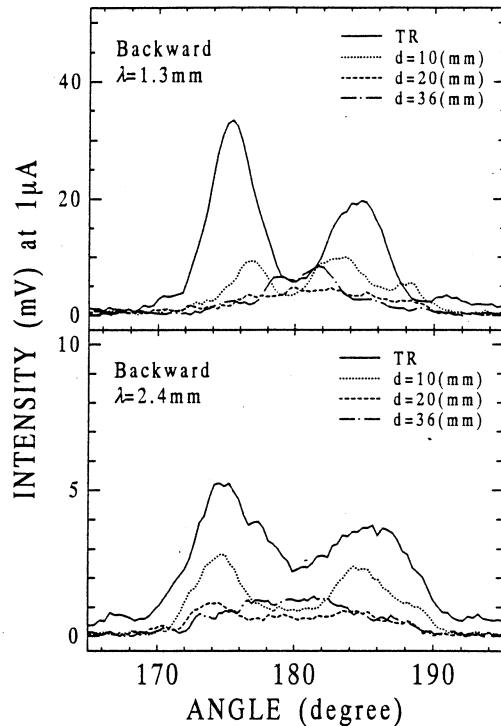
後方放射の測定配置では、鏡 M1 を電子ビームが通過する。それ故、鏡からの前方遷移放射と円孔からの後方回折放射が観測されている。従ってアルミ箔の測定では、鏡とアルミ箔からの遷移放射間の干渉が測

定されており、それはアルミ箔による反射を除けば、前方配置でもアルミ箔の測定と同じ筈である。点検としてみると、波長1.3mmの測定においては、ピーク強度およびピーク角の測定結果は前方放射・後方放射ともに予想されるように同程度である。しかし波長2.4mmではピーク強度は同じ程度であるが、ピーク角は後方放射の方が測定誤差を越えて小さい。この理由は現在の所不明である。

第8図(b)は、10mmの円孔からの後方解析放射について測定したビーム電流依存性を示す。図中の直線は最小自乗により最適化されたもので、その勾配は 1.76 ± 0.01 であり、前方放射の場合と同様に、放射強度はビーム電流の2乗に比例するとみなせる。即ち、測定された放射はコヒーレントであるとみてよい。

§ 5. 回折放射と遷移放射の干渉についての考察

測定配置が前方放射の場合、円孔からの前方放射と鏡からの後方放射の重ね合わせ (干渉)

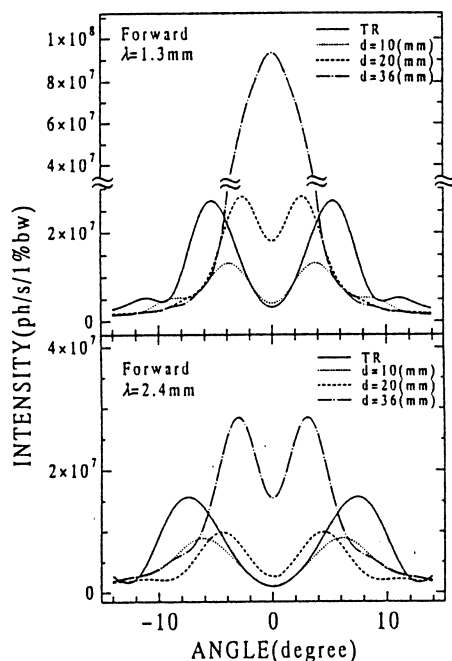


第9図 円孔からの後方回折放射。測定波長は1.3mmと2.4mmであり、実線は比較のため測定したアルミ箔からの後方遷移放射を表す。

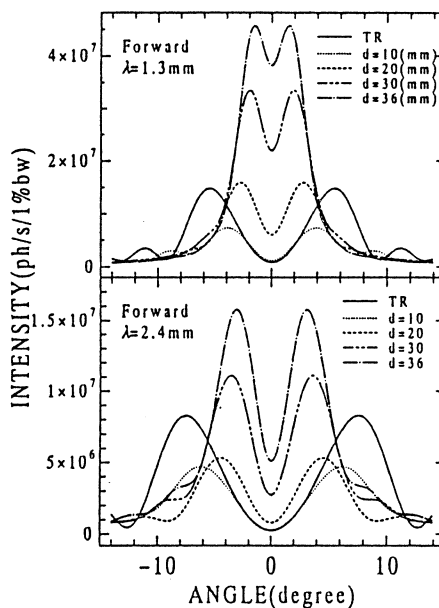
が測定される。実験結果を解析するため、回折放射と遷移放射の干渉の効果について次の数値計算を行った。即ち、第(5)式を測定系の受光角 70mrad で積分した。実験条件に対するその計算結果を第10図に示す。図中の実線は金属箔からの遷移放射を示す。

計算は、第6図の測定結果とよい対応を示している。即ち、円孔の直径が大きくなると、ピーク強度は一旦弱くなりそれから大きくなる。また、ピーク角は遷移放射の場合に比較し小さくなり、ピークの半値幅も狭くなっている。

しかし、直径 36mm の円孔で波長 1.3mm の計算結果はビーム軸を中心とした単一ピークとなっているが、測定結果はそうなってはいないし、放射強度の増大も計算ほど大きくはない。この場合、第(5)式の関数はピーク角が約 30mrad の分布を示すが、 70mrad の受光角で積分したため、結果としてビーム軸方向に単一ピークを有する放射となっている。従って、計算上は測定系の受光角を 70mrad より小さくし、また円孔の径も 36mm より小さくした場合には、計算結果はよりよく実験を再現すると思われる。一例として、受光角 50mrad 円孔直径 30mm のときの計算を第11図に示す。



第10図 円孔からの前方回折放射の計算。縦軸は放射強度(単位時間・ 70mrad の立体角・1%の相対波長幅当り光子数)を表し、 d は円孔直径を示し実線は金属箔からの遷移放射を表す。



第11図 円孔からの前方回折放射の計算。光学系の受光角は 50mrad として計算した。図中、 d は円孔直径を示し実線は金属箔からの遷移放射を表す。

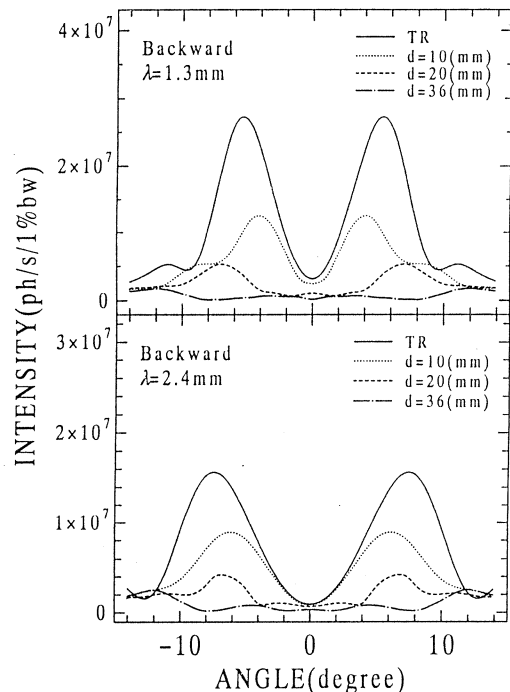
円孔直径が大きくなると、実験と計算の相違が目だつのは、実験条件なり、解析式に問題があると思われるが、現在のところその原因は明らかではない。

後方放射の配置の場合も鏡 M1 の前方遷移放射と円孔からの後方回折放射の干渉が測定される。その際、M1 からの遷移放射は円孔を有するアルミ板で反射されて測定光学系に入射する。いま、鏡からみた円孔の縁角を θ_1 とすると $\tan \theta_1 = d / (2L)$ である。それ故、幾何学的に扱って、鏡から $\theta \leq \theta_1$ の範囲に放射される M1 からの遷移放射は円孔に入射するため反射されない。それ故 $\theta \leq \theta_1$ では干渉が生じず、円孔からの後方回折放射だけが観測される。その場合の回折放射は第(1)式で表されるとは考え難い。何故ならば、第(1)式は電子軌道上、回折放射源の上流に形成層の範囲には、電場を乱す障害が無いことを前提としている。それに対し、実験では円孔上流100mmの所に鏡 M1 が存在するからである。上流の金属箔で電子軌道が形成層より短く制限されている場合、回折放射は抑制され、放射場の電場はその軌道長に比例すると考えられる⁶⁾。それ故、後方放射の配置での測定強度は次式で表される。

$$I = I_0 [g^2 + F^2 G^2 - 2gFG \cos(L/Z_f)] \quad (6)$$

ただし、 $\theta > \theta_1$ のとき $g = 1$, $G = 1$ であり、 $\theta \leq \theta_1$ のとき $g = 0$, $G = \min(1, L/Z_f)$ とする。ここで、 $\min(a, b)$ は a , b のうち小さい方の値をとることを表す。

第(6)式による計算結果を第12図に示す。(6)式の関数は $\theta = \theta_1$ で不連続であるが、受光角で積分した計算結果は図に明らかのように連続である。計算は、定性的には実験を説明している。即ち、孔径が大きくなるに従い強度が全体に弱くなり、またピークの半値幅も小さくなっている。また、直径10mmではピーク角も遷移放射の場合に比較し小さくなっている。計算では36mmの円孔の場合は放射強度が弱い。従って、実験においてピークが観測されなくてもやむを得ないことが予想される。しかし、20mmの円孔の場合には波長1.3mmでも2.4mmでも、



第12図 円孔からの後方回折放射の計算。縦軸は放射強度(単位時間・70mradの立体角・1%の相対波長幅当り光子数)を表し、図中の d は円孔直径を示し実線は金属箔からの遷移放射を表す。

弱いピークがビーム軸から7度の方向に観測されてもよい。第9図の波長2.4mmの測定では、約6度のところに弱いピークが認められている。しかし、§4.2.2で記したように、波長1.3mmでは確としたピークはみられない。

§6. まとめ

測定結果とその解析は次のように要約できる。

1. 円孔からの回折放射は、アルミ箔からの遷移放射と同様、ビーム軸に対称であり、円錐状に放射されている。
2. 測定された放射は、その強度がビーム電流の2乗に比例しておりコヒーレントである。
3. 円孔からの前方回折放射の測定配置で観測された放射はビーム軸に対称であり、二つのピークを示す。そのピーク強度は、円孔の径が大きくなるにつれて一旦弱くなるが、それを過ぎると次第に強くなる。また、ピーク角は円孔の径が増すにつれて小さくなる。ピークの半値幅も遷移放射に比較し小さい。

その実験結果は、円孔からの前方回折放射とアルミ蒸着鏡からの後方遷移放射の干渉として理解できる。

4. 後方放射の測定配置では、円孔の直径が大きくなるとともに全体に放射強度が弱くなる。また、ピーク強度も半値幅も減少する。

この測定結果も、上流にある鏡からの前方遷移放射と円孔からの後方回折放射の干渉として解釈できる。

5. それ故、円孔からの回折放射は、遷移放射と同位相で放射されており、遷移放射と可干渉である。
6. 測定された回折放射の強度は、遷移放射と同程度である。これまでの実験により、短バンチ電子ビームを用いた場合の遷移放射はコヒーレントであることが判っている。それ故、回折放射もコヒーレンスの効果が起こらない場合の強度に比し遷移放射と同様に桁違いに強力である。

それ故、上記2と6の結果を考慮すると、本実験により円孔からのコヒーレントな回折放射が観測されたと結論できる。

本実験においては、核理研のマシングループ栗原亮、大沼忠広、柴崎義信、高橋重伸、武藤正勝諸氏の支援を受けた。また、測定装置は、科研附属工場で作製した。ここに記して感謝す

る。本研究の一部には文部省科学研究費補助金を使用した。

参 考 文 献

- 1) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, F. Arai, M. Ikezawa, K. Takami, T. Matsuyama, K. Kabayashi, and Y. Fujita: *Phys. Rev. A* **44** (1991) R3449.
- 2) U. Happek, A. J. Sievers, and E. B. Blume: *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 2962.
- 3) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, T. Kanai, M. Ikezawa, K. Takami, T. Matsuyama, K. Kobayashi, and Y. Fujita: *Phys. Rev. A* **45** (1992) R8340.
- 4) Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, T. Kanai, F. Arai, S. Kimura, T. Ohsaka, M. Ikezawa, Y. Kondo, R. Kato, S. Urasawa, T. Nakazato, S. Niwano, M. Yoshioka, and M. Oyamada: *Phys. Rev. A* **49** (1994) 785.
- 5) T. Takahashi, T. Kanai, Y. Shibata, K. Ishi, T. Ihara, T. Tsutaya, T. Ohsaka, M. Ikezawa, M. Oyamada, T. Nakazato, S. Urasawa, and T. Yamakawa: *Res. Rep. Lab. Nucl. Sci. Tohoku Univ.* **26** (1993) 137.
- 6) B. M. Bolotovskii and G. V. Voskresenskii: *Usp. Fiz. Nauk* **88** (1966) 209 [*Sov. Phys. Usp.* **9** (1966) 73].
- 7) Yu. N. Dnestrovskii and D. P. Kostomarov: *Sov. Phys. Doklady* **4** (1959) 132.

多層薄膜から発生する遷移放射の薄膜枚数効果

京大工学部, 核理研*

粟田高明・田中隆次・伊藤秋男

今西信嗣・山川達也*

小山田正幸*・浦澤茂一*

中里俊晴*

§ 1. 序 論

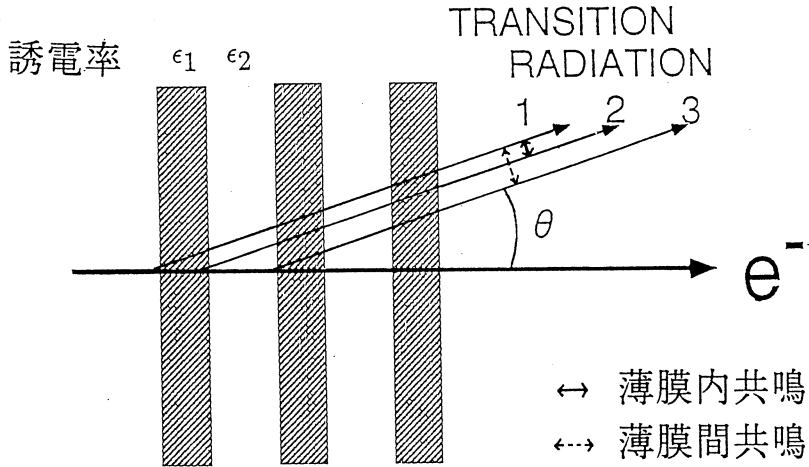
遷移放射は、シンクロトロン放射と比較して、X線領域の光子発生に必要な電子のエネルギーが低く、荷電粒子から光子へのエネルギー変換効率も高いため、新しいX線源として可能性が期待されている¹⁾。

真空中に薄膜を一定の間隔で多数配置すると（以後多層薄膜と呼ぶ）、誘電率の異なる境界が多数できる。ここに電子を通過させると、各境界から遷移放射光が発生する。これらから発生した遷移放射光がおのおの干渉を起こすと、あるエネルギーの光子強度が増大し単色化する。この遷移放射を共鳴遷移放射（Resonance Transition Radiation）という。この共鳴効果には2種類ある。一方は、1つの薄膜の前後から放出される遷移放射間の共鳴である薄膜内共鳴効果（intra-foil resonance）、他方は隣接する薄膜から放出される遷移放射間の共鳴である薄膜間共鳴効果（inter-foil resonance）である。

実際には、多層薄膜から放出される共鳴遷移放射では、上述の2つの共鳴効果が起きているものの（全共鳴）と薄膜内共鳴のみ起きているもの（部分共鳴）がある。両者のエネルギースペクトルの形状は類似しているため、両者の区別は非常に難しいとされてきた。前回の報告ではこれら全共鳴と部分共鳴の相違を、異なる多層薄膜ターゲットを用いた、遷移放射のエネルギースペクトルの放射角度ごとの測定により、明らかにした²⁻³⁾。

薄膜枚数を増加させると、上述の薄膜間共鳴効果が増大することは容易に考えられる。遷移放射の理論による計算では、薄膜枚数が N 枚から発生する遷移放射の強度は、薄膜枚数1枚から発生する遷移放射の強度よりも N 倍以上大きく、より単色化した遷移放射が発生することがわかっている。Moranらは、54MeVの電子を数種類のポリプロピレンの多層薄膜に照射し発生した遷移放射について、角度分布を測定して薄膜枚数増加による角度分布のスペクトル変化によって、薄膜間共鳴効果を確認した。また同時に理論による計算も行っている⁴⁾。

この論文では、薄膜枚数が異なる数種類の多層薄膜を用意し、発生する遷移放射光のエネルギースペクトルを測定することにより、薄膜枚数増加による薄膜間共鳴効果の増大を確認したので報告する。



$$\frac{d^2 N_p}{d\Omega d\omega} = \frac{d^2 N_{p0}}{d\Omega d\omega} F_{1foil} F_{Nfoils}$$

第1図 共鳴遷移放射の説明図。

§ 2. 計 算

共鳴遷移放射の強度を表す式は以下のように与えられる⁵⁻⁶⁾。

$$\frac{d^2 N}{d\Omega d\omega} = \frac{d^2 N_0}{d\Omega d\omega} F_{1foil} F_{Nfoils} \tag{1}$$

上の式の F_{1foil} は1枚の薄膜の前後から放出される遷移放射の薄膜内共鳴効果を表す項であり、次の式で与えられる。

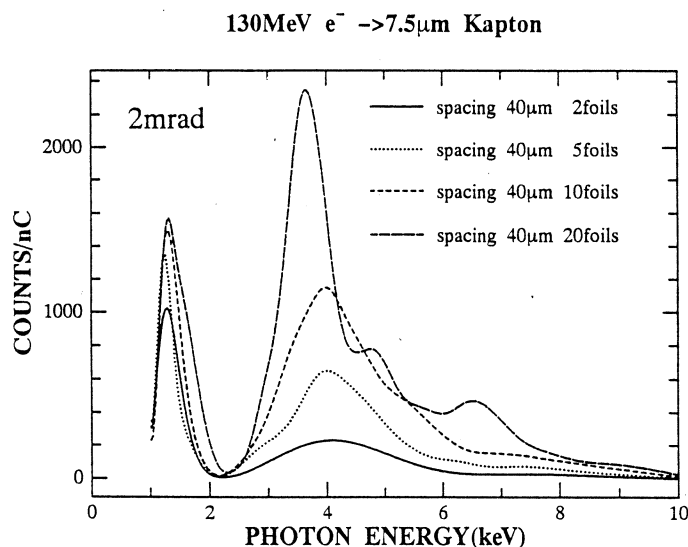
$$F_{1foil} = 1 + e^{-\sigma} - 2e^{-\sigma/2} \cos \frac{2l_1}{Z_1} \tag{2}$$

ここで、 $\sigma = \mu_1 l_1 + \mu_2 l_2$ で、 $\mu_{1,2}$ は各媒質のX線吸収係数、 Z_i は各媒質の生成長である。なお、 l_1 は薄膜の厚さ、 l_2 は薄膜間隔である。

また F_{Nfoils} は連続する薄膜から放出される遷移放射の薄膜間共鳴効果を表す項であり、次の式のようになる。

$$F_{N \text{ foils}} = \frac{1 + e^{-N\sigma} - 2e^{-N\sigma/2} \cos 2NX}{1 + e^{-\sigma} - 2e^{-\sigma/2} \cos 2X} \quad (3)$$

ここで、 $X=l_1/Z_1 + l_2/Z_2$ 、 N は薄膜枚数である。



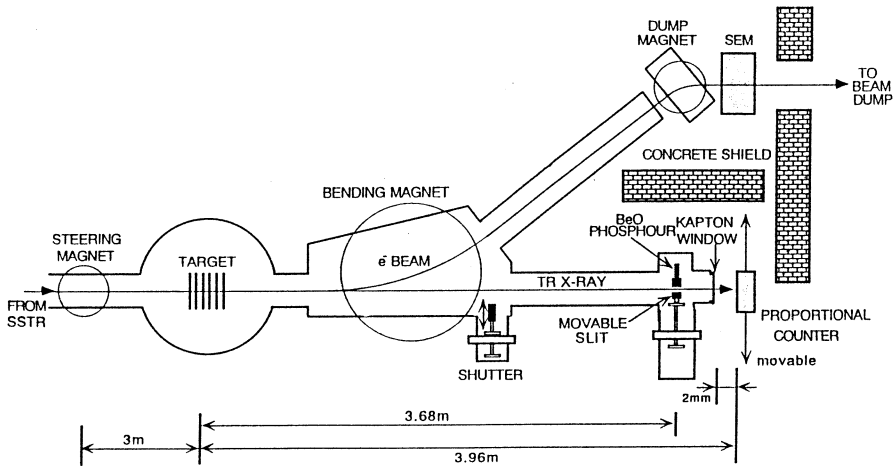
第2図 薄膜枚数増加による遷移放射のエネルギースペクトルの変化。

共鳴遷移放射における、薄膜枚数増加による薄膜間共鳴の効果の増大を表した、遷移放射の計算によるエネルギースペクトルが第2図である。横軸は放出される光子のエネルギー、縦軸は電子照射量1 nC当たりのX線カウント数である。計算は電子のエネルギーが130MeV、多層薄膜は材質が厚さ7.5μmのKaptonで、薄膜枚数が2枚、5枚、10枚、20枚のターゲットについて検出器の分解能は10%として行ったものである。この図から明らかに薄膜枚数を2枚、5枚、10枚、20枚と増やすことにより、スペクトルにおけるピークの半値幅が減少、ピーク強度が増加していることが分かる。このことは、薄膜枚数が増加することにより薄膜間共鳴の効果が増大、より単色化した遷移放射X線が発生させることができることを明示する。

§ 3. 実 験

実験は、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用いて行われた。実験配置を第2図に示す。

ライナックで加速された130MeVパルス電子ビームは、SSTRを用いて直流ビームに変換され、多層薄膜ターゲットに照射される。ターゲットの位置に併置されたMgO燐光体により測



第3図 実験装置。

定された電子ビームサイズは約5.0mm ϕ であった。また、電子ビームのエネルギー幅は0.1%であった。ターゲットを通過後、電子ビームは偏向磁石で曲げられて、二次電子放出モニター (SEM) に導かれる。実験中の電子ビームの電流は、SEM と同時にプラスチックシンチレーターを下流に設置してこれによっても測定した。実験中の電流は約10pA ~120pA であった。

多層薄膜で発生した遷移放射X線は、厚さ7.5 μ m の KAPTON 窓を透過した後に、空气中に設置したX線検出器で検出された。X線検出器は比例計数管で、電離ガスはPRガス (Ar90% + CH₄10%) であり、これを1気圧で流して用いた。また、比例計数管の印加電圧は+1800Vとした。入射窓のサイズは約1.0mm \times 1.0mm であり、空气中に設置したため、窓には薄膜を取り付けなかった。X線検出器とターゲットとの距離は3.96mであるから、水平方向に0.25 mrad、鉛直方向に0.25mradの角度にコリメートされたX線ビームとなる。エネルギー分解能は、X線エネルギー5.9keVにおいて20%であった。放射角度は、比例計数管そのものを図のように移動させることにより測定した。動かせる範囲としては、遷移放射の光軸に対して直角水平方向に-11~+11mmとした。

多層薄膜ターゲットからは遷移放射と同時に制動放射が発生する。この制動放射はバックグラウンドの原因になる。このことを考慮に入れるべく、多層薄膜ターゲットの下流に、軟X線遷移放射を吸収し高エネルギー制動放射を透過させる厚さ1mmのAl板を設置した。そのため実際の測定では、はじめにAl板を挿入してバックグラウンドのみを測定し、その後Al板を抜いて、バックグラウンドを含む遷移放射を測定、後者から前者を差し引くことにより遷移放射スペクトルとした。

今回作成した多層薄膜ターゲットは第1表のように6種類である。表中全体の厚さとは両端の薄膜間の距離を示し、平均薄膜間隔とは、全体の厚さから薄膜の総厚さを引き全間隔数で割ったものである。なお、スペーサー厚ランダムとは、薄膜間隔をランダムにすべく異なるスペーサーを挿入して作成したものである。従って薄膜間隔が $40\mu\text{m}$ のターゲット C_1 ： C_2 と薄膜間隔がランダムのターゲットEや、薄膜間隔が $80\mu\text{m}$ のターゲットDと薄膜間隔ランダムのターゲットEでスペクトルに差が生じれば、間隔ランダムのターゲットでは遷移放射の干渉条件にあわないために薄膜共鳴効果が起こっておらず、薄膜間隔一定の多層薄膜ターゲットでは遷移放射の干渉条件にあっており薄膜間共鳴効果が起こっているということが立証できる。

第1表 実験に用いた多層薄膜ターゲット。

番号	薄膜材質	薄膜厚	スペーサ厚	全体の厚さ	平均薄膜間隔	枚数
A	Kapton	$7.5\mu\text{m}$	$40\mu\text{m}$	—	—	2
B	Kapton	$7.5\mu\text{m}$	$80\mu\text{m}$	—	—	2
C_1	Kapton	$7.5\mu\text{m}$	$40\mu\text{m}$	$500\mu\text{m}$	$47\mu\text{m}$	10
C_2	Kapton	$7.5\mu\text{m}$	$40\mu\text{m}$	$500\mu\text{m}$	$47\mu\text{m}$	10
D	Kapton	$7.5\mu\text{m}$	$80\mu\text{m}$	$800\mu\text{m}$	$80\mu\text{m}$	10
E	Kapton	$7.5\mu\text{m}$	ランダム	—	—	10

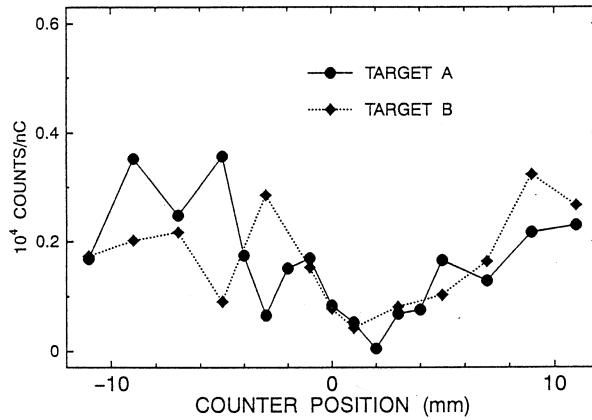
§ 4. 結果と考察

多層薄膜ターゲットに 130MeV の電子を照射し、比例計数管をX線の検出位置がビームラインの中心から $-11\sim+11\text{mm}$ の位置に来るように移動し、各多層薄膜ターゲットについて、その放射角ごとの遷移放射のエネルギースペクトルを測定した。ただし検出位置の符号は上流からみて右が正の値、左が負の値である。

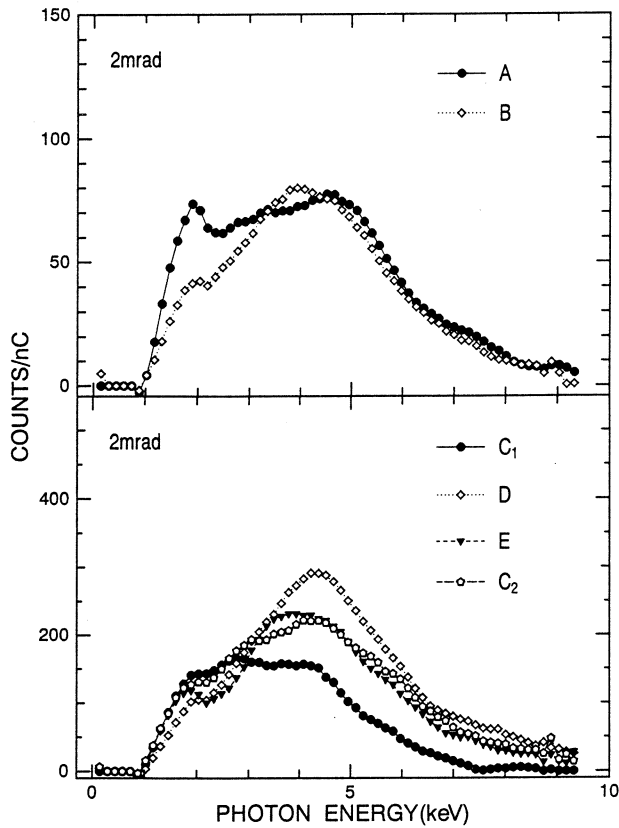
まず始めに、ビームの中心位置を確定する必要がある。このため得られたスペクトルを、エネルギー範囲が $1\text{keV}\sim 8\text{keV}$ で積分したカウント数を、比例計数管の検出位置に対してプロットし、スペクトルの対称性をみた。第4図にこれを示す。

横軸は検出位置、縦軸は積分したカウントを電子照射量 1nC で規格化したものである。なお、ターゲットについては、AとBについてのみ示す。この図から、検出位置が $+1\text{mm}$ 付近を通過していると結論づけた。以下に示すデータの検出位置及び放射角は、 $+1\text{mm}$ を電子ビームの中心 0mm 、 0mrad として、処理したものである。

次に得られた遷移放射のエネルギースペクトルの例を第5図に示す。横軸に光子のエネルギー、縦軸に 1nC で規格化したX線のカウント数を示す。なお、図中のアルファベットは、ターゲッ



第4図 検出位置に対する1~8 keVまでのカウント数の積分値。



第5図 遷移放射のエネルギースペクトル例。

トの種類を示し、第1表のとおりである。

薄膜間隔が40 μm で薄膜枚数が2枚と10枚のスペクトル中のピークを比較すると、10枚の

方が強度が高い、半値幅が狭いことが分かる。また $80\ \mu\text{m}$ ターゲットについても同様のことがいえる。しかし、薄膜枚数が10枚で、間隔が $40\ \mu\text{m}$ とランダムスペクトルを比較すると、ピークの半値幅は $40\ \mu\text{m}$ と狭いにも関わらず、強度がランダムの方が同じかまたは大きくなっている。理論上からは、間隔ランダムは遷移放射が干渉する条件に合わないため、間隔 $40\ \mu\text{m}$ よりも強度が高いことは考えられない。この原因としては、電子ビームの電流測定に用いたSEMとプラスチックシンチレーターの信頼性が低く、絶対的な電子ビーム照射量が測定できなかったことが考えられる。このため以下

のデータに対する考えとして、間隔ランダムとの比較においては、強度の比較はせずに、ピークの半値幅の比較にとどめる。

つぎに、各ターゲットについて各エネルギースペクトルのピークのエネルギー分解能(FWHM)を最小自乗法によりフィッティングして求めた値(%)を第2表に示す。表中- (ハイフン)で示したものはカウント数が少なく、ピーク幅が決定できないもの、あるいは時間の制約上測定を省いたものを示している。

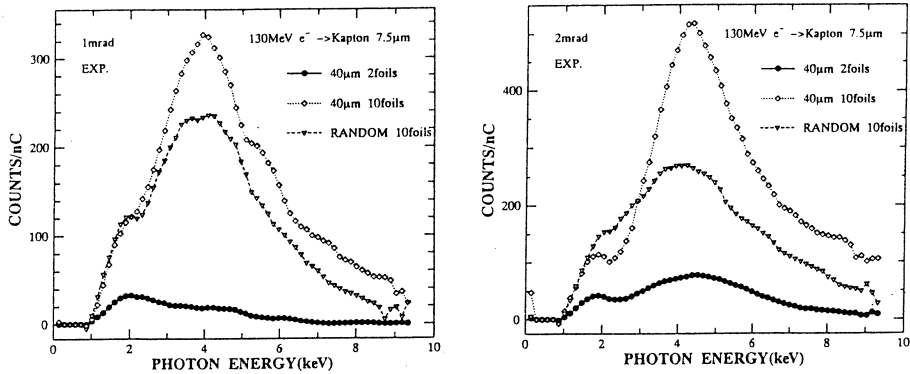
第2表 各スペクトルのピークのエネルギー分解能。

検出位置 (mm)	エネルギー分解能 (%)					
	A	B	C ₁	C ₂	D	E
-12	80	88	90	102	90	83
-10	81	85	88	110	90	88
-8	94	104	122	106	77	80
-6	103	92	92	121	88	96
-4	-	85	79	82	80	112
-2	-	86	66	72	93	90
-1	-	114	69	70	94	90
0	-	-	76	-	107	93
+2	-	87	90	-	56	99
+4	104	160	70	-	112	100
+6	84	129	167	72	91	108
+8	86	94	85	60	56	110
+10	88	96	-	74	93	110

薄膜枚数10枚の4つのターゲット(C₁, C₂, D, E)のうち、ターゲットC₁, C₂, Dは、スペーサー厚ランダムに比べて薄膜間共鳴の効果が增大していると考えられ、ターゲットEはスペーサー厚ランダムであるため、薄膜間共鳴の効果が消滅していると考えられる。したがって、ターゲットEの分解能はターゲットAやBのそれと同程度になることが考えられるが、実際そのとおりになっている。一方、スペーサー厚が一定のターゲットのデータにおいては、ターゲットA, B, Eのデータにおける分解能より小さくなっているものがあり、これらは、薄膜枚数増加による、薄膜間共鳴効果の増大したデータであるといえる。表では太字で示した。

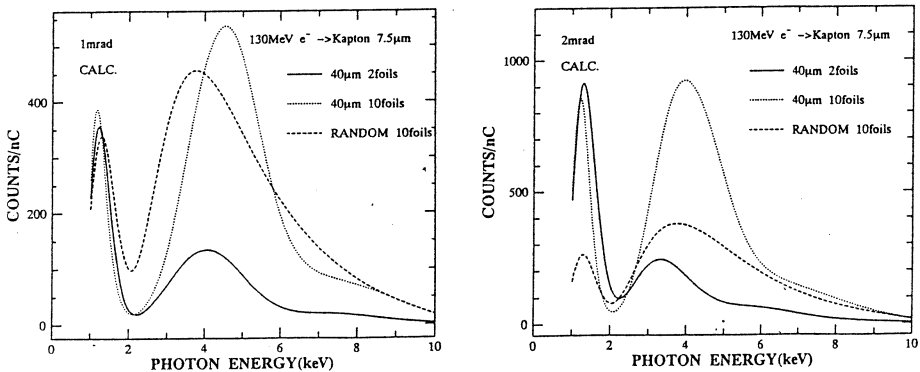
次に、薄膜間共鳴のよく現れているターゲット、放射角を選んで、これについて遷移放射のエネルギースペクトル中でのピーク強度および半値幅の比較をする。第6図は、ターゲットが薄膜間隔 $40\ \mu\text{m}$ で薄膜枚数が2枚(ターゲットA)、10枚(ターゲットC₂)、間隔ランダムで薄膜枚数において測定したものである。横軸が光子のエネルギー、縦軸が1 nCで規格化した

X線のカウントである。



第6図 放射角 1 mrad, 2 mrad における遷移放射のエネルギースペクトルの実験値。

これから両放射角において、薄膜間隔 $40\mu\text{m}$ で薄膜枚数が10枚のものは2枚のものに比べてピークの強度が増加しており、ピーク幅も狭くなっていることが分かる。つまり薄膜枚数増加による薄膜間共鳴効果が増大していることにより、X線が単色化していることを意味する。また、間隔ランダムとの比較において、10枚のものは、ピークの強度比較は前述のようにできないが、ピーク幅は10枚の方が狭く 2 mrad にいたっては、約30%狭いことが分かる。



第7図 放射角 1 mrad, 2 mrad における遷移放射のエネルギースペクトルの理論計算値。

第7図は、第6図で示した実験条件（電子のエネルギー130MeV、比例計数管の分解能20%、電子のビームサイズ $5\text{mm}\phi$ ）のもとに、カプトンや空気によるX線の吸収等を含めた理論計算によるエネルギースペクトルである。縦軸、横軸とも第6図と同様である。第6図の実験データと第7図の理論による計算を比較すると、放射角 1 mrad に関しては両者よく一致している。それに比べて、放射角 2 mrad に関しては、ピーク幅の傾向は両者よく一致しているのに対し、ピーク強度は、実験値は理論値の半分ほどしかない。この原因としては前述の電子照射量の絶

対的の測定が出来なかったこと、薄膜枚数増加による電子ビームの広がりを理論計算にいれなかったことなどが考えられる。

§ 5. ま と め

以前の実験から遷移放射の薄膜間共鳴効果、薄膜内共鳴効果の相違を確認できたため、薄膜枚数増加による、薄膜間共鳴効果の増大を確認する実験を行った。薄膜間隔が同じ ($40 \mu\text{m}$) で薄膜枚数が2枚、10枚の2つのターゲットと、薄膜間隔がランダム薄膜枚数が10枚のターゲットとを用いて遷移放射スペクトルの違いから薄膜枚数増加の効果を検討した。薄膜枚数2枚と10枚のターゲットのエネルギースペクトルの比較から、スペクトル中のピーク強度の増大とピーク幅の減少から、薄膜間共鳴効果の増大を確認できた。薄膜枚数10枚で、薄膜間隔 $40 \mu\text{m}$ のターゲットと薄膜間隔ランダムのターゲットとの遷移放射スペクトルの比較において、スペクトル中のピークの強度の定量的な比較は出来なかったが、ピーク幅が減少していることから、薄膜間共鳴効果が確認できた。

参 考 文 献

- 1) M. J. Moran: Nucl. Instr. and Meth. **A242** (1986) 335.
- 2) T. Tanaka *et al.*: Res. Rep. Lab. Nucl. Sci., Tohoku Univ. **26** (1993) 330.
- 3) T. Tanaka *et al.*: Nucl. Instr. and Meth. **B**, in press.
- 4) M. J. Moran *et al.*: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 1223.
- 5) M. A. Piestrup *et al.*: Phys. Rev. **A32** (1985) 917.
- 6) M. L. Cherry *et al.*: Phys. Rev. **D10** (1974) 3594 .

パラメトリックX線の角度広がりの測定(I)

広島大理学部, 核理研*

遠藤一太・堀口隆良・小林隆

中里俊晴*・小山田正幸*

高嶋圭史・浦澤茂一*・山川達也*

§ 1. はじめに

パラメトリックX線(PXR)とは, 1985年に発見された新しい放射現象であり¹⁾, 相対論的電子が結晶に入射した時に, あたかもX線が入射した時のように単色のX線がブラッグ条件を満たす方向及びエネルギーで放射される現象である。

最近の東京大学原子核研究所の電子シンクロトロンを用いた実験により, 角度広がりの結晶厚依存性が理論による予想値から大きくずれていることが分かった²⁾。

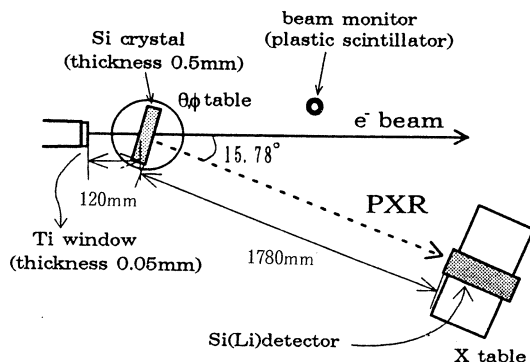
PXRの角度広がりは, 入射電子のエネルギーにほぼ反比例している。そのため, 低い入射電子エネルギーでのPXRの測定を行い, 理論式の不十分な部分を明らかにすることが実験の最終的な目的である。

今回は, この目的を達成するための予備的な実験であり, バックグラウンドの調査とPXRの同定を行った。

§ 2. 実験方法

実験装置の配置を第1図に示す。実験はSSTRからのエネルギー130MeVの連続電子ビームを, 厚さ0.5mmのSi結晶に照射して行った。ブラッグ角(θ_B)は7.89度, Si結晶の(111)面からこの角度に放射されるPXRのエネルギーは, 約14.4keVである。Si結晶は, ゴニオテーブル上に固定してあり, 垂直軸及び水平軸のまわり(θ, ϕ 方向)の回転をリモートコントロールできるようにした。Si(Li)検出器は, 電子ビーム及び結晶と同じ水平面内で電子ビームに対して15.78度の方向, 結晶からの距離が1780mmの場所に置き, PXRに対して垂直に移動できるようにした。Si(Li)検出器の大きさは, 直径16mm奥行き5.7mmであり, 分解能は⁵⁶Feの5.9keVのX線に対して約220eVである。バックグラウンドに対するシールドとして検出器の側面を厚さ5mmの鉛板で覆った。

測定は, Si(Li)検出器に鉛製の幅2mm, 長さ70mmの縦長及び横長のスリットをつけて,



第1図：実験装置の配置。

結晶の角度及び検出器の位置を移動しながら行った。

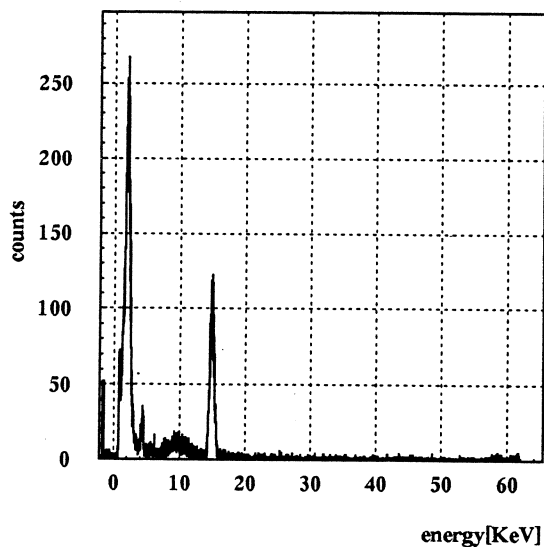
電子ビーム強度は150pA以下とした。そのため、SEMは使用できず、プラスチックシンチレーターを第1図のように配置して、散乱電子などを計数し、ビーム相対強度計とした。

§ 3. 測定結果及び考察

第2図は、検出器の前方にスリットなど何も置かず測定したスペクトルであり、第3図は、幅2mm、厚さ5mmの縦長のスリットを通して測定したスペクトルである。第3図では、低エネルギーのスペクトルが現れていないことから低エネルギーのバックグラウンドは、検出器の前方から来ていることがわかる。

第3図には、(111)面からのPXRの鋭いピークが現れており、43keV付近に(333)面からの放射も確認できる。

第4図は、第3図の(111)面からのスペクトルの部分を拡大したもの、第5図は幅2mm、厚さ5mmの横長のスリットを通して測定したスペクトルの(111)面からの部分を第4図と同じエネルギースケールでプロットしたものである。PXRの運動学的条件は、 $\omega = E - E'$ 、 $\mathbf{p} = \mathbf{p}' + \mathbf{k} + \mathbf{h}$ である。ここで \mathbf{h} は結晶の逆格子ベクトル、 (ω, \mathbf{k}) はPXR



第2図：PXRスペクトル。

のエネルギー，運動量であり， (E, \mathbf{p}) ， (E', \mathbf{p}') は初期及び終状態の電子のエネルギー，運動量である。これより

$$\omega = \frac{2\mathbf{p} \cdot \mathbf{h} - \hbar^2}{(E + \mathbf{p} \cdot \mathbf{n} - \hbar \cdot \mathbf{n})}$$

の関係が導かれる。 θ_x ， θ_y を θ_B を基準にした水平角，及び垂直角とし，適当な近似をすると，PXRのエネルギーとPXRの発生角の関係は，

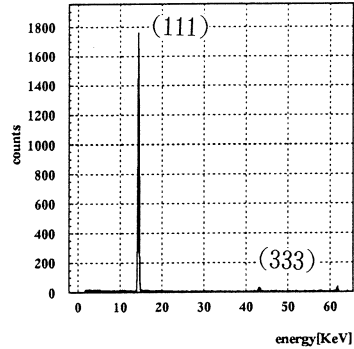
$$\omega \sim \omega_B \left[1 - \frac{\theta_x}{\tan \theta_B} \right]$$

となり， θ_y にはよらない。 ω_B は θ_B に対応したブラッグ条件をみたすX線のエネルギーである。また，PXRの強度分布は

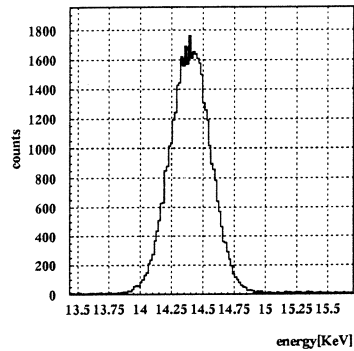
$$\frac{\theta_x^2 \cos^2 2\theta_B + \theta_y^2}{(\theta_x^2 + \theta_y^2 + \theta_{ph}^2)^2}$$

に比例する³⁾。 θ_{ph} は結晶の性質も考慮した角度広がりに関するパラメーターである。これによると，今回の検出器の位置では，検出器の窓の範囲に入射するPXRの強度は，ほぼ一定である。したがって横長スリットを用いた場合，縦長スリットよりも θ_x の広い範囲を測定することになり，第3図よりも第4図の幅が広くなる。

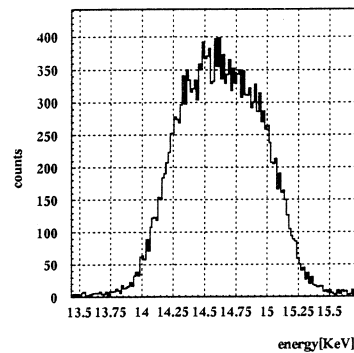
第6図及び第7図は，結晶の角度 (θ) 及び検出器の位置 (x) を変化した時の，ブラッグ角からのずれに対するPXRのエネルギーをプロットしたものである。実線はPXRの運動学から得られる理論



第3図：PXRスペクトル。検出器の直前に幅2 mm厚さ5 mmの縦長のスリットを取り付けた。



第4図：PXRスペクトル。第3図の(111)からの放射の部分拡大したもの。



第5図：PXRスペクトル。検出器の直前に幅2 mm厚さ5 mmの横長のスリットを取り付けて測定したものの，(111)からの放射の部分拡大したもの。

曲線であり、第6図の点線は、X線がブラッグ反射した場合の曲線である。これから、我々が測定したX線は結晶中で発生した制動放射がブラッグ反射したものと異なるものであることがわかる。

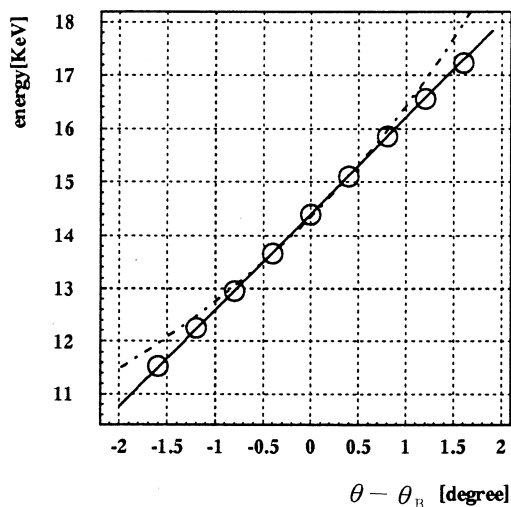
§ 4. まとめ

P X Rに対するバックグラウンドは、検出器を鉛板で囲むことによって簡単に防ぐことができた。

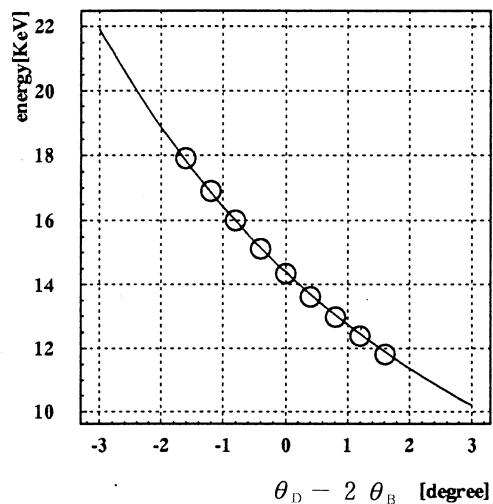
Si単結晶からのP X Rのスペクトルを、確認することができた。

P X Rの絶対強度と角度広がり測定するためには、低強度域で動作する電子ビーム強度モニターを設置する必要がある。

最後に、本実験を行うに当たり、ご協力いただいた核理研の皆様に深く感謝いたします。



第6図：ブラッグ角からのずれとP X Rのエネルギーの関係。検出器の位置は固定して結晶を垂直軸のまわりに回転させたもの。横軸は、ブラッグ角7.89度を0として正の方向がブラッグ角が小さくなる方向。



第7図：ブラッグ角方向からのずれとP X Rのエネルギーの関係。結晶はブラッグ角7.89度に固定して検出器を水平に、P X Rと垂直な方向へ水平に移動させた。横軸は、検出器のブラッグ角7.89度でのP X Rの中心を0として、正方向がビームラインから遠くなる方向。

参 考 文 献

- 1) S. A. Vorob'ev, B. N. Kalinin, S. Pak and A. P. Potylitsyn : JETP Lett. **41** (1985) 3.
- 2) I. Endo *et al* : HUPD-9319, July, 1993.
- 3) I. D. Feranchuk and A. V. Ivashin : J. Phys. (Paris) **46** (1985) 1981.

V. 加 速 器 稼 働 状 況

平成5年度マシン報告

マシングループ

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

概 況

今期も維持費の効果的使用のため夏期の2ヶ月間の運転停止をおこない、電力使用量と従量料金の軽減を図った。また、世界的なフロン使用禁止の広がりですべて空調用冷凍機（フロン使用）が更新の候補になり、マシンタイム採扱は前期に121シフト、更新の詳細が判った後期に116シフト採扱した。実験課題採扱数は237+2*シフト（前年度は200シフト）であった。

冷凍機工事で実験室の空調ができない約1ヶ月間、電力の制約もなくライナックの各種工事をおこなった。空調の制約を受ける数ヶ月は、調和機を整備しクライストロン室温度を外気導入で温度制御ができるようにした。室温上昇時は、ライナック運転の一時停止の措置をとることにした。さいわい寒い時期だったので温度制御はうまくいき、ライナック運転は支障なくできた。本体室は再循環方式で室温が高めであったが、支障はなかった。

ドアインターロックは、V系ドアの開閉が現場でわかるように、ドアインターロック電源（NFB）を常時入りにしていたが、ビームコース選択時に度々ロックする頻度が多くなった。このため、確認の時間がとられるのでドア開閉状態を表示する装置を設置した。

真空系はイオンポンプ電源の保護回路の作動が多いが、イオンポンプ本体のガス放出や高圧ケーブルの絶縁不良だけでなく、ほかに真空導波管フランジ接続部の微少リークも多く見つけた。また、II・III系の真空ダクト部分のリーク箇所に応急処置を施した。これらの真空リークの原因はダクト本体と真空部品（真空導入端子・フランジ接続部・金属ガスケット）の劣化によるものである。真空度は処置前と比べて加速管列A部とII・III系部とも一桁程度改善された。そのほかに、リークデテクターの感度が悪く発見できない箇所もあり、測定装置の整備が必要である。その後も保護回路の作動があり希ガス対策に他のポンプも考えている。不良ケーブルは部分交換しており、真空系の全体の更新を進める必要がある。

電子銃の交換後、真空の汚れによる電子銃の内部放電は、たまに起こっているが支障はなく、電子銃も汚れなくなった。この間の電子銃の交換は4回で、真空改善の加速管列の45℃程度の

加熱運転（通常は40℃）は1回であった。

パルサーのシャットダウン回数は少なく、PFNコンデンサーの絶縁不良とVAPOダインの温度異常表示による停止が主である。全体として安定なライナックの運転が得られている。サイクロtronとクライストロンは、各々1本購入した。

クライストロンパルサーに使用しているクライストロンの形式が変わり、定格の高周波出力はアップしている。全パルサーのクライストロンを変え、電圧を上げられると多少はエネルギーがアップすると思われる。

ライナックの性能は、クライストロンパルサーのDe' Qingを動作させた状態で第1実験室に65MeV、第2実験室に220MeV程度のエネルギービームを供給できる。

マシンタイム実施状況

電子機器や電源を同じ製品、同様な規格品を使用することで、予備品が僅かでも故障時の復旧に手間取らないで行える状況ができた。ライナックの幾つかの基本部分の故障があったが実験中止には至らなかった。

夏期停止期間は、昨年と同様に本体室とクライストロン室で除湿器を稼働させ湿度対策とした。実験再開後は機器に影響がなかった。

積雪時のクライストロン室の水漏れ箇所は、三シーズン過ぎたが未だ修理はされていない。幸いにも事故もなく無事に運転できているが、安全や故障を考えると、実験中止した方が良いのではないかと思う。

冷暖房機の更新にともなって、空調保守契約が変わりライナック停止時は保守要員の勤務外のため実験責任者が空調機器の停止を行なうことにした。このため、土、日曜日、祭日の実験は要員の制約が外れ、エネルギー変更がなければ長い連続実験が可能になった。定期点検日や停止日は機器の調整・修理を行う貴重な日となっている。

第1表にマシンタイム実施状況を示す。

保 守

パルサー関係は、シャットダウンの回数の多いクライストロンパルサーの点検で高圧ケーブル2本とシャントダイオードの異常を見つけ事前に交換修理した。クライストロン集束コイルやクライストロン冷却水の水漏れ早期発見のため点検をおこなっている。また、パルサーのVAPOダイン温度センサーは誤差が大きくなり、VAPOダイン故障表示で停止する頻度が多

第1表 平成5年度 マシンタイム実施状況。

課 題	前 期 (H5.4.16~H5.10.30)		後 期 (H5.11.1~H6.5.13)		平成5年度	
	割 当	実 施	割 当	実 施	割 当	実 施
ee't (玉 江)	17-9 [□]	8	0+14 ^{**}	14	22	22
ee'p (須 田)	5-2 [□]	3			3	3
ee'n (斎 藤)	15	15	21	21	36	36
ee'x (笠 木)	4	0	+4 [△]	4	4	4
e, d (上 野)	3	0	+3 [△]	3	3	3
¹³ C(γ, p) (寺 沢)	10	10	4	4	14	14
¹⁶ O(γ, p) (Thompson)	8+10 [▽]	18	10-10 [▽]	0	18	18
γ, π ⁺ (坪 田)	6	6	9	9	15	15
γ, f (Arruda-Neto)	0+7 [▽]	7	7-7 [▽]	0	7	7
ee'p (田 中)			8	2	8	2
アイソマー (大 槻)	2 [!]	0	+2 [!]	2	2	2
(原子核)	(68+8)	(67)	(59+6)	(43+16)	(132)	(126)
物性・放射化学	3	2	2	1	5	3
ND	12	12	10	10	22	22
放射光	13+6 [!]	13+6 [!]	14	14	33	33
RI	16+1 [*]	15	18+1 [△]	15	35	30
加速器・測定器	9+5 [!] -1 [□]	5+5 [!]	13+1 [*] +1 [△]	15	28	25
合 計	121+1 [*] +18	114+11	116+1 [*] +6	94+20	265	239
課題採択シフト数	121+1 [*]		116+1 [*]		237+2 [*]	

注) ここでいう平成5年度はH5.4.16からH6.5.13までの課題採択である。

! H4後期分繰越

▽ H5後期分先取実施

* 緊急課題

** H6前期分先取実施

□ H4後期に先取実施

△ H5前期分繰越

H5年度返上5シフト

H6年度繰越10シフト

くなった。温度センサーは、経年変化が大きいのでセンサー（5台）を交換した。

加速管列冷却水の流量計の故障が多々起きている。原因は、パドルの破損やチャタリングの感知、対策は、水質・構造・ソフトウェアなどいろいろあり、良い流量計は見つかっていない。

ほぼ同時期に分析電磁石電源のチョークコイル2個の焼損と分析電磁石切替スイッチの異常加熱が起こった。電源の応急手当後、運転開始後に磁場測定の表示が度々変動した。このため分析電磁石電源に新チョークコイル取り付け調整と性能チェック（測定結果：安定度 $5.5 \times 10^{-5} / 3.4\text{Hr}$ ）を依頼した。現在磁場測定の表示に変動は見られない。また、切替スイッチは、電磁開閉器を用いた方式で製作を依頼した。

立体回路関係は加速管列A部のRF窓の交換を実施した（前回は1985年）。加圧系は、導波管や移相器、RF窓フランジ部にSF6ガス（6弗化硫黄ガス）漏れのがあり、修理や交換をした。そろそろ導波管を系統別に更新する必要があると思われる。現状では、SF6ガスの供給が多くなったらリークテストをおこない、交換・修理をおこなっている。

真空系では、加速管列A部のイオンポンプ本体（8台）とポンプ電源の交換を実施した。湿度が低い時期の工事だったので加速管と真空への影響を最小限に抑えられた。イオンポンプ電源は、高電圧をポンプ2台に供給し間に合わせることにした。

冷却系では、配管のピンホールによる漏水のため、マシクレーンタワー給水配管の給水バルブ以降を交換した。VAPOダインの容器は、洗浄中に穴が開いたものと使用中にピンホールが生じたものがあり、そろそろ更新する時期にきている。加速管冷却水ポンプの動作は電動式ゲートバルブを自動開閉にして良好である。また、長年使用しているWG循環ポンプの軸封部での水漏れが酷くなり、ポンプを緊急交換（85万円）した。これら両ポンプの更新で純水の消費量も少なくなり、純水製造装置の稼動も落ちついている。

制御関係では、制御用計算機の停止が減ったように見える。しかし、停止の原因はまだ不明である。

予算の制約で分析スリットとライナックのクーリングタワーは今年も更新できなかった。昨年同様大きな設備の更新は進展していないので、これらの故障は復旧に時間を要する。さらに、基本的な部分で劣化が進んでいる。

ライナック運転の条件に通常と異なる希望がある場合は、早めに相談してください。また、放射線被爆の可能性のある作業は、「マシン停止後24時間以上おいてから行う」のが原則になっています。

平成5年度の主な工事の内容は以下のとおりです。

4月工事

冷却系 加速管の冷却水ポンプの交換。
純水製造装置のバルブ・配管の工事，純水補給。

6月工事

冷却系 クライストロン冷却系ベイボグイン洗浄。
1号機の釜に穴が開いたが応急修理。予備はある。

夏期工事

立体回路 A部RF窓 VSWR測定。
SF6ガス漏れのため，移相器，曲がり導波管，電力分割器交換。

冷却系 純粋製造装置のろ過器，原水ポンプの修理。
冷却系制御盤内改修工事。
純水製造装置活性炭交換，WG系フィルター交換。
加速管用排水バルブ交換本体室。

WG循環ポンプ（軸封部から水漏れ）緊急交換工事。

クーリングタワー給水配管（本管の給水バルブ以降より）交換。

制御系 BD系電源制御インターフェース交換，プログラムテスト。

11月工事

立体回路系 A部RF窓交換（窓8個）。

入射系 電子銃交換。ガンエージング。

真空系 イオンポンプ8台（A部）交換。

加速管列真空エージング。

ビーム輸送系 分析電源修理。分析電磁石電源の性能試験。
安定度 $5 \times 10^{-5} / 2.3\text{hr}$ 。

冷却系 冷却水関係の純水製造，試運転。

（年末）

冷却系 クーリングタワー系の凍結防止のため水抜き。
運転停止のため交流電源供給の停止。

（年始）

冷却系 クーリングタワー系の水入れ。

運転準備のため交流電源供給。(冷凍機潤滑油予備加熱)

3月工事

パルサー関係	クライストロン (PV2014B) の1号機への取付とエージング。
真空系	加速管列真空リークテスト。 導波管・加速管・真空ダクトフランジ部分での微小リーク止め。

VI. 論 文 リ ス ト

論文リスト

核理研共同利用の成果を核理研研究報告以外の学術雑誌に掲載された論文（1993年1月～12月）の題目を収録しました。

I 原子核物理

1. The (γ , p) and (γ , α) Cross Sections for $^{62, 63}\text{Cu}$ in the Giant Dipole Resonance Region.
T. Tanaka, M. Hirooka, M. Sugawara, T. Tamae and H. Tsubota:
Nucl. Phys. **A559** (1993) 317.
2. Observation of Pion-Related Effects in the Photofission of Preactinide Nuclei.
J. D. T. Aruda-Neto, T. Saito, M. Sugawara, T. Tamae, H. Miyase,
K. Abe, K. Takahisa, O. Konno and M. Oikawa: Phys. Rev. **C48** (1993) 1594.

II 放射化学

1. Adsorption Behavior of Cesium and Strontium on Synthetic Zeolite P.
H. Mimura and K. Akiba: J. Nucl. Sci. Technol. **30** (1993) 436.
2. Removal of Heat-Generating Nuclides from High-Level Liquid Wastes through Mixed Zeolite Columns.
H. Mimura, K. Akiba and H. Igarashi: J. Nucl. Sci. Technol. **30** (1993) 239.
3. Production of Microsectioning Apparatus for Diffusion Study and Preliminary Measurement of Self-Diffusivity of Copper in Low Temperature Range.
S. I. Fujikawa and K. I. Itagaki: Defect and Diffusion Forum **95-98** (1993) 741.
4. Analysis of Interdiffusion Experiments in Al/Mn Artificial Multilayered Films and Impurity Diffusion of Manganese in Aluminum.
S. I. Fujikawa and Y. Nishida: Defect and Diffusion Forum **95-98** (1993) 617.

III 加速器・測定器

1. Coherent Transition Radiation at Submillimeter and Millimeter Wavelengths.

T. Takahashi, Y. Shibata, F. Arai, K. Ishi, T. Ohsaka, M. Ikezawa,
Y. Kondo, T. Nakazato, S. Urasawa, R. Kato, S. Niwano and M. Oyamada:
Phys. Rev. E **48** (1993) 4674.

2. Coherent Radiation at Submillimeter and Millimeter Wavelengths.

M. Oyamada, R. Kato, T. Nakazato, S. Urasawa, T. Yamakawa,
M. Yoshioka, M. Ikezawa, K. Ishi, T. Kanai, Y. Shibata and T. Takahashi:
Proc. of the 1993 Particle Acc. Conf. Washington D. C., May. 17-20 (1993)
1614.

3. Suppression of Coherent Synchrotron Radiation in Conducting Boundaries.

R. Kato, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Yamakawa,
M. Yoshioka, M. Ikezawa, K. Ishi, T. Kanai, Y. Shibata and T. Takahashi:
Proc. of the 1993 Particle Acc. Conf. Washington D. C., May. 17-20 (1993)
1617.

4. Wire Scanner Beam Size Monitor for ATF.

H. Hayano, M. Kikuchi, T. Naito, J. Urakawa, M. Yoshioka, T. Nakazato,
M. Oyamada, S. Urasawa and T. Yamakawa:*Proc. of the 9th Symposium
on Acc. Sci. Technol, Tsukuba, Aug. 25-27* (1993) 354.

5. Design of Profile Monitor for ATF.

T. Naito, H. Hayano, M. Kikuchi, J. Urakawa, M. Yoshioka, M. Oyamada,
S. Urasawa, T. Nakazato and T. Yamakawa:*Proc. of the 9th Symposium
on Acc. Sci. Technol, Tsukuba, Aug. 25-27* (1993) 373.

6. Suppression and Enhancement of Coherent Synchrotron Radiation in Conducting Boundaries.

R. Kato, T. Nakazato, M. Oyamada, S. Urasawa, T. Yamakawa,
M. Yoshioka, M. Ikezawa, K. Ishi, T. Kanai, Y. Shibata and T. Takahashi:
Proc. of the 9th Symposium on Acc. Sci. Technol, Tsukuba, Aug. 25-27
(1993) 419.

7. The Tohoku University Stretcher-Booster Ring.

M. Oyamada and Working Group:*Proc. of the 9th Symposium on Acc. Sci.
Tehcnol, Tsukuba, Aug. 25-27* (1993) 486.

8. Coherent Radiation Using Electron Linac.

M. Oyamada, T. Nakazato, S. Urasawa, R. Kato, M. Yoshioka,
T. Yamakawa, M. Ikezawa, Y. Shibata, K. Ishi, T. Takahashi, T. Kanai
and Y. Kondo: *Proc Japan-China Joint Symposium on Acc. Nucl. Science
and Their Applications. Osaka. Oct. 18-20 (1993)* 214.

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 究 報 告 第27卷 第1号

1994年6月発行

発行所 東北大学理学部附属原子核理学研究施設
 仙台市太白区三神峯1-2-1 (郵便番号982)
 電話 022-245-2151 (代)

印刷所 株式会社 東北プリント
 仙台市青葉区立町24番24号
 TEL (263) 1166 (代)

RESEARCH REPORT OF
LABORATORY OF NUCLEAR SCIENCE
TOHOKU UNIVERSITY

Volume 27 Number 1 June 1994

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