



JAEA-Conf

2007-001



JP0750068

日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関する  
ワークショップと

日本原子力研究開発機構関西光科学研究所  
第7回光量子科学研究シンポジウム論文集

2006年5月10日-12日、木津

Proceedings of the Joint Meeting of  
Ultrafast Pulse High Intensity Laser Research Collaboration and  
JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research  
May 10th-12th, 2006, Kizu, Kyoto, Japan

ワークショップとシンポジウム事務局編集

Secretariat of Joint Meeting

関西光科学研究所

Kansai Photon Research Institute

March 2007

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Conf

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。

本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。

なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>)  
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター\*では実費による複写頒布を行っ  
ております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4

日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課

電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

\*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency

Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to

Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,

Japan Atomic Energy Agency

2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップと  
日本原子力研究開発機構関西光科学研究所第7回光量子科学研究シンポジウム  
論文集

2006 年 5 月 10 日－12 日、木津

日本原子力研究開発機構  
関西光科学研究所  
ワークショップとシンポジウム事務局編集

(2007 年 1 月 4 日 受理)

平成 18 年 5 月 10 日～12 日の3日間にわたり、「日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップ」と「日本原子力研究開発機構関西光科学研究所第7回光量子科学研究シンポジウム」を関西光科学研究所木津地区において共同開催した。本論文集にはそこで行われた講演および他機関と実施した平成 16 年度、17 年度の協力研究・共同研究(原研当時)の成果発表を含むポスター発表のうちから、論文として投稿されたものを収録している。

Proceedings of the Joint Meeting of  
Ultrafast Pulse High Intensity Laser Research Collaboration and  
JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research  
May 10th-12th, 2006, Kizu, Kyoto, Japan

Secretariat of Joint Meeting  
Kansai Photon Research Institute  
Japan Atomic Energy Agency  
Kizu-cho, Souraku-gun, Kyoto

(Received January 4, 2007)

The Joint Meeting of Ultrafast Pulse High Intensity Laser Research Collaboration and JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research was jointly held at Kansai Photon Research Institute, Japan Atomic Energy Agency (JAEA-KPSI) in Kizu, Kyoto on May 10-12, 2006.

This report consists of contributed papers for the speeches and poster presentations including joint research and cooperative research performed in FY2004 and FY2005 with Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI).

Keywords: Laser, Collaboration, Korea, China, Ultrafast Pulse High Intensity Laser, Advanced Photon, X-ray, Free Electron Laser, Laser Acceleration, Simulation



## 目 次

1. はじめに.....	1
2. 概要.....	2
3. 日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップ	
3.1 Energetic electron beam and proton beam generations with the APRI ultrahigh-intensity Ti:sapphire laser system.....	17
Do-Kyeong KO (韓国光州科学技術院光量子科学研究所) 他	
3.2 Development of coherent x-rays in the APRI.....	23
HyungTaek KIM (韓国光州科学技術院光量子科学研究所) 他	
3.3 Recent activities on high field physics in the Institute of Physics, CAS.....	27
ZhengMing SHENG (中国科学院物理研究所) 他	
3.4 Laser pump probe and related Asian Activities.....	38
田中 和夫 (大阪大学) 他	
3.5 Nuclear photon science with inverse Compton photon beam.....	46
藤原 守 (大阪大学)	
3.6 Recent progress on high energy particle generation at CRIEPI.....	58
大石 祐嗣 (財) 電力中央研究所) 他	
3.7 Characterization of a proton beam driven by a high-intensity laser.....	62
匂坂 明人 (原子力機構) 他	
3.8 Study of x-ray emission enhancement via high contrast femtosecond laser interacting with solid foil.....	66
陳 黎明 (原子力機構) 他	
4. 第7回光量子科学研究シンポジウム 講演	
4.1 高いコヒーレンスをもつ軟 X 線レーザーを利用した新固体分光法の構築.....	73
並河 一道 (東京学芸大学) 他	
4.2 回折格子の物理光学的回折効率解析手法開発とその利用【17-共 03】【16 -共 03】.....	84
宮内 真二 (株) 島津製作所) 他	
4.3 0.88 keV 用雲母結晶偏光子を用いた軟 X 線光源の偏光評価.....	88
今園 孝志 (原子力機構) 他	
4.4 新型転換炉ふげん発電所の廃止措置とレーザー技術への期待.....	92
清田 史功 (原子力機構)	
4.5 強光子場中での電子遷移確率の位相制御【17-協 13】【16-協 11】.....	96
横山 啓一 (原子力機構) 他	
4.6 原子力機構エネルギー回収リニアック高出力自由電子レーザーの応用.....	100
西森 信行 (原子力機構) 他	
4.7 Laser-acceleration of high energy protons: study of acceleration mechanisms and beam handling.....	104
Julien S. FUCHS (仏国エコールポリテクニークパリ第六大学) 他	
4.8 Proposed development of novel diagnostics for intense, ultrafast laser-plasma experiments at JAEA-KPSI.....	115

	Paul R. BOLTON (米国スタンフォード大学スタンフォード線型加速器センター) 他	
4.9	テラワット・フェムト秒レーザーによる高強度テラヘルツ波の発生【17-協03】【16-協19】	129
	菜嶋 茂喜 (大阪市立大学) 他	
4.10	EUV 光源のシミュレーションモデル構築	133
	佐々木 明 (原子力機構)	
4.11	エネルギー回収型リニアックによる次世代光量子源	137
	羽島 良一 (原子力機構) 他	
5.	第7回光量子科学研究シンポジウム	
	平成16、17年度協力・共同研究ポスター発表 (【 】内は協力・共同研究課題番号)	
5.1	半導体レーザー励起超高ピークレーザーの研究開発【16-協03】	143
	西岡 一 (電気通信大学) 他	
5.2	Target positioning and composition in high-energy proton production by the laser-solid interaction【16-協21】	147
	和田 芳夫 (大阪大学) 他	
5.3	エネルギー回収型ライナックを用いた高出力コヒーレント・テラヘルツ放射光の観測【17-協01】	151
	高橋 俊晴 (京都大学) 他	
5.4	X線レーザーにおけるプラズマ媒質の増幅利得に関する数値シミュレーションによる研究【17-協02】【16-協05】	155
	錦野 将元 (原子力機構) 他	
5.5	コヒーレント X 線レーザー照射による Xe クラスターの光吸収・電離過程の解明【17-協04】【16-協07】	159
	難波 愼一 (広島大学) 他	
5.6	レーザープラズマ X 線顕微鏡による細胞内小器官の可視化【17-協05】	163
	保 智己 (奈良女子大学) 他	
5.7	ナノスケール軟 X 線分光系の高検出効率化に関する研究【17-協06】【16-協22】	167
	寺内 正己 (東北大学) 他	
5.8	短周期多層膜の構造評価と構造制御—高エネルギービーム照射安定性—【17-協07】【16-協08】	171
	大貫 愼明 (北海道大学) 他	
5.9	コバルトナノ多層膜の構造と熱的安定性【17-協07】【16-協08】	174
	大貫 愼明 (北海道大学) 他	
5.10	偏光プラズマ分光—再結合プラズマの軟 X 線領域時間分解偏光計測—【17-協12】【16-協18】	178
	岩前 敦 (京都大学) 他	
5.11	亜鉛型色素を持つ新規な光合成細菌の反応中心における初期電子移動ダイナミクス【17-協15】【16-協15】	181
	柴田 穰 (名古屋大学)	
5.12	超短パルスレーザーを用いた高輝度短パルス X 線の発生と固体表面からの高次高調波発生分光学的研究【17-協17】【16-協17】	185
	鈴木 将之 (東京大学) 他	
5.13	位相回転によるレーザー生成陽子のエネルギーピーク形成【17-協18】【16	

一協 12】 .....	189
野田 章 (京都大学) 他	
5.14 表面活性化手法による光学素子接合技術の開発【17-共 02】 【16-共 05】 .....	193
杉山 僚 (原子力機構) 他	
5.15 レーザープラズマ EUV 光源の概要【17-共 04】 【16-共 04】 .....	197
遠藤 彰 (ギガフォトン (株)) 他	
5.16 高輝度フェムト秒レーザー照射による新規材料創生【17-共 06】 【16-共 11】 .....	201
神谷 信雄 ( (株) 豊田中央研究所) 他	
6. 第7回光量子科学研究シンポジウム ポスター発表一般	
6.1 Design of a high efficiency grazing incidence monochromator with multilayer coated laminar gratings for the 1-8 keV region .....	207
小池 雅人 (原子力機構) 他	
6.2 ガス中 PLD 法によるシリコンカーバイド薄膜の生成過程に関する研究 .....	211
佐伯 盛久 (原子力機構) 他	
6.3 振動励起を用いた選択的化学結合切断 .....	215
赤木 浩 (原子力機構) 他	
6.4 重粒子線の線量分布に対する電荷数の役割 .....	219
森林 健悟 (原子力機構)	
6.5 高強度波形整形レーザーパルスによるエタノールの選択的化学結合切断 .....	223
板倉 隆二 (原子力機構) 他	
6.6 1-8 keV 領域用多層膜反射鏡の生成と評価 .....	225
石野 雅彦 (原子力機構) 他	
6.7 真空中における BN ターゲットからのレーザーアブレーションプラズマの特性 .....	229
大場 弘則 (原子力機構) 他	
6.8 斜入射励起法による X 線レーザーの高効率化 .....	233
長谷川 登 (原子力機構) 他	
6.9 Observation of density dip in a pre-formed plasma : Toward axial pumping x-ray laser .....	237
河内 哲哉 (原子力機構) 他	
6.10 レーザー/CVD ハイブリッド制御法によるアドバンスセラミックス合成 .....	241
山内 俊彦 (原子力機構) 他	
6.11 Nuclear parity violation in photo-nuclear resonance scattering at SPring-8 .....	245
川瀬 啓悟 (大阪大学) 他	
6.12 透明素材のレーザーによる電子励起過程の第一原理計算 .....	249
乙部 智仁 (原子力機構) 他	
6.13 言語情報技術を活用し技術資料・論文からデータベースを構築するソフトウェア開発 .....	252
佐々木 明 (原子力機構) 他	
6.14 Simultaneous imaging with a proton beam and an x-ray driven by a fs intense laser .....	256

織茂 聡（原子力機構）他

付録 出席者名簿.....	259
---------------	-----

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Outline .....	2
3. Japan-Korea-China Trilateral Workshop on Ultrashort Pulse High Intensity Laser Research Collaboration	
3.1 Energetic electron beam and proton beam generations with the APRI ultrahigh-intensity Ti:sapphire laser system.....	17
Do-Kyeong KO (APRI, GIST, Korea) et al.	
3.2 Development of coherent x-rays in the APRI.....	23
HyungTaek KIM (APRI, GIST, Korea) et al.	
3.3 Recent activities on high field physics in the Institute of Physics, CAS	27
ZhengMing SHENG (IOP, CAS, China) et al.	
3.4 Laser pump probe and related Asian activities .....	38
Kazuo A. TANAKA (Osaka Univ.) et al.	
3.5 Nuclear photon science with inverse Compton photon beam.....	46
Mamoru FUJIWARA (Osaka Univ.)	
3.6 Recent progress on high energy particle generation at CRIEPI.....	58
Yuji OISHI (CRIEPI) et al.	
3.7 Characterization of a proton beam driven by a high-intensity laser .....	62
Akito SAGISAKA (JAEA) et al.	
3.8 Study of x-ray emission enhancement via high contrast femtosecond laser interacting with solid foil .....	66
Liming CHEN (JAEA) et al.	
4. JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research - Speeches	
4.1 A novel solid state spectroscopy by use of plasma based x-ray laser .....	73
Kazumichi NAMIKAWA (Tokyo Gakugei Univ.) et al.	
4.2 Development of simulation methods for analyzing grating diffraction efficiency based on physical optics and their applications [17-J03] [16 -J03] .....	84
Shinji MIYAUCHI (Shimadzu Corporation) et al.	
4.3 Polarization measurement of soft x-ray source using polarizers made with mica crystals at 0.88 keV.....	88
Takashi IMAZONO (JAEA) et al.	
4.4 Decommissioning of ATR Fugen and expectation for application of laser technologies.....	92
Shikou KIYOTA (JAEA)	
4.5 Phase control of the probability of electronic transitions in the non-perturbative laser field intensity [17-C13] [16-C11] .....	96
Keiichi YOKOYAMA (JAEA) et al.	
4.6 Application of a high power free-electron-laser driven by JAEA energy recovery linac .....	100

	Nobuyuki NISHIMORI (JAEA) et al.	
4.7	Laser-acceleration of high energy protons: study of acceleration mechanisms and beam handling .....	104
	Julien S. FUCHS (Ecole Polytechnique-Universite Paris VI, France) et al.	
4.8	Proposed development of novel diagnostics for intense, ultrafast laser-plasma experiments at JAEA-KPSI.....	115
	Paul R. BOLTON (Stanford Linear Accelerator Center, Stanford University, USA) et al.	
4.9	Generation of high-power terahertz radiation by femtosecond-terawatt lasers [17-C03] [16-C19] .....	129
	Shigeki NASHIMA (Osaka City Univ.) et al.	
4.10	Modeling of the plasma EUV source .....	133
	Akira SASAKI (JAEA)	
4.11	Energy-recovery linac for future light sources.....	137
	Ryoichi HAJIMA (JAEA) et al.	
5.	JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research	
	- Cooperative Researches and Joint Researches Poster Presentations ( [ ] Research Theme Number)	
5.1	Development of diode-pumped ultrahigh-peak-power lasers [16-C03] ..	143
	Hajime NISHIOKA (Univ. of Electro-Communications) et al.	
5.2	Target positioning and composition in high-energy proton production by the laser-solid interaction [16-C21] .....	147
	Yoshio WADA (Osaka Univ.) et al.	
5.3	Observation of high-power coherent synchrotron radiation in the THz region from the JAEA energy recovery linac [17-C01] .....	151
	Toshiharu TAKAHASHI (Kyoto Univ.) et al.	
5.4	Numerical analysis of plasma medium of transient collisional excited x-ray laser [17-C02] [16-C05] .....	155
	Masaharu NISHIKINO (JAEA) et al.	
5.5	Photoabsorption and ionization processes in Xe cluster plasma produced by coherent x-ray laser [17-C04] [16-C07] .....	159
	Shinichi NAMBA (Hiroshima Univ.) et al.	
5.6	Visualization of organelle by using laser plasma x-ray microscope [17-C05] .....	163
	Satoshi TAMOTSU (Nara Women's Univ.) et al.	
5.7	Improvements of the detection efficiency of a soft-x-ray emission spectrometer for an analytical transmission electron microscopes [17-C06] [16-C22] .....	167
	Masami TERAUCHI (Tohoku Univ.) et al.	
5.8	Radiation-induced amorphization in Mo/Si nano-multi-layer materials [17-C07] [16-C08] .....	171
	Somei OHNUKI (Hokkaido Univ.) et al.	
5.9	Nanostructure and thermal stability of Co oxide multi-layer materials [17-C07] [16-C08] .....	174

	Somei OHNUKI (Hokkaido Univ.) et al.	
5.10	Plasma polarization spectroscopy -Time resolved spectroscopy in soft x-ray region on recombining plasma- 【17-C12】 【16-C18】 .....	178
	Atsushi IWAMAE (Kyoto Univ.) et al.	
5.11	Dynamics of the primary electron transfer of reaction center purified from a novel photosynthetic bacterium containing zinc-based pigment 【17-C15】 【16-C15】 .....	181
	Yutaka SHIBATA (Nagoya Univ.)	
5.12	Spectroscopic study on high brightness ultra-short pulse x-ray and high-order harmonic generations 【17-C17】 【16-C17】 .....	185
	Masayuki SUZUKI (Univ. of Tokyo) et al.	
5.13	Peak creation in the energy spectrum of laser-produced protons by phase rotation 【17-C18】 【16-C12】 .....	189
	Akira NODA (Kyoto Univ.) et al.	
5.14	Developments of a bonding technique for optical materials by a surface activation method 【17-J02】 【16-J05】 .....	193
	Akira SUGIYAMA (JAEA) et al.	
5.15	Status of laser-produced plasma EUV light source 【17-J04】 【16-J04】 .....	197
	Akira ENDO (GIGAPHOTON Inc.) ) et al.	
5.16	New material creation by high-intense fs-pulse laser irradiation 【17-J06】 【16-J11】 .....	201
	Nobuo KAMIYA (TOYOTA Central R&D Labs. Inc.) et al.	
6.	JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research	
	- Poster Presentations	
6.1	Design of a high efficiency grazing incidence monochromator with multilayer coated laminar gratings for the 1-8 keV region.....	207
	Masato KOIKE (JAEA) et al.	
6.2	Study on formation mechanism of silicon carbide films by PLD in reactive gas.....	211
	Morihisa SAEKI (JAEA) et al.	
6.3	Bond-selective photodissociation caused by vibrational excitation.....	215
	Hiroshi AKAGI (JAEA) et al.	
6.4	The role of charge numbers of heavy particles for dose distribution .....	219
	Kengo MORIBAYASHI (JAEA)	
6.5	Selective bond breaking of ethanol in designed intense laser fields .....	223
	Ryuji ITAKURA (JAEA) et al.	
6.6	Multilayer mirrors for use in the energy range of 1-8 keV .....	225
	Masahiko ISHINO (JAEA) et al.	
6.7	Properties of the laser ablation plume from a BN target in a vacuum.....	229
	Hironori OHBA (JAEA) et al.	
6.8	Highly efficient x-ray laser generation with the grazing incident pumping method.....	233
	Noboru HASEGAWA (JAEA) et al.	
6.9	Observation of density dip in a pre-formed plasma : Toward axial	

pumping x-ray laser .....	237
Tetsuya KAWACHI (JAEA) et al.	
6.10 Advanced ceramics synthesis controlled by the hybrid method of laser/CVD .....	241
Toshihiko YAMAUCHI (JAEA) et al.	
6.11 Nuclear parity violation in photo-nuclear resonance scattering at SPring-8.....	245
Keigo KAWASE (Osaka Univ.) et al.	
6.12 First-principle calculation for electron excitation of transparent material under the intense laser field .....	249
Tomohito OTOBE (JAEA) et al.	
6.13 Development of databases from scientific and technological articles using language processing technology .....	252
Akira SASAKI (JAEA) et al.	
6.14 Simultaneous imaging with a proton beam and an x-ray driven by a fs intense laser .....	256
Satoshi ORIMO (JAEA) et al.	
Appendix Participants List.....	259



## 1. はじめに

平成18年5月10日～12日の3日間にわたり、「日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップ」と「日本原子力研究開発機構関西光科学研究所第7回光量子科学研究シンポジウム」(Joint Meeting of Ultrafast Pulse High Intensity Laser Research Collaboration and JAEA-KPSI 7th Symposium an Advanced Photon Research)を関西光科学研究所木津地区において共同開催した。

1日目は日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力の一環として、平成17年3月に韓国で開催された第1回目を受け、日本がホスト国となり第2回目の日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップとステアリング会合を行い、上記3国研究協力のこれまでの成果と今後の取り組みについて議論した。2～3日目には光量子ビーム利用研究ユニット及び先進光源開発研究ユニットにおける最新の研究成果及び計画を報告するとともに、光量子科学分野の内外第一線の研究者による講演、情報交換、討論を通じて光量子科学研究の一層の推進に資することを目的として、光量子科学研究シンポジウムを開催した。当シンポジウムは旧日本原子力研究所であった平成11年度から開催しているものであり、今回が第7回目である。プログラムを3～13ページに示す。

これら関連深いワークショップ、シンポジウムを合同して開催することにより、それぞれの会議の成果を効果的にあげることができ、研究ネットワークの一層の広がりを構築し、今後の研究協力に向けて貴重な情報交換の場になった。3日間で機構外からの参加者50名(うち国外から7名)を含む137名の参加があった。参加者名簿を巻末に示す。

ご多忙中にも関わらず、招待講演者をはじめこの日韓中ワークショップと光量子科学研究シンポジウムにご参加、ご協力くださった方々に、この場を借りて厚く御礼申し上げます。

### 記

会期：平成18年5月10日(水)9時～5月12日(金)14時半

会場：日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 多目的ホール

主催：日本原子力研究開発機構関西光科学研究所・量子ビーム応用研究部門

共催：韓国光州科学技術院光量子科学研究所、中国科学院物理研究所

協賛：(社)レーザー学会、(社)日本原子力学会関西支部

(独)科学技術振興機構戦略的国際科学技術協力推進事業：

「日韓中の極短パルス高強度レーザー研究協力のための連携体構築」

科学研究費補助金特別推進研究：「相対論工学による超高強度場科学への接近」

(財)奈良コンベンションビューロー

学研都市と東大阪・大阪とのゆめはんな連携事業協賛イベント

## 2. 概要

5月10日、日韓中ワークショップでは、加藤 義章量子ビーム応用研究部門長から日韓中3国協力に至る経緯、最近のアジアを含めた国際協力の情勢についての紹介を含め、歓迎の挨拶があった。引き続き、日韓中3国からの報告が行われた。まず、日本側からは、代表の田島 俊樹関西光科学研究所長が第1回会合後の協力活動の実績等についての報告を、また、大道 博行研究主席が原子力機構における国内および韓中の大学、研究機関との共同研究を含めた、高強度場科学に関する研究活動の紹介を行った。韓国側からは、光州科学技術院 (GIST) 光量子科学研究所 (APRI) Do-Kyeong Ko 教授の「同研究所における高強度場物理の最近の進展」と題する報告のほか、計2件の発表があった。中国側からは、中国科学院物理研究所の ZhengMing Sheng 博士から、「中国における高強度場物理の最近の活動」と題する報告があった。引き続き、大阪大学、(財)電力中央研究所、原子力機構がそれぞれ韓国、中国と協力して行った極短パルス高強度レーザー研究の報告がなされた。ワークショップ終了後、3国のキーメンバーによるステアリング会合を開催し、研究成果、協力体制の報告、問題点の抽出などとともに、今後の研究協力の進め方、人材育成等を検討した。人材育成に関しては、今夏8月7日～11日、中国北京で開催予定の“1st Asian summer school on laser & particle acceleration”について Sheng 博士から紹介があった。また、次のワークショップとステアリング会合は、来年、中国で開催することで合意した。

5月11日～12日の光量子科学シンポジウムでは、①先進レーザーの利用、応用、②原子力開発における先進レーザーの役割、③新たな光源を目指して一極短パルス、コヒーレントX線の3つのセッションに分けて、光量子ビーム利用、先進光源開発の両研究ユニットの最新の成果発表に加え、関連分野の第一線の研究者による講演が行われた。特に招聘講演として、仏国エコールポリテクニクパリ第6大学の Julien S. Fuchs 博士から、パルスレーザーを用いた高輝度イオン加速の最新の成果に関する講演がなされ、また、米国スタンフォード大学スタンフォード線形加速器センターの Paul R. Bolton 博士から、高強度・高速レーザープラズマ実験における新しいレーザー評価法の提案があった。また、「原子力開発における先進レーザーの役割」のセッションでは、新型転換炉ふげん発電所の清田 史功環境保全課長より、ふげん廃炉措置の紹介とレーザー技術への期待が述べられるとともに、極短パルス高強度レーザーの原子力開発への応用に係る研究成果の報告があり、さらに、長島 章研究主席・施設共用課長から、今年度から開始した「施設共用」の制度と関西光科学研究所での取り組みについての紹介があった。ポスター発表では、他機関と実施した平成16年度、17年度の協力研究・共同研究（原研当時）の成果発表を含めて計46件の発表があった。

これらの発表・討論、情報交換を通じて、国内外大学、研究機関、産業界との共同研究や施設共用の拡大を含め、光量子科学の今後の課題や進め方について有益な意見・情報が得られた。特に、2つの会合を共同開催することにより、両会合の共通するテーマである極短パルス高強度レーザーの開発利用研究についてのより深い情報交換や議論が出来、多くの参加者にとっても新たな刺激が得られた会合となった。

## プログラム

\*所属名のない者は日本原子力研究開発機構所属。

\*\*それぞれ質疑応答の時間(5~10分)を含む。

### \*\*日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップ\*\*

平成18年5月10日(水)

開会

座長:木村 豊秋

9:00~9:10 開会挨拶 加藤 義章(10分)

9:10~9:40 田島 俊樹

「First year review of the trilateral laser activity and KPSI」(30分)

9:40~10:10 大道 博行「High intensity physics experiments at APRC, JAEA」(30分)

10:10~10:30 休憩(20分)

韓国の報告

座長:大道 博行

10:30~11:10 Do-Kyeong KO(韓国光州科学技術院光量子科学研究所)

「Recent progress on high field physics research in APRI」(40分)

11:10~11:50 HyungTaek KIM(韓国光州科学技術院光量子科学研究所)

「Coherent X-ray development in APRI」(40分)

中国の報告

Chair: Sergei V. BULANOV

11:50~12:30 ZhengMing SHENG(中国科学院物理研究所)

「Recent activities on high field physics in China」(40分)

12:30~13:30 昼食(60分)

日本の報告

座長: Do-Kyeong KO

13:30~14:00 田中 和夫(大阪大学)

「Intense laser pump probe and related Asian activities」(30分)

14:00~14:30 藤原 守(大阪大学)

「Nuclear photon science with inverse Compton photon beams」(30分)

14:30~14:50 休憩(20分)

座長: ZhengMing SHENG

14:50~15:20 大石 祐嗣(電力中央研究所)

「Recent progress on high energy particle generation in CRIEPI」(30分)

15:20~15:40 匂坂 明人

「Characterization of a proton beam driven by a high-intensity laser」(20分)

15:40~16:10 小瀧 秀行「Long self-guiding of 100 TW laser pulse」(30分)

16:10~16:30 Liming CHEN「Control of K $\alpha$  x-ray emission from high contrast femtosecond laser-solid interactions」(20分)

16:45~17:45 実験棟見学(60分)

18:00~20:00 ステアリング会合

\*\*第7回光量子科学研究シンポジウム\*\*

平成18年5月11日(木)

開会

座長:河西 俊一

9:00~9:10 開会挨拶 田島 俊樹(10分)

9:10~9:30 基調講演 木村 豊秋「原子力機構における光量子科学研究」(20分)

セッション「先進レーザーの利用、応用1」

座長:小池 雅人

9:30~10:00 山内 薫(東京大学)

「Ultrafast hydrogen atom dynamics of molecules in intense laser fields」(30分)

10:00~10:30 並河 一道(東京学芸大学)

「高いコヒーレンスをもつ軟X線レーザーを利用した新固体分光法の構築」(30分)

10:30~10:50 休憩(20分)

10:50~11:20 宮内 真二(島津製作所)

「回折格子の物理光学的回折効率解析手法開発とその利用」(平成17年度共同研究03)(30分)

11:20~11:40 今園 孝志「0.88 keV 用雲母結晶偏光子を用いた軟X線光源の偏光評価」(20分)

11:40~12:00 森 道昭

「レーザープラズマ相互作用基礎実験のための JLITE-X TW レーザー装置」(20分)

12:00~13:30 昼食(90分)

セッション「原子力開発における先進レーザーの役割」

座長:横山 淳

13:30~14:00 清田 史功「新型転換炉ふげん発電所の廃止措置とレーザー技術への期待」(30分)

14:00~14:20 西村 昭彦「AVLISにおける選択励起と SCC 対策としての非熱加工」(20分)

14:20~14:40 横山 啓一

「非摂動論的レーザー強度領域における電子遷移確率の位相制御」(20分)

14:40~15:00 西森 信行

「原子力機構エネルギー回収リニアック高出力自由電子レーザーの応用」(20分)

15:00~15:20 長島 章「施設共用について」(20分)

15:20~17:50 ポスター発表(平成16年度、17年度の協力・共同研究成果発表他)(150分)

18:00~ 懇親会

平成18年5月12日(金)

セッション「先進レーザーの利用、応用2」

座長:大道 博行

9:00~9:40 Julien S. FUCHS (仏国エコールポリテクニックパリ第六大学)「Recent results on high-brightness ion acceleration and beam handling using pulsed lasers」(40分)

9:40~10:00 神門 正城「Spatially collimated, quasi-monoenergetic electron generation through laser-plasma interaction」(20分)

10:00~10:20 Timur Zh. ESIRKEPOV「Single-cycle high-intensity electromagnetic pulse generation in the interaction of a plasma wakefield with nonlinear coherent structures」(20分)

10:20~10:30 休憩(10分)

座長:Sergei V. BULANOV

10:30~11:10 Paul R. BOLTON(米国スタンフォード大学スタンフォード線型加速器センター)「Proposed development of novel diagnostics for intense, ultrafast laser-plasma experiments at JAEA-KPSI」(40分)

11:10~11:40 菜島 茂喜(大阪市立大学)「テラワット・フェムト秒レーザーによる高強度テラヘルツ波の発生」(平成17年度協力研究03)(30分)

11:40~12:00 佐々木 明「EUV光源のシミュレーションモデル構築」(20分)

12:00~13:20 昼食(80分)

セッション「新たな光源を目指して一極短パルス、コヒーレントX線」

座長:永島 圭介

13:20~13:40 羽島 良一「エネルギー回収型リニアックによる次世代光量子源」(20分)

13:40~14:00 越智 義浩「0.1Hz 繰り返し 高輝度X線レーザー装置の開発」(20分)

14:00~14:20 山川 考一「高強度・数サイクル光パラメトリック増幅システム」(20分)

14:20~14:30 閉会挨拶 河西 俊一(10分)

## Program

\*One without affiliation belongs to JAEA.

\*\*Including Q&A time.

### Japan-Korea-China Trilateral Workshop on Ultrashort Pulse High Intensity Laser Research Collaboration

May 10th (Wednesday), 2006

#### Opening

Chair: Toyooki KIMURA

9:00-9:10 Opening Remark Yoshiaki KATO (10min)

9:10-9:40 Toshiki TAJIMA "First year review of the trilateral laser activity and KPSI" (30min)

9:40-10:10 Hiroyuki DAIDO "High intensity physics experiments at APRC, JAEA" (30min)

10:10-10:30 Break (20min)

#### Reports from Korea

Chair: Hiroyuki DAIDO

10:30-11:10 Do-Kyeong KO (*Advanced Photonics Research Institute, Gwangju Institute of Science and Technology, Korea*) "Recent progress on high field physics research in APRI" (40min)

11:10-11:50 HyungTaek KIM (*Advanced Photonics Research Institute, Gwangju Institute of Science and Technology, Korea*) "Coherent X-ray development in APRI" (40min)

#### Reports from China

Chair: Sergei V. BULANOV

11:50-12:30 ZhengMing SHENG (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, China*)  
"Recent activities on high field physics in China" (40min)

12:30-13:30 Lunch (60min)

#### Reports from Japan

Chair: Do-Kyeong KO

13:30-14:00 Kazuo A. TANAKA (*Osaka University, Japan*)

"Intense laser pump probe and related Asian activities" (30min)

14:00-14:30 Mamoru FUJIWARA (*Osaka University, Japan*)

"Nuclear photon science with inverse Compton photon beams" (30min)

14:30-14:50 Break (20min)

Chair: ZhengMing SHENG

14:50-15:20 Yuji OISHI (*Central Research Institute of Electric Power Industry, Japan*)

"Recent progress on high energy particle generation in CRIEPI" (30min)

15:20-15:40 Akito SAGISAKA

"Characterization of a proton beam driven by a high-intensity laser" (20min)

15:40-16:10 Hideyuki KOTAKI "Long self-guiding of 100 TW laser pulse" (30min)

16:10-16:30 Liming CHEN "Control of K-alpha x-ray emission from high contrast femtosecond laser-solid interactions" (20min)

16:45-17:45 Laboratory Tour (60min)

18:00-20:00 Steering Committee

## JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research

May 11th (Thursday), 2006

Opening

Chair: Shunichi KAWANISHI

9:00-9:10 Opening Remark Toshiki TAJIMA (10min)

9:10-9:30 Keynote speech Toyoaki KIMURA "Advanced photon research in JAEA" (20min)

Session: Utilization and Application of Advanced Lasers (1)

Chair: Masato KOIKE

9:30-10:00 Kaoru YAMANOUCI (*University of Tokyo*)

"Ultrafast hydrogen atom dynamics of molecules in intense laser fields" (30min)

10:00-10:30 Kazumichi NAMIKAWA (*Tokyo Gakugei University, Japan*)

"A Novel Solid State Spectroscopy by Use of Plasma Based X-Ray Laser" (30min)

10:30-10:50 Break (20min)

10:50-11:20 Shinji MIYAUCHI (*Shimadzu Corporation, Japan*) "Development of simulation methods for analyzing grating diffraction efficiency based on physical optics and their applications" (30min)

11:20-11:40 Takashi IMAZONO "Polarization measurement of soft x-ray source using polarizers made with mica crystals at 0.88 keV" (20min)

11:40-12:00 Michiaki MORI

"JLITE-X multi-TW laser system for laser-plasma interaction study" (20min)

12:00-13:30 Lunch (90min)

Session: Role of Advanced Lasers in Atomic Energy Development

Chair: Atsushi YOKOYAMA

13:30-14:00 Shikou KIYOTA "Decommissioning of ATR Fugen and expectation for application of laser technologies" (30min)

14:00-14:20 Akihiko NISHIMURA

"Selective excitation in AVLIS and fs-laser processing for SCC mitigation" (20min)

14:20-14:40 Keiichi YOKOYAMA "Phase control of the probability of electronic transitions in the non-perturbative laser field intensity" (20min)

14:40-15:00 Nobuyuki NISHIMORI "Application of a high power free-electron-laser driven by JAEA energy recovery linac" (20min)

15:00-15:20 Akira NAGASHIMA "Facilities utilization of JAEA" (20min)

15:20-17:50 Poster Session (150min)

18:00 Banquet

May 12th (Friday), 2006

Session Utilization and Application of Advanced Lasers (2)

Chair: Hiroyuki DAIDO

- 9:00-9:40 Julien S. FUCHS (*Ecole Polytechnique-Universite Paris VI, France*) "Recent results on high-brightness ion acceleration and beam handling using pulsed lasers" (40min)  
9:40-10:00 Masaki KANDO "Spatially collimated, quasi-monoenergetic electron generation through laser-plasma interaction" (20min)  
10:00-10:20 Timur Zh. ESIRKEPOV "Single-cycle high-intensity electromagnetic pulse generation in the interaction of a plasma wakefield with nonlinear coherent structures" (20min)

10:20-10:30 Break (10min)

Chair: Sergei V. BULANOV

- 10:30-11:10 Paul R. BOLTON (*Stanford Linear Accelerator Center, Stanford University, USA*)  
"Proposed development of novel diagnostics for intense, ultrafast laser-plasma experiments at JAEA-KPSI" (40min)  
11:10-11:40 Shigeki NASHIMA (*Osaka City University, Japan*)  
"Generation of high-power terahertz radiation by femtosecond-terawatt lasers" (30min)  
11:40-12:00 Akira SASAKI "Modeling of the plasma EUV source" (20min)

12:00-13:20 Lunch(80 分)

Session Towards the New Light Sources -Ultrashort Pulse, Coherent X-ray-

Chair: Keisuke NAGASHIMA

- 13:20-13:40 Ryoichi HAJIMA "Energy-recovery linac for future light sources" (20min)  
13:40-14:00 Yoshihiro OCHI "Development of 0.1 Hz repetition X-ray laser system" (20min)  
14:00-14:20 Koichi YAMAKAWA  
"High intensity, few cycle optical parametric amplification system" (20min)

Closing

- 14:20-14:30 Closing Remark Shunichi KAWANISHI (10min)



## 第7回光量子科学研究シンポジウム ポスター発表

## 16年度 協力研究課題

課題番号	発表題名	研究相手方	課題 責任者	原研側 受入担当者	発表者	発表 グループ
16-協03	半導体レーザー励起超高ピークレーザーの研究開発 Development of Diode-Pumped Ultrahigh-Peak-Power Lasers	電気通信大学 レーザー新世代 研究センター	西岡 一	河仲 準二	西岡 一	A
16-協21	薄膜レーザー照射による高エネルギープロトンの高効率生成 Efficient High-Energy Proton Production by Laser-Solid Interaction	広島大学	小方 厚	小瀧 秀行	小方 厚	B

## 17年度及び16年度 協力研究課題

課題番号	発表題名	研究相手方	課題 責任者	原研側 受入担当者	発表者	発表 グループ
17-協01	エネルギー回収型ライナックを用いた高出力コヒーレント・テラヘルツ放射光の観測 Observation of High-Power Coherent Synchrotron Radiation in the THz Region from the JAEA Energy Recovery Linac	大阪府立大学 先端科学研究所	奥田 修一	峰原 英介	高橋 俊晴	A
17-協02 16-協05	X線レーザープラズマ媒質の増幅利得に関する数値シミュレーションによる研究 Numerical analysis of plasma medium of transient collisional excited x-ray laser	JAEA	錦野 将元		錦野 将元	B
17-協04 16-協07	コヒーレントX線レーザー照射によるキセノクラスターの光吸収・電離過程の解明 Photoabsorption and ionization processes in Xe cluster plasma produced by coherent X-ray laser	広島大学	多幾山 憲	長谷川 登	難波 慎一	A
17-協05	レーザープラズマX線顕微鏡による細胞内小器官の可視化 Visualization of the organelle by using laser plasma X-ray	奈良女子大学	保 智己	加道 雅孝	保 智己	B
17-協06 16-協22	ナノスケール軟X線分光系の高検出効率化に関する研究 Improvements of the detection efficiency of a Soft-X-ray emission spectrometer for an analytical transmission electron	東北大学 多元物質科学 研究所	寺内 正己	小池 雅人	寺内 正己	A

発表グループA: 15:20～16:30に発表

発表グループB: 16:30～17:50に発表

課題番号	発表題名	研究相手方	課題 責任者	原研側 受入担当者	発表者	発表 グループ
17-協07-1 16-協08	短周期多層膜の構造評価と構造制御－高エネルギービーム照射安定性－ Radiation-induced Amorphization in Mo/Si Nano-multi-layer	北海道大学	大貫 惣明	石野 雅彦	大貫 惣明	B
17-協07-2 16-協08	コバルトナノ多層膜の構造と熱的安定性 Nanostructure and Thermal Stability of Co Oxide Multi-layer Materials	北海道大学	大貫 惣明	石野 雅彦	大貫 惣明	A
17-協11 16-協14	短波長光源の計算機シミュレーションによる分光解析 Spectroscopic studies based on the computer simulation of short wavelength light sources	JAEA	佐々木 明		佐々木 明	B
17-協12 16-協18	偏光プラズマ分光－再結合プラズマの軟X線領域時間分解偏光計測－ Plasma Polarization Spectroscopy -Time Resolved Spectroscopy	京都大学	蓮尾 昌裕	河内 哲哉	岩前 敦	A
17-協13 16-協11	コヒーレント反応制御の研究 Study on the coherent control of chemical reactions	JAEA	横山 啓一		横山 啓一	B
17-協14 16-協01	高強度超短パルスレーザーを用いたプラズマカソードの研究 Study of plasma cathode using high intensity ultra-short pulse	東京大学	上坂 充	中島 一久	山崎 淳	A
17-協15 16-協15	亜鉛型色素を用いる新型光合成生物Acidiphilium rubrum反応中心における光誘起初期電子移動ダイナミクス Light-Induced Primary Electron-Transfer Dynamics in Reaction Center from a Novel Photosynthetic Bacterium Acidiphilium rubrum Using Zinc-Based Pigments	名古屋大学	伊藤 繁	村上 洋	柴田 穰	B
17-協17 16-協17	超短パルスレーザーを用いた高輝度短パルスX線発生と固体表面からの高次高調波発生の分光学的研究 Spectroscopic Study on High Brightness Ultra-short Pulse X-Ray and High-order Harmonic Generations	東京大学 物性研究所	黒田 寛人	織茂 聡	鈴木 将之	A
17-協18 16-協12	位相回転によるレーザー生成陽子のエネルギーピーク形成 Peak Creation in the Energy Spectrum of Laser-Produced Photons by Phase Rotation	京都大学 化学研究所	野田 章	大道 博行	野田 章	B
17-協19 16-協09	超高強度場科学での電離箱応答特性評価 Estimation of Ionization Chamber Response in the High Field Science	京都大学	神野 郁夫	林 由紀雄	林 由紀雄	A
17-協20 16-協23	X線レーザーを用いた光誘起ナノ構造の解明 Study on Photo-Induced Nano-Structures by Means of X-Ray Lasers	京都大学	田中 耕一郎	永島 圭介	白井 正伸	B

発表グループA: 15:20～16:30に発表

発表グループB: 16:30～17:50に発表

## 16年度 共同研究課題

課題番号	発表題名	研究相手方	課題 責任者	原研側 受入担当者	発表者	発表 グループ
16-共01	LD励起高効率・高繰り返し超短パルスレーザーの開発 Development of High-Efficiency and High Repetition Rate Diode-Pumped Ultrashort Pulse Lasers	レーザー技術 総合研究所	藤田 雅之	河仲 準二	藤田 雅之	A
16-共02	ガスバフターゲットによる高輝度X線源の開発 Development of High Intense X-ray Source using Gas-Puff	産業技術 総合研究所	村井 健介	河仲 準二	村井 健介	B
16-共10	W系多層膜ミラーの特性評価 Evaluation of Tungsten based X-ray Multilayer Mirrors	エス・ディー・ ティー・ アドバンステクノロ	竹中 久貴	小池 雅人	竹中 久貴	A

## 16年度及び17年度 共同研究課題

課題番号	発表題名	研究相手方	課題 責任者	原研側 受入担当者	発表者	発表 グループ
17-共02 16-共05	表面活性化法による光学素子接合技術の開発 Spectroscopic Study on High Brightness Ultra-short Pulse X-Ray and High-order Harmonic Generations	アユミ工業㈱	阿部 智之	杉山 慎	杉山 慎	B
17-共04 16-共04	レーザープラズマEUV光源の概要 Concept of Laser-produced Plasma EUV Light Source	ギガフォトン㈱	溝口 計	佐々木 明	遠藤 彰	A
17-共06 16-共11	高輝度フェムト秒レーザー照射による新規材料創生 New material creation by high-intense fs-pulse laser irradiation	㈱豊田中央研究所	東 博純	大道 博行	東 博純	B

発表グループA: 15:20～16:30に発表

発表グループB: 16:30～17:50に発表

## 一般ポスター発表

発表番号	題目	発表者	所属	発表グループ
P01	Design of a high efficiency grazing incidence monochromator with multilayer Laminar-type gratings for the 1-8 keV region ガス中PLD法によるシリコンカーバイド薄膜の生成過程に関する研究	Masato KOIKE	JAEA	A
P02	Study on formation mechanism of silicon carbide films by pulsed laser deposition in reactive atmosphere	Morihisa SAEKI	JAEA	B
P03	振動励起を用いた選択的化学結合切断 Bond-selective photodissociation caused by vibrational excitation	Hiroshi AKAGI	JAEA	A
P04	重粒子線の線量分布に対する電荷数の役割 The role of charge numbers of heavy particles for dose distribution	Kengo MORIBAYASHI	JAEA	B
P05	高強度波形成レーザーパルスによるエタノールの選択的化学結合切断 Selective bond breaking of ethanol in designed intense laser fields	Ryuji ITAKURA	JAEA	A
P06	1-8 keV領域用多層膜反射鏡の生成と評価 Multilayer mirrors for use in the energy range of 1-8 keV	Masahiko ISHINO	JAEA	B
P07	真空中におけるBNターゲットからのレーザーアブレーションプラズマの特性 Properties of the laser ablation plume from a BN target in a vacuum	Hironori OHBA	JAEA	A
P08	Time-of-flight measurement of fast protons in a high-intensity laser-foil interaction パルスレーザーを用いた誘導ブリルアン散乱法による非接触音速測定	Akifumi YOGO	JAEA	B
P09	Remote sensing of sound velocity by pulse-laser induced stimulated Brillouin scattering 斜入射励起法によるX線レーザーの高効率化	Yukithiro SHIMADA	JAEA	A
P10	Highly efficient x-ray laser generation with the grazing incident pumping method レーザーによる局所加熱を可能にするターゲット開発	Noboru HASEGAWA	JAEA	B
P11	Development of target for local heating by laser irradiation レーザー/CVDハイブリッド制御法によるアドバンスセラミックス合成	Tetsuya KAWACHI	JAEA	A
P12	Advanced ceramics synthesis controlled by the hybrid method of laser/CVD 高強度レーザーとクラスター媒質との相互作用による電子加速	Keita NAKAGAKI	Yamanashi Univ.	B
P13	Electron acceleration during the intense laser pulse interaction with clusters 超新星爆発の光核反応の重元素合成過程の普遍性	Yuji FUKUDA	JAEA	A
P14	Universality of photon-induced heavy-element nucleosynthesis in supernovae ニュートリノの逆コンプトンガンマ線による光核実験	Takehito HAYAKAWA	JAEA	B
P15	Photo-nuclear Experiments by using inverted Compton scattering gamma-rays in	Takehito HAYAKAWA	JAEA	A

発表グループA: 15:20~16:30に発表

発表グループB: 16:30~17:50に発表

発表 番号	題目	発表者		発表グ ループ
P16	SPring-8における光核共鳴散乱によるパリティの破れの探索 Research of nuclear parity violation by photo-nuclear resonance scattering in SPring-8	Keigo KAWASE	Osaka Univ	B
P17	大強度レーザーによる透明素材の電子励起過程の第一原理計算 First-principle calculation of the electron excitation of transparent material by the intense laser	Tomohito OTOBE	JAEA	A
P18	言語情報を活用し技術資料・論文からデータベースを構築するソフトウェア開発 Development of databases from scientific and technological articles using language processing technology	Akira SASAKI	JAEA	B
P19	超高速分光システムの開発と利用研究I-A: 硬X線から高テラヘルツ電磁波まで Development of systems for ultrafast pump-probe spectroscopy and their applications I-A: From hard X-ray to THz electromagnetic wave	Hiroshi MURAKAMI	JAEA	A
P20	超高速分光システムの開発と利用研究I-B: 硬X線から高テラヘルツ電磁波まで Development of systems for ultrafast pump-probe spectroscopy and their applications I-B: From hard X-ray to THz electromagnetic wave	Kohei SHIMIZU	JAEA	B
P21	フェムト秒高強度レーザー駆動陽子線と硬X線による同時イメージング実験 Simultaneous imaging with a proton beam and a X-ray driven by a fs-intense laser	Satoshi ORIMO	JAEA	A

発表グループA: 15:20～16:30に発表  
発表グループB: 16:30～17:50に発表

This is a blank page.

3. 日韓中極短パルス高強度レーザー研究協力に関するワークショップ

Japan-Korea-China Trilateral Workshop on

Ultrashort Pulse High Intensity Laser Research Collaboration

This is a blank page.





### 3.1 Energetic electron beam and proton beam generations with the APRI ultrahigh-intensity Ti:sapphire laser system

Do-Kyeong Ko<sup>1,\*</sup>, I. W. Choi<sup>1</sup>, T. J. Yu<sup>1</sup>, J. H. Sung<sup>1</sup>, H. T. Kim<sup>1</sup>, T. M. Jeong<sup>1</sup>, K-H. Hong<sup>1</sup>, Y-C. Noh<sup>1</sup>, N. Hafz<sup>1</sup>, H. Daido<sup>2</sup>, A. Yogo<sup>2</sup>, Z. Li<sup>2</sup>, A. Sagisaka<sup>2</sup>, K. Ogura<sup>2</sup>, S. Orimo<sup>2</sup>, A. Pirozhkov<sup>2</sup>, K. Nemoto<sup>3</sup>, Y. Oishi<sup>3</sup>, A. Noda<sup>4</sup>, Y. Iwashita<sup>4</sup>, T. Shirai<sup>4</sup>, and S. Nakamura<sup>2,4</sup>, H. Jang<sup>5</sup>, H. Suk<sup>5</sup>, and Jongmin Lee<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Advanced Photonics Research Institute, Gwangju Institute of Science & Technology, 1 Oryong-dong, Buk-gu, Gwangju, 500-712 Korea

<sup>2</sup>Advanced Photon Research Center, JAEA, Souraku-gun, Kyoto 619-0215, Japan

<sup>3</sup>Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI), Yokosuka, Kanagawa 240-0196, Japan

<sup>4</sup>Institute for Chemical Research, Kyoto University, Uji, Kyoto 611-0011, Japan

<sup>5</sup>Center for Advanced Accelerators, Korea Electrotechnology Research Institute, Changwon 641-120, Korea

\* email: dkko@gist.ac.kr

A 100-TW class ultrashort, ultrahigh-intensity Ti:sapphire laser system is operating and the upgrade to 300-TW is underway in APRI. With this laser system, series of experiments on high field physics, such as high harmonics generation, electron acceleration, proton generation, and x-ray generation, have been performed through domestic or international collaboration. In the electron acceleration experiment, we have observed highly directional electron beams and, in some shots, quasi-monoenergetic electron beams were generated. In the proton generation experiment, we observed protons with the maximum energy of ~2.4 MeV emitted from a 5- $\mu$ m thick copper tape target which was irradiated by laser pulses with peak intensity of  $\sim 1.4 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. The energy conversion efficiency from laser to proton was >1.4%.

**Keywords :** Laser, High intensity, electron acceleration, proton, conversion efficiency

#### 1. Introduction

Table-top terawatt lasers of a few tens terawatt to hundreds terawatt have become more and more common in laboratories all over the world and enable us to examine and perform many high field physics research. There are also several attempts to increase the power to 10 PW and even more than 100 PW class[1][2]. And for the past few years, there has been remarkable progress in the development of laser-based high field physics research. Among them are the particle acceleration, x-ray generation, attosecond pulse generations, and so on. As these phenomena occurs in the regime that the electron mass cannot be assumed to remain constant, the optics in this regime is called as relativistic optics.[3] After the three consecutive papers on the monoenergetic electron beam generation were reported in Nature[4-6], this year ~GeV monoenergetic electron beam generation was reported[7]. And recently H. Schwoerer *et al.* reported the laser-plasma acceleration of quasi-monoenergetic protons from microstructured targets[8]. They used a 5- $\mu$ m thin titanium foil coated with a 0.5- $\mu$ m layer of polymethyl methacrylate (PMMA) on the back surface and microstructured the PMMA layer in some regions of the sample. By irradiating the microstructured target foil, they observed the proton spectrum with a distinct narrow band feature, peaked around  $E_{\max}=1.2$ MeV and has a full-width at half-maximum of about  $\Delta E_{\text{FWHM}}=300$ keV.

In the Asian countries it becomes more and more often that the joint research experiments on high field physics are being performed. APRI, as one of the ultrahigh intensity laser facilities, is now taking steps to play a certain clear amount of role in the international high field physics research community. APRI have

been performed a PW Project and now reached a turning point. Currently, a 100-TW class system is operating and the upgrade to 300-TW is underway. And there have been several experiments on the high field physics for the last couple of years.

## 2. Current status of the APRI PW Program

APRI 100-TW class system was constructed on July 2005 and was initially open to the users up to 35-level using only the 1<sup>st</sup> main amplifier. And from the second half of 2006, full system including the 2<sup>nd</sup> main amplifier is open to the users after about 1-year performance test. Fig.1 shows the schematic diagram of the APRI 100-TW Ti:sapphire laser system.

Modelocked pulses with 20-fs pulse duration and 6-nJ output energy are stretched to 350 ps and are consecutively amplified in the regenerative amplifier (1 kHz, 0.7 mJ output), the 4-pass preamplifier (10 Hz, 55mJ output), the 4-pass 1<sup>st</sup> main amplifier(10Hz, 2 J output), and the 3-pass 2<sup>nd</sup> main amplifier (10Hz, 5.6J output).

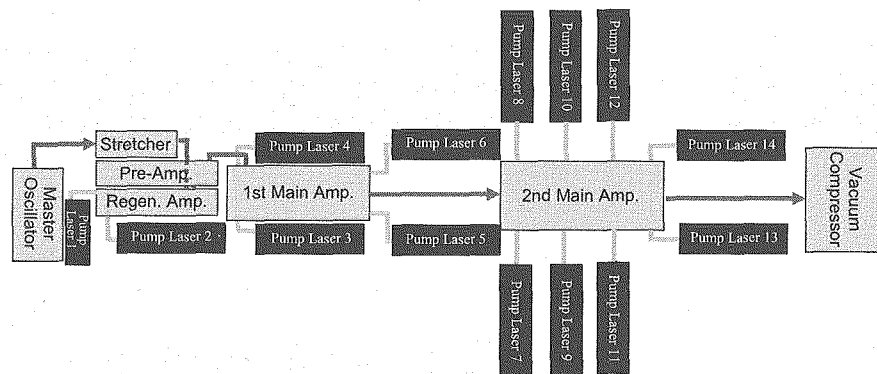


Fig.1. Schematic diagram of the APRI 100-TW Ti:sapphire laser system

The amplified pulses are compressed in the Tracy-type vacuum compressor with the overall transmission efficiency of 65% and we have the final compressed pulses with the pulse duration of 30~35 fs and output energy of ~3.5J, which means 100-TW output power. With this laser system, series of experiments on high field physics have been performed. Among them are the experiments for high harmonics generation, electron acceleration, proton generation, and x-ray generation. Some of the experimental results is reported in the following sections.

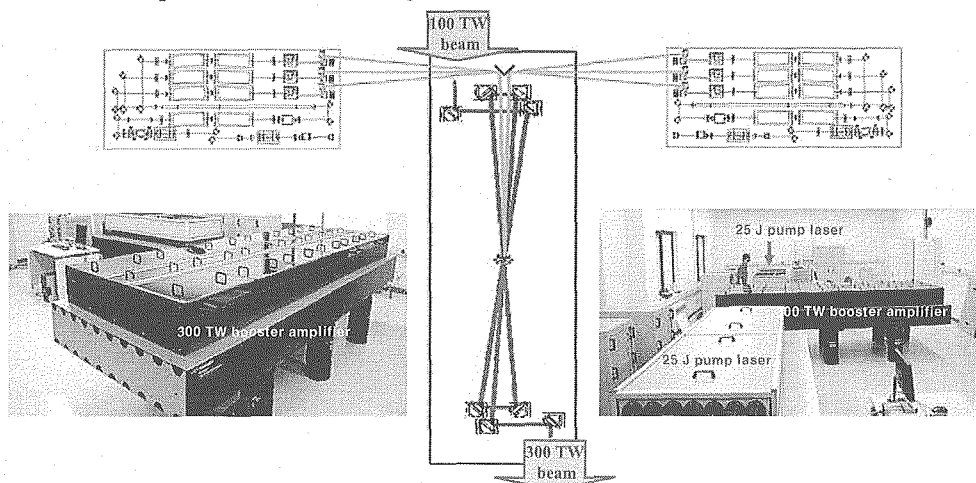


Fig. 2. APRI 300-TW booster amplifier

And we are currently constructing the booster amplifier stage to increase the output power upto 300-TW level as shown in fig. 2. The 6 green beam lines with total output energy of  $\sim 50$  J from the frequency-doubled Nd:Glass laser system ( $8.5\text{J}/\text{beam} \times 6$  beams) will pump the Ti:sapphire crystal with the diameter of 80 mm and the thickness of 20 mm. We expect to get the output energy of 24 J.

### 3. Electron acceleration

We had performed a joint experiment for the laser wakefield electron acceleration with Korea Electrotechnology Research Institute (KERI). Fig. 3 shows the experimental setup for the monitoring of the spatial profile and the energy spectrum of the accelerated electron beam. Laser beam with the pulse duration of 32 fs was focused to the He gas target with the lens with the focal length of 750 mm and the focused laser intensity was about  $\sim 1.0 \times 10^{19} \text{W}/\text{cm}^2$ . He gas is fully ionized by the focused laser beam and the plasma density was varied to be  $3 \sim 5 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$  by changing the backing pressure.

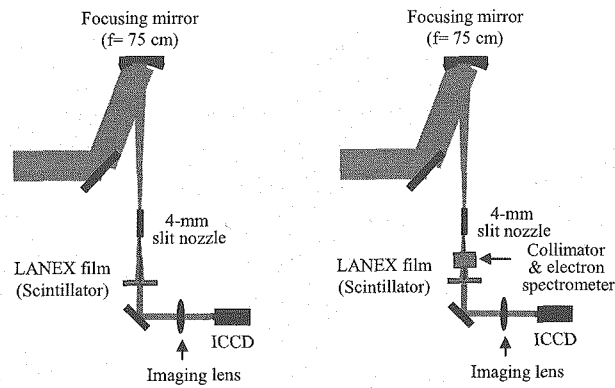


Fig.3. Experimental setup for the measurement of the spatial profile and the energy spectrum of the electron beam

The left-hand side of fig. 4 shows the spatial profile of the accelerated electrons beam. The fluorescence from the Lanex scintillator which was hit by the electron beam was monitored by the ICCD. The measured divergence angle was about 20 mrad. The electron charge was measured by an integrated current transformer (ICT) and it was about 190 pC which corresponds to the electron number of  $1.2 \times 10^9$ . The right-hand side of the fig. 4 shows the energy spectrum of the accelerated electrons. As shown in the figure, the maximum energy was about 50 MeV and quasi-monoenergetic electron beam at 32 MeV was observed..

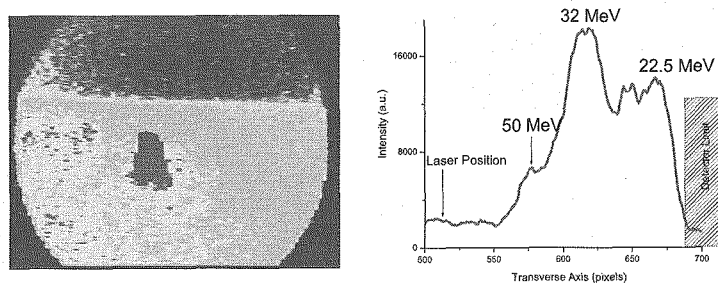


Fig.4. Spatial profile(left) and the energy spectrum(right) of electron beam obtained in the APRI-KERI joint experiment

#### 4. Proton generation

Energetic ion generation based on high-intensity laser systems has recently been attracting considerable attention. Owing to their compact size, reasonable cost, and almost radiation-shield free circumstances, scalability studies show that the table-top laser systems with high repetition rates could be a particle generators which could applied to proton radiography[9], injector for accelerator[10], proton therapy[11], and radioisotope production[12]. J. Fuchs performed a series of experiments on aluminum foils, measuring the proton-beam maximum energy and energy-conversion efficiency as a function of varying laser and target parameters and suggested laser-driven proton scaling laws and new paths towards energy increase.[13] And as mentioned above, quasi-monoenergetic proton beam has been produced from the microstructured target which helps accelerated protons to be subject to homogeneous part of electrostatic field[8].

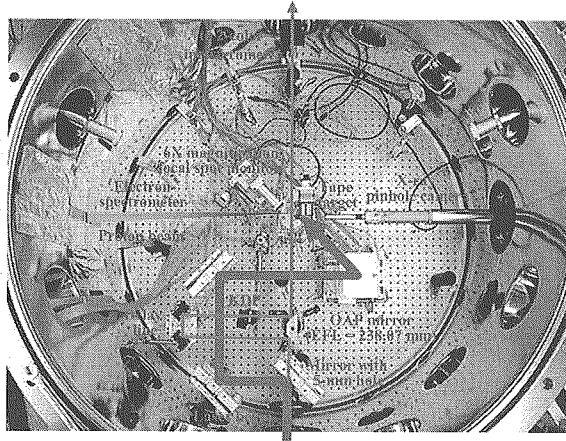


Fig. 5. Experimental setup for proton generation

Proton generation experiment was performed by collaborating with JAEA-KPSI, CRIEPI, and Kyoto University. The experimental setup is shown in fig. 5. A 5- $\mu\text{m}$  thick copper tape target was irradiated by laser pulses focused with an off-axis parabolic mirror with effective focal length of 238mm with peak intensity of  $4 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  with the incidence angle of  $45^\circ$  at the pulse duration of 100 fs. The proton energy spectra measured in real time by the proton TOF spectrometer and the Thomson parabola ion analyzer with CR-39 and imaging plates were used, too. The number of protons was counted by CR-39 detector and x-ray pinhole camera, electron spectrometer, 2-color interferometer and CR-39 coupled with Mylar filters were used to monitor the diagnostics of the other parameters, such as x-ray generation, angle dependence of electron energy and number distribution, plasma density, proton beam divergence.

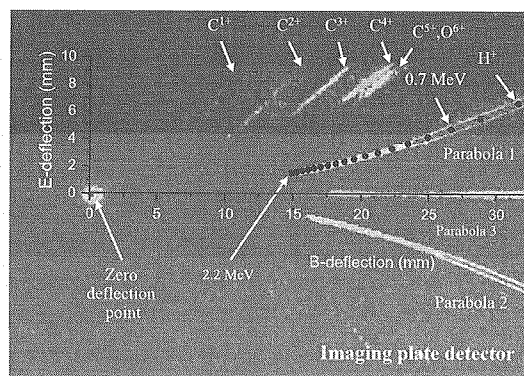


Fig.6. Ion signals detected on the imaging plate detector after Thomson parabola ion analyzer. Upper, center, and down signals were obtained by changing the direction of electric field (+, 0, -)

Fig. 6 shows the generated ion signals detected on the imaging plate detector after Thomson parabola ion analyzer. Upper (parabola1), center (parabola3), and down (parabola2) signals in the figure were obtained by changing the direction of electric field (+, 0, -) and the each parabola signal was obtained by 2 shots.

Proton energy spectra measured by proton TOF spectrometer and Thomson parabola ion analyzer the CR-39 particle track detector is shown in fig. 7(a) and (b), respectively. Protons are observed along the direction normal to the target rear surface at non-irradiated side of laser pulse. As shown in the both of the figure 7(a) and (b), maximum proton energy was as high as 2.37 MeV. Absolute proton number at the above condition is shown in Fig. 7 (b) as a function of proton energy.

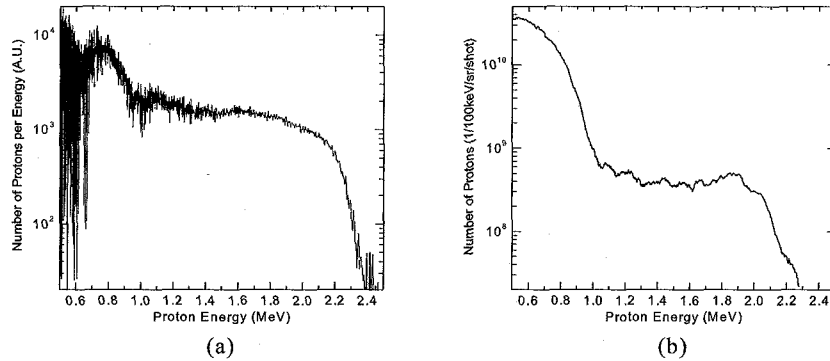


Fig. 7. Proton energy spectra measured by (a) proton TOF spectrometer by single shot and (b) Thomson parabola ion analyzer with CR-39 particle track detector collected and averaged with 5 shots.

The beam divergence of protons at selective energy ranges was measured by placing the CR-39 detectors covered with Mylar range filters whose thicknesses are optimized for detecting the protons in each energy range. Half cone angles of the beam divergence in the energy ranges of  $> 0.8$  MeV,  $> 1.2$  MeV, and  $> 1.8$  MeV were 27, 19, and 12 degrees, respectively. The total number of protons with energies above 0.42 MeV was estimated to be larger than  $8 \times 10^{10}$  protons/shot. The conversion efficiency from laser energy on target to proton energies above 0.42 MeV was higher than 1.4%. This conversion efficiency is much higher than ever published results. We speculate that it was owing to the real time monitoring with proton TOF spectrometer which enabled us to optimize the parameters for high-quality proton beam generation. Another possibility is the condition of the target which might have the high concentration of water vapor and/or hydrocarbon in contamination layer at the target rear surface. In order to produce high-quality proton beams, Bulanov *et al.* proposed a two-layer targets in which the first layer consists of heavy multicharged ions and the second layer consists of protons [14]. Through 3D PIC simulation in double layer target with infinite foil as our case, he showed that the proton energy spectrum is quasi-thermal to some extent and has a nonuniform pedestal, and the cutoff, which can be seen in Fig. 7(b).

One more interesting phenomenon is the ridge structure around 1.8 MeV as shown in fig. 7(b) which may correspond to the quasi-monoenergetic proton generation as the same as in the reference [8] and it was also expected in 3D PIC simulation result of ref. [14]. More detailed investigations are underway and the results will be published in elsewhere.

## 5. Conclusions

We have constructed a 100-TW Ti:sapphire laser system and with the 30-TW beams which uses only up to the 1<sup>st</sup> main amplifier of the system, we performed electron and proton acceleration experiments. In the electron acceleration experiment, we obtained electron beams with the energy of as high as 50 MeV and observed quasi-monoenergetic behavior. In the proton generation, we generated the proton beams with

the maximum energy of about 2.4MeV and the conversion efficiency was higher than 1.4%. And we also found the indication of quasi-monoenergetic proton beam generation.

### Acknowledgement

This work was supported by the Ministry of Commerce, Industry, and Energy through the Ultrashort Quantum Beam Research Facility Program and the Ministry of Science and Technology through the Korea-China-Japan Trilateral Collaboration Program.

### References

- [1] <http://www.hiper-laser.org/public/index.htm>
- [2] [http://loa.ensta.fr/Extreme\\_Light\\_Infrastructure/EliWeb1.html](http://loa.ensta.fr/Extreme_Light_Infrastructure/EliWeb1.html)
- [3] G. Mourou and V. Yanovsky, "relativistic optics," in Optics & Photonics News, 40-45 (2004).
- [4] S. P. D. Mangles *et al.*, "Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions," Nature **43**, 535 (2004).
- [5] C. G. R. Geddes *et al.*, "High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding," Nature **43**, 538 (2004).
- [6] J. Faure *et al.*, "A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams," Nature **43**, 541 (2004).
- [7] W. Leemans *et al.*, "Electron acceleration in a capillary discharge waveguide," in AAC2006 (Lake Geneva, Wisconsin, USA, July 10-15, 2006)
- [8] H. Schworer *et al.*, Nature **439**, 445 (2006).
- [9] M. Borghesi *et al.*, Phys. Plasmas **9**, 2214 (2002).
- [10] T. Cowan *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 204801 (2004).
- [11] V. Malka *et al.*, Med. Phys. **31**, 1587 (2004).
- [12] S. Fritzler *et al.*, Appl. Phys. Lett. **83**, 3039 (2003).
- [13] J. Fuchs *et al.*, Nature Physics **2**(1), 48-54 (2006).
- [14] S. V. Bulanov *et al.*, Plasma Phys. Rep. **28**(12), 975 (2002).

### 3.2 Development of Coherent X-rays in the APRI

H. T. Kim<sup>1</sup>, I. W. Choi<sup>1</sup>, J. H. Sung<sup>1</sup>, T. J. Yu<sup>1</sup>, N. Hafz<sup>1</sup>, K. -H. Hong<sup>1</sup>, T. M. Jung<sup>1</sup>,  
J. -H. Kim<sup>1</sup>, D. -K. Ko<sup>1</sup>, J. T. mmmler<sup>2</sup>, K. A. Janulewicz<sup>2</sup>, P. V. Nickles<sup>2</sup>, and J. Lee<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Femtoscience Lab., Advanced Photonics Research Institute, GIST,

Oryongdong 1, Bukgu, GwangJu, Korea.

<sup>2</sup> Max Born Institute, Max-Born-Strasse 2A, D-12489 Berlin, Germany.

The generation of coherent x-ray source using intense laser pulses has attracted much attention due to its broad applications to x-ray spectroscopy, high resolution imaging and holography. There are two different methods to generate coherent x-rays using intense laser pulses: one is the high-order harmonic generation (HHG) and the other is the x-ray lasers (XRL). In this proceeding, we report progress and plan of coherent x-ray generation including HHG and XRL using an 100-TW Ti:Sapphire laser in the APRI.

**Keywords:** Coherent X-ray, High-order harmonics, X-ray laser, Laser plasma

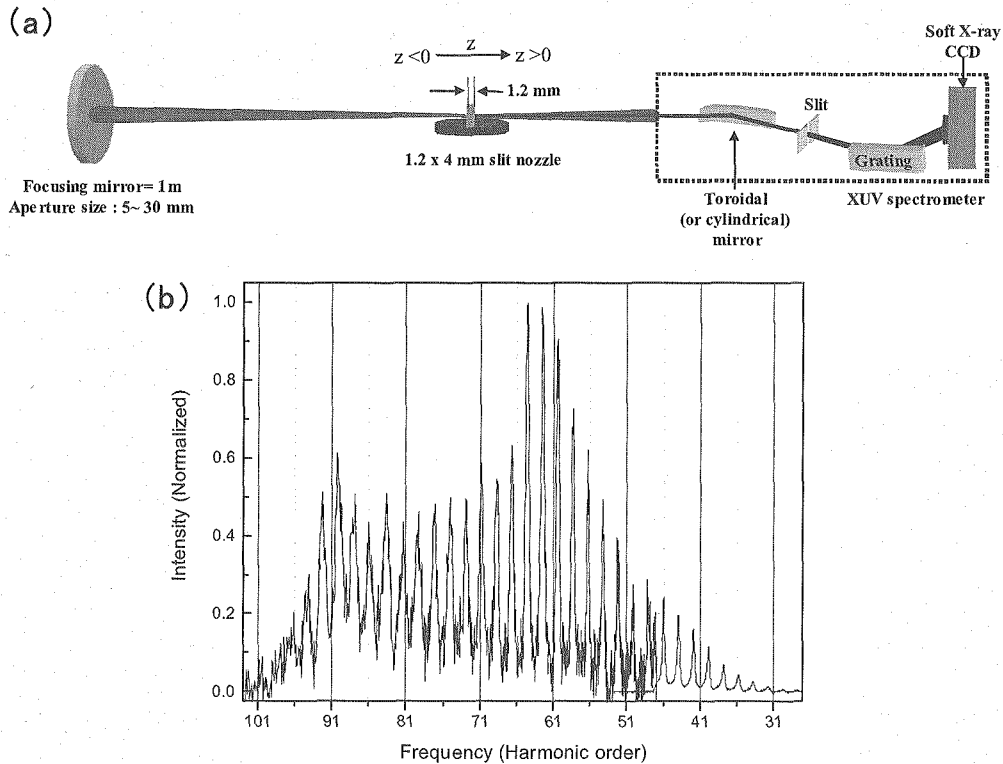
#### 1. Introduction

Coherent x-rays using intense laser pulses has been an important light source because of its applications to high resolution interferometry/holography [1] and ultrafast x-ray spectroscopy[2]. High-order harmonic generation [3] and x-ray lasers [4] are well developed methods to generate coherent x-rays using intense laser pulses. High-order harmonics have unique properties such as ultrashort pulse duration [2], excellent coherence [1], and continuous wavelength tunability [5]. However, the conversion efficiency of harmonics in a short wavelength region below 20 nm is not high enough for broad applications while x-ray lasers from Ni-like metal ions can generate sufficient number of x-ray photons around 13 nm wavelengths. Recent progress of x-ray laser research has opened a way to achieve table-top scale x-ray laser generation. Especially, high-repetition table-top x-ray lasers were demonstrated using the grazing-incidence pumping (GRIP) scheme [6], which can reduce necessary pumping energy for x-ray laser by enhancing absorption of laser energy in plasma medium. On the contrary to high-order harmonics, transient collisional x-ray lasers have not shown a beam quality good enough for applications even though they have sufficient energy. Therefore, a new x-ray laser technique should be developed for amplifying harmonic x-ray to have high pulse energy and good beam quality for applications.

In this proceeding, we report on the progress and plan of coherent x-ray generation research in the Advanced Photonics Research Institute (APRI) based on high-order harmonic generation and x-ray laser development using a 100-TW Ti:sapphire laser. Recently, we obtained preliminary results on high-order harmonic generation and successfully developed Ni-like silver x-ray laser. The experimental results on the high-order harmonic generation and the x-ray laser development are described in sections 2 and 3, respectively. The summary is given in section 4.

## 2. High-order harmonic generation

High-order harmonic generation from noble gases is a well developed and understood method for coherent x-ray generation [3]. For high-order harmonic generation, we focused 33-fs Ti:Sapphire laser pulses on a gas target with a spherical mirror having a focal length of 1 m. The laser intensity at the focus was varied from  $1 \times 10^{14}$  to  $1 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> by changing the size of the aperture that was located before the pulse compressor. As for gas medium, we used gas jet puffed from slit gas nozzle with the size of 4 mm by 1.2 mm. Since the laser propagation axis was perpendicular to the elongated direction of the gas jet as shown in Fig. 1 (a), the length of gas medium was around 1.2 mm. The gas density at the interaction region was changed from  $1 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> to  $3 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>. High-order harmonics were detected by a flat-field soft x-ray spectrometer [7] equipped with a back-illuminated x-ray CCD. The scattered IR/visible light was blocked by thin metal filters like Zr and Al having a thickness of 0.4  $\mu$  m.



**Figure 1 (a) Scheme of high-order harmonic generation (b) High-order harmonic spectrum from He.**

We obtained the harmonics up to more than 91th order from He as shown in Fig.1 (b). In this case, the laser intensity was  $8 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> and the gas density was  $1.4 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>. Figure 2 shows the harmonic spectra from Ne and Ar with a laser intensity of  $6 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> and  $2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, respectively. The gas density of Ar and Ne medium was  $5 \times 10^{18}$  cm<sup>-3</sup>. Since the maximum order of generated harmonics is limited by the depletion of neutral atoms, the highest order of harmonics was obtained with He because of its highest ionization potential. High harmonics from Ne show the brightest generation at 63<sup>rd</sup> harmonic where the wavelength around 13 nm. The bright harmonic generation around 13-nm wavelength can have



an important role in a harmonic-seeded x-ray laser because the wavelength of Ni-like silver x-ray laser is 13.9 nm. Since we have successfully developed Ni-like silver x-ray laser using GRIP scheme as described in Sec. 3, this preliminary result on high-order harmonic generation shows the potential for harmonic seeded x-ray laser in near future.

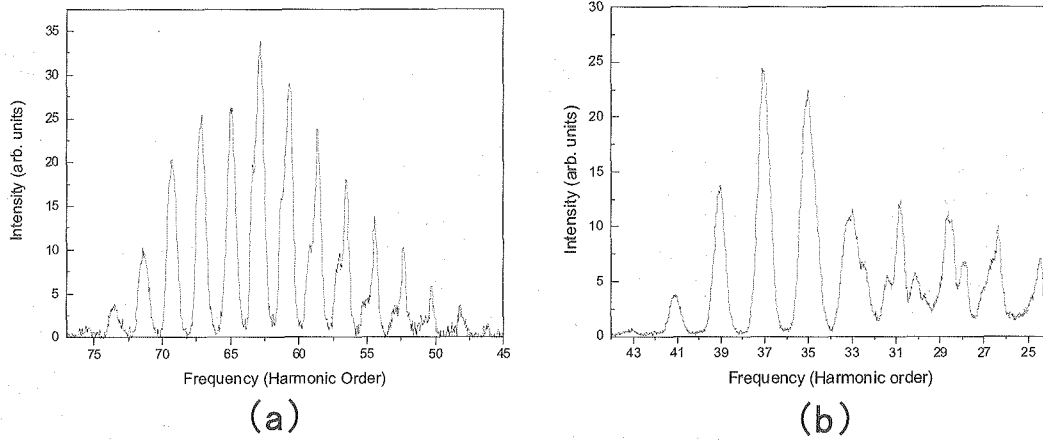


Figure 2 High-order harmonic spectra from (a) Ne and (b) Ar

### 3. Development of Ni-like Ag x-ray laser

For x-ray laser development, we applied the GRIP technique because it can maximize energy absorption by refraction in a plasma medium [6]. We succeeded in saturation of Ni-like silver x-ray laser using our 10-Hz Ti:Sapphire laser system. The pump pulses, both a 300-ps 0.5-J pre-pulse and a 5-ps 1.5-J main heating laser pulse laser, delivered into a 7 mm-long line focus as shown in Fig. 3. The obliquely ( $\sim 72$  degrees to the target normal) incident heating pulse was delayed about 300ps relative to the pre-pulse. Figure 4 shows the spectral images of the Ni-like x-ray laser with various target lengths. The small signal gain coefficient was about  $50 \text{ cm}^{-1}$  and the gain-length product was around 18. The beam divergence of this x-ray laser was around 4 mrad and Young's two-slit interferometry showed clear interference pattern of the x-ray laser beam. Consequently, we obtained a high-quality x-ray laser beam from a 7-mm silver target by using the GRIP geometry.

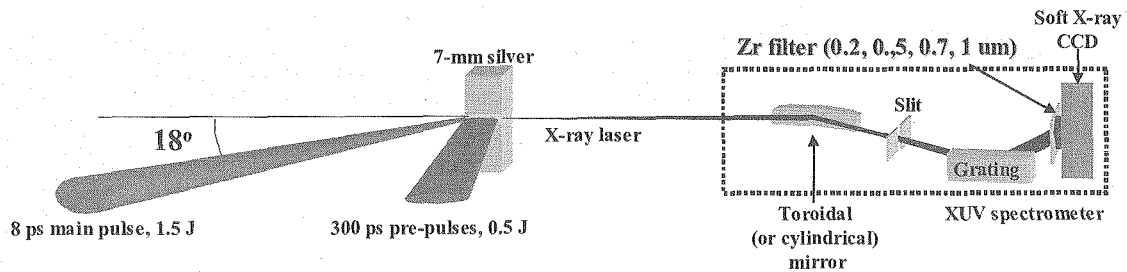
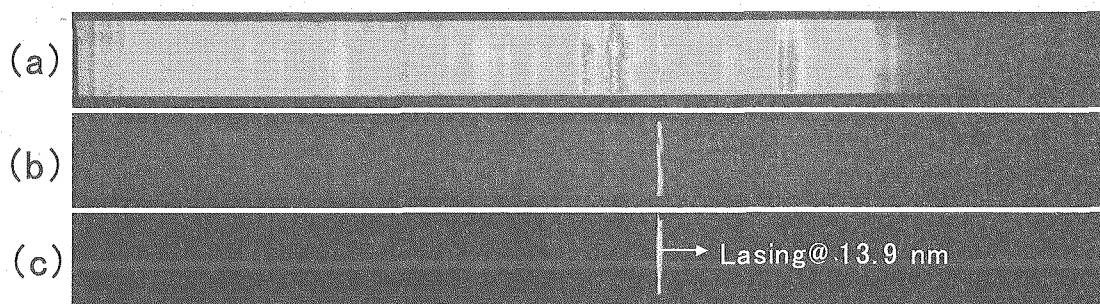


Figure 3 Scheme of Ni-like Ag x-ray laser



**Figure 4 Spectra from (a) 2-mm, (b) 4-mm and (c) 7-mm Ag target driven by 300-ps pre-pulse and 8-ps main pulse.**

#### 4. Summary

We have presented our recent results on the development of coherent x-ray sources based on high-order harmonic generation and x-ray laser. Preliminary results of high-order harmonic generation have been obtained using He, Ne, and Ar gases. Especially, we obtained harmonic around the wavelength of Ni-like silver x-ray laser by using Ne gas. Since we succeeded in developing high-order harmonics and x-ray laser, we will try to combine these two sources to achieve high-flux and high-quality coherent x-ray beam. With the availability of the Mo:Si mirrors with the high reflectivity at around 13 nm, the harmonic seeded x-ray laser using the Ni-like silver x-ray laser at 13.9 nm will be useful for many applications such as soft x-ray microscopy, holography, and x-ray nonlinear optics.

#### Acknowledgments

This work was supported by the Ministry of Commerce, Industry and Energy of Korea through the Industrial Technology Infrastructure Building Program.

#### References

- [1] R. A. Bertels et al., *Science* **297**, 376 (2002).
- [2] P. M. Paul et al., *Science* **292**, 1689 (2002).
- [3] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
- [4] D. L. Matthews et al., *Phys. Rev. Lett.* **54**, 110 (1985).
- [5] H. T. Kim et al., *Phys. Rev. A* **67**, R051801 (2003).
- [6] J. T. mmler et al., *Phys. Rev. E* **72**, 037401 (2005); R. Keenan et al., *Phys. Rev. Lett.* **94**, 103901 (2005); J.J. Rocca et al., *Opt. Lett.* **30**, 2581 (2005); Y. Wang et al., *Phys. Rev. A* **72**, 053807 (2005).
- [7] I. W. Choi et al., *Appl. Optics.* **36**, 1457 (1997).



### 3.3 Recent Activities on High Field Physics in the Institute of Physics, CAS

Z. M. SHENG, Y. T. LI, and J. ZHANG

Laboratory of Optical Physics, Institute of Physics, CAS, Beijing 100080, China

A brief review of recent activities is introduced on the high intensity laser-plasma interactions at the Institute of Physics, CAS, Beijing. Selected experimental and theoretical studies are highlighted. Firstly, we report the experimental observation of fast electron emission along the solid surface in laser-solid interactions. Numerical simulations suggest that the betatron resonance acceleration occurs in such an interacting geometry. Secondly, we propose the bulk acceleration of ions in laser interaction with foam targets. This is confirmed experimentally by the observation of enhanced neutron yields from deuterated foam targets as compared with deuterated solid targets. Thirdly, some theoretical studies are introduced such as the laser pulse compression by the plasma Bragg grating, terahertz emission from laser wakefields in an inhomogeneous plasma.

**Keywords:** surface electron emission, betatron acceleration, bulk acceleration of ions, plasma Bragg gratings, pulse compression, laser wakefield emission

#### I. Introduction

The high field physics has developed rapidly in recent years, towards wide potential applications [1]. Our research group at the Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, has been devoting itself to this field in the last 7 years. Our main research topics are as follows: fast ignition related physics (generation and propagation of high energy electrons, ions, and x-rays) and applications, laser wakefield electron acceleration, laser-plasma based novel radiation sources and femtosecond (fs) pumped x-ray lasers, laboratory astrophysical processes, femtosecond laser propagation in air and applications, theory and simulations on the above mentioned topics.

As the experimental platform for high field physics research, a 20TW CPA Ti:sapphire laser system (Xtreme Light-II) with recently improved techniques was designed and constructed, delivering an energy up to 640mJ within a pulse duration of about 31fs [2]. As successor of the home-made 1.4TW Ti:sapphire lasersystem XL-I, an adaptive optics system is used in the XL-II laser system to correct the distortion of the wave-front of the laser pulses. The optimized beam quality makes it possible to realize 1.5 times diffraction limited focus, when focused by an off-axis parabola, providing a focused power density of  $10^{19}\text{W/cm}^2$ . A new laser system XL-III is under construction, which will be able to deliver energy up to 15 J in 40fs.

For relativistic laser-plasma interaction, various targets such as flat solid targets, clusters, micro-liquid droplets and foam targets were also used [2]. Instruments were built to produce clusters of various sizes. The same device can also provide us water or ethanol micro-droplets. A few spectrometers for the particle and electromagnetic emission are adopted. The main diagnostics include one  $\gamma$ -ray spectrometer to measure radiations up to a few hundred keV. A magnetic spectrometer was used to measure the fast electron energy distributions. It is mainly configured with a permanent uniform magnetic field of  $B \sim 380$  G. An array of LiF thermo-luminescent dosimeter (TLDs) detectors at the rear can record hot electrons. The energy range of this instrument covers from 7 to 500 keV, with a resolution better than 2%. The collection angle of the spectrometer is on the order of  $1 \times 10^{-3} \text{ sr}$ . Because the TLDs are insensitive to visible lights, it is not necessary to use aluminum foils in front of the TLDs. The background signal of TLDs is less than  $1.2 \mu\text{Gy}$  after annealed by heating to  $240^\circ\text{C}$ . Hot electron angular distributions are measured by spherically installed

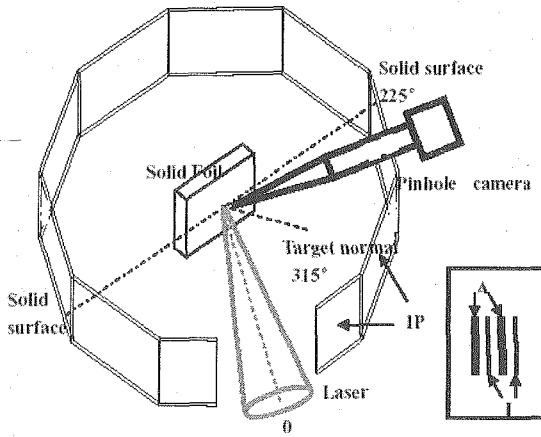
hundreds of TLDs or radiochromic film pieces around the target. The distance from the focus to the TLDs detectors was 45 mm. The angular resolution of the system was about  $6^\circ$ . The expected electron energy range was chosen by composite filter in front of detectors. The filter assembly consisted of aluminum films with different thickness. For some shots pieces of 1 mm thick CR39 was added at the top as an ion detector. Strong magnetic field was applied in the direction of strong emission signals in order to determine the effects of the x-ray as necessary.

In addition to the experimental efforts, we have developed various versions of relativistic PIC codes LP<sup>4</sup> in one-dimensional (1D), two-dimensional (2D), and three-dimensional (3D) coordinate space. These codes enable us to deal with problems with different interaction geometries and target geometries. Our 1D code has adopted a boosting frame [3], so that it can deal with oblique incidence of laser pulses. Recently, we have extended this code to include field ionization, collisional ionization, and particle-particle collisions [4]. Our 2D and 3D codes have adopted the exact charge conservation scheme [5], so that one only needs to solve two Maxwell's equations by the finite difference time domain (FDTD) method. There is no need to solve the Poisson's equation additionally. This simplifies the implement and parallelization. These codes run in the Dawning 3000 workstation and 4000A cluster in the institute, and the ShenTeng 6800 supercomputer of the Chinese Academy of Sciences. In the following, we introduce some of our research work.

## II. Surface electron emission in relativistic laser-solid interactions

The generation of fast electron beams from relativistic laser-solid interaction has been the topic of significant theoretical and experimental studies in last decades. Dense and collimated fast electron beams at different energy ranges are required for a variety of applications. For example, the concept of fast ignition in inertial confinement fusion uses relativistic electrons to heat the ignition spot in the pre-compressed fuel core [6], for which collimated fast electron beams are essential. A variety of mechanisms for fast electron generation have been proposed, such as resonance absorption, vacuum heating, acceleration by laser ponderomotive force and  $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$  force, stochastic heating and acceleration [7], and direct laser acceleration of electrons in a laser self-focusing channel [8]. Obviously, these mechanisms work under different laser and plasma parameters and interaction configurations. Recently, it was observed experimentally in our group that energetic electrons can be accelerated along solid surface [9].

The experimental setup is illustrated schematically in Fig. 1. The angular distribution of fast electrons was measured by a stack array of imaging plate (IP) at a distance of 5.5 cm radially from the focus. The size of a piece of IP is 30x50mm. Most of the  $2\pi$  space in the laser incident plane was covered by the stack array except about  $25^\circ$  radial angle left for laser incidence. The electron energy range was chosen by different thick aluminum filters in front of the first IP layer and aluminum filters between the adjacent layers. Imaging plate, a photo-stimulated luminescence detector with large dynamic range, excellent linearity, and high sensitivity, is very suitable for x-ray and charged particle measurements in laser-plasma experiments [10]. IP is sensitive to ion, x-ray, and electron. However, the  $>400 \mu\text{m}$  thick aluminum filters used before the first IP layer can block the ions generated in the experiments. Comparison of the signal intensity on IP with and without a 1500 G magnetic field shows that the contribution of x rays is  $< 5\%$ . Thus, the signal recorded by the IP is mainly from fast electrons.



Figures 2(a)-2(c) show the angular distributions of the fast electrons in the polarization plane for three laser incidence angles of  $22.5^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $70^\circ$ , respectively. The fast electrons were produced in the interaction of by a p-polarized laser pulse with a  $30\mu\text{m}$  thick aluminum foils at a subrelativistic laser intensity of  $4\text{--}5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ .  $0^\circ$  corresponds to the laser incident direction. Each data point in the polar diagrams was obtained by integrating the signal intensities on IP. One can see that in the polarization plane some fast electrons are distributed between the target normal and the laser specular directions in front of the target. This is similar with previous theoretical and experimental observations from different groups [11]. The most striking aspect of our measurements is the presence of part of fast electrons ejected along the front target surface, marked as “surface electrons” in the figures (In Fig. 2(a) an inset with enlarged scale is used to show them clearly). In particular, the component of the surface fast electrons increases with the laser incidence angle. It even dominates the fast electron emission, the peak reaching  $\sim 5$  times greater than the component of the hot electrons close to the target normal for the case of  $70^\circ$  incidence angle. Moreover, in this case the surface electron beam is also well-collimated with a emission cone angle less than  $15^\circ$  (the full width at half maximum).

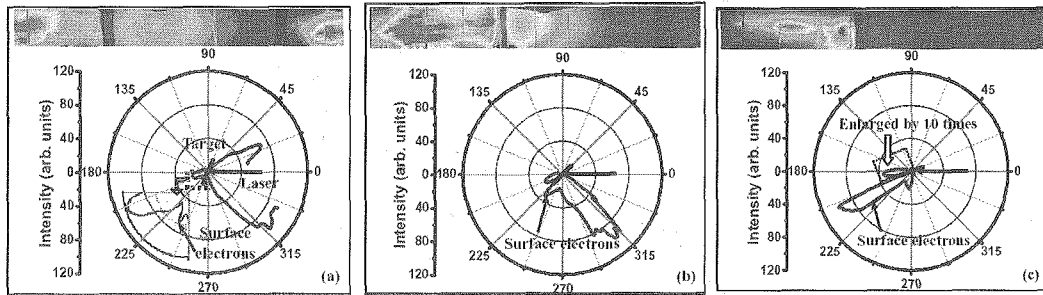


Fig. 2 Angular distributions of the fast electrons with energies greater than 300 keV in the laser incident plane for the p-polarized laser pulse at an intensity of  $1\text{--}2 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  for three different incidence angles of  $22.5^\circ$  (a),  $45^\circ$  (b) and  $70^\circ$  (c).

Those direct observations of surface fast electrons provide strong evidence for the theory of surface magnetic field proposed recently [12], in which fast electrons are guided along the target surface by the confinement of quasistatic magnetic fields and electrostatic sheath fields. Further evidences come from the distribution of the transmitted fast electrons, which are also shown in Fig. 2. The intensities of the hot electrons behind the targets are much less than in front of the targets. To show the signals clearly, the

intensities of the transmitted electrons have been artificially multiplied by a factor of 10 in Fig. 2(c). One can see that the peak of the transmitted electron beam is deflected slightly to the rear target surface for the  $22.5^\circ$  incidence angle. This deflection, however, become much obvious for the  $45^\circ$  and  $70^\circ$  incidence angles, nearly paralleling with the rear surface.

We propose a mechanism of electron acceleration along the front solid-target surface when a laser pulse is incident obliquely at large angles [13]. Our simulations show that large quasistatic magnetic and electric fields are generated near the target surface. These two fields will confine some electrons at the target surface, where the electron trajectories show typical betatron oscillations. At large angles of incidence such as over  $60^\circ$ , the reflected laser pulse is able to intersect with the betatron oscillation trajectories of these confined electrons. Some of them are accelerated significantly in a way similar to that in the laser self-focusing channel [8].

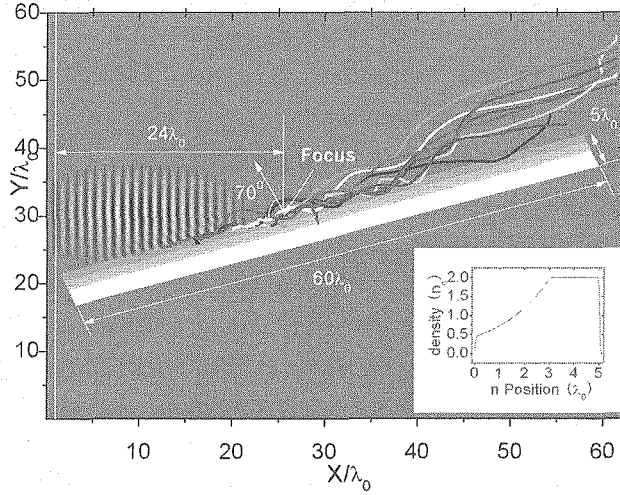


Fig. 3 Simulation geometry and selected electron trajectories along the target surface. The inset frame shows the initial target density profile along the normal to the target surface.

We have conducted two-dimensional (2D) particle-in-cell (PIC) simulation. The simulation parameters are as follows. The target is  $5\lambda_0$  thick and  $60\lambda_0$  long, which is tilted with respect to the simulation box to allow for the oblique incidence of a laser pulse. The linearly polarized laser pulse obliquely irradiates the target from the left side of the simulation box with the incident angle  $\alpha = 70^\circ$ . The focal spot is  $10\lambda_0$  with a Gaussian profile, where  $\lambda_0$  is the laser wave length in vacuum. The temporal profile of the laser pulse is  $a = a_0 \sin^2(\pi t / T)$ , where  $a$  is the vector potential normalized by  $m\omega_0 e / c$ . In the simulation, we take the peak amplitude  $a_0 = 2.0$ , and the pulse duration is  $T = 60\pi / \omega_0 = 30T_0$  with  $\omega_0$  the laser frequency and  $T_0$  the laser oscillation period. The total size of the simulation box is  $62.5\lambda_0 \times 60\lambda_0$ , where  $X$  is the pulse propagation direction and  $Y$  is the polarized direction. The laser pulse is incident with p-polarization. Figure 3 shows the simulation geometry.

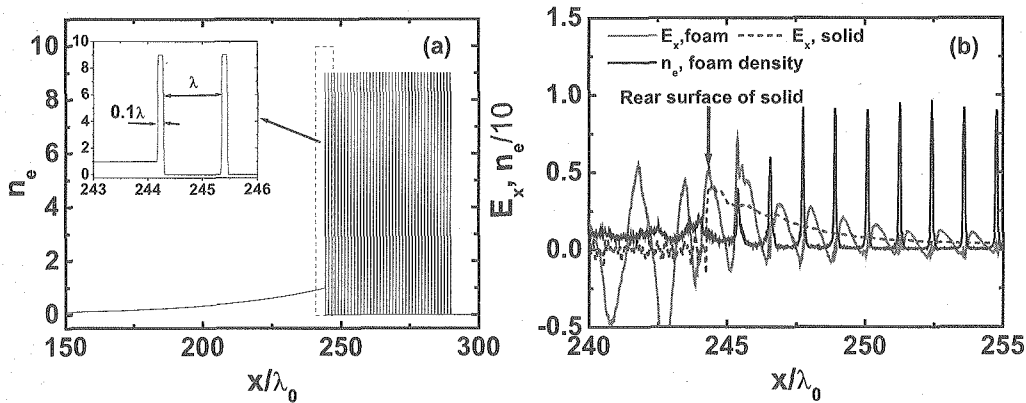
Simulation results show there is a bunch of electrons emitted along the target surface. Some selected trajectories of these fast electrons are shown in the figure. Typically they oscillate for a few periods along the surface before leaving the interaction region. Simulations show that quasistatic electric and magnetic fields are induced near the target front surface. The quasistatic magnetic field is unipolar at the front surface with its peak located inside the solid target, as also discussed in Ref. [12]. While the electric fields have two peaks,

one inside and another outside the target. The presence of these two quasistatic fields will produce significant effects on the emitted electrons at high energies.

### III. Bulk acceleration of ions in laser-foam interaction

Ion acceleration in high-intensity laser interaction with solid targets has been studied extensively in recent years [14,15]. Protons and ions in this energy range can find various application such as fast ignition fusion [16], generation of medical isotopes, medical therapy of cancers, injectors for conventional accelerators. In the intense-laser interaction with solid foils, usually there are three groups of accelerated ions, the first two occur at the front surface, moving backward and forward, respectively [14], and the third one occurs at the rear surface, moving forward, due to the hot electron transport through the target rear surface [15]. Thus, ion acceleration can be considered as a kind of surface acceleration, occurring both at the rear-side surface and the front-side (or critical density) surface.

we propose that a target with density discontinuities such as a foam target can result in the acceleration of large number of ions around the discontinuity surfaces inside the target to moderate energies [17]. This is referred as bulk acceleration here to distinguish it from the surface acceleration with a solid foil target. When hot electrons produced in the ultraintense laser-plasma interactions transport through such a target, strong charge separation fields will be induced around each lamellar layer of the foam in a way similar to laser interaction with a single solid foil. Such electrostatic fields result in serious inhibition of the transport of hot electrons and in the meanwhile accelerate ions inside. Comparing with surface acceleration, the number of accelerated ions could be significantly enhanced in the bulk acceleration inside the foam, even though the maximum ion energy is reduced obviously. Experimentally the bulk acceleration of ions is inferred from the higher neutron yields with foam targets than that with a normal solid target.



We start by PIC simulations to investigate the laser interaction with a foam-like target. A foam target is composed of irregular lamellar layers distributed randomly in three-dimensional geometry. To simplify the problem, we first construct an one-dimensional (1D) foam, which is an array of thin solid films with a gap between neighboring layers. This would lead to difference with the resulting ion acceleration both in its energy and angular distributions from a real foam target. But the advantage with the 1D foam is its simplicity

in clarifying the main physics involved in the interactions.

In the simulations, the plasma density in the underdense region increases from  $0.01n_c$  to  $n_c$  exponentially in a scalelength of  $40\lambda_0$  [see Fig. 4(a)] to model the preplasma formed by prepulse, where  $n_c$  is critical density and is  $\lambda_0$  laser wavelength, respectively. This preplasma has significant effect on electron acceleration and thereafter ion acceleration. The high density region consists of 40 thin layers of overdense plasma at a density of  $9n_c$  in the  $x$  direction to imitate the foam structure. The thickness of each layer is  $d=0.1\lambda_0$  and the separation between neighboring layers is  $L=\lambda_0$ . The target consists of fully ionized deuterons (ion mass is  $3680m_e$ ),  $D^+$ , and carbon ions with ionization of 4,  $C^{+4}$ . The incident laser intensity is  $4.0 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ . Figure 4(b) shows the induced longitudinal electric fields for the foam and solid targets, as well as the electron density for the foam target at  $t=400$  laser cycles. In the case with the solid foil, when the hot electrons produced in the laser-plasma interaction transport through the rear target surface, an electrostatic field is built up behind, which decays with the distance from the rear surface. This field accelerates ions from the rear surface into the vacuum. This is the so called target normal sheath acceleration (TNSA). However, in the case with the foam target, an electrostatic field with multi-peaks is built up around each lamellar layer inside the bulk foam when hot electrons transport inside it, as shown in Figs. 4(b).

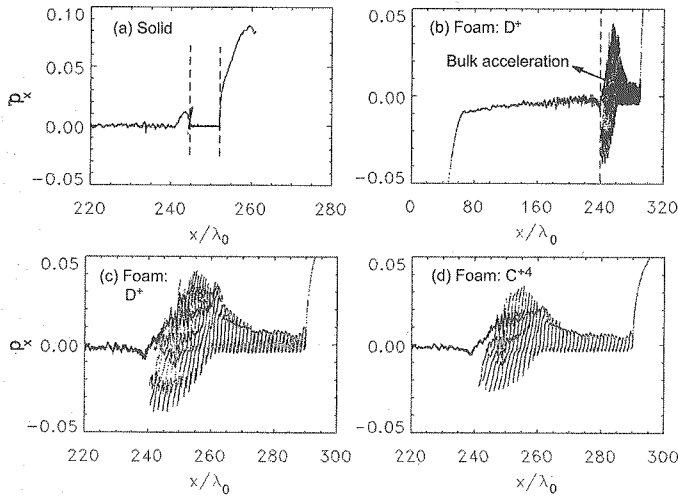


Figure 5 shows ion distributions in the longitudinal phase. In laser solid interaction, ion acceleration is found only in the front and rear surface. However, in the laser-foam interaction, bulk acceleration is found inside the target as shown in Fig. 5(b). This is caused by the induced field around surfaces of each lamellar layer. Figure 5(c) is a closeup of the bulk acceleration region, which shows clearly that almost all ions are accelerated. In our test simulation,  $C^{+4}$  is also accelerated to a similar level as shown in Fig. 5(d), because the charge-mass ratios are similar for our ionized deuterons and carbons.

We conducted experiments to study the different ion acceleration processes with solid and foam targets. The experiments were carried out using the PW laser facility Gekko XII and the laser system Gekko Modulate II (GMII) at the Institute of Laser Engineering, Osaka University. In the GMII experiments, 0.6 ps, 1.053 mm p-polarized laser pulses with an energy up to 10 J were focused by an  $f/3.8$  off-axis parabolic mirror onto the target. The incidence angle of the laser beam was  $20^\circ$ . The diameter of the focus on targets was also about  $30 \mu\text{m}$ . A prepulse with energy about  $3 \times 10^{-3}$  of the main pulse, originating in the regenerative amplifier, starts from 700 ps ahead of the main laser peak. Therefore, the main laser beam interacted with a preplasma in all cases. Both low-density deuterated foams and solids were used as targets. The target



material was deuterated Polystyrene  $[(C_2D_3)_n]$ , with D enrichment  $> 98\%$ . The foams were prepared by the sol-gel-aerosol method. Two different foams with average densities of  $50\text{mg/cm}^3$  and  $160\text{ mg/cm}^3$ , respectively, were used.

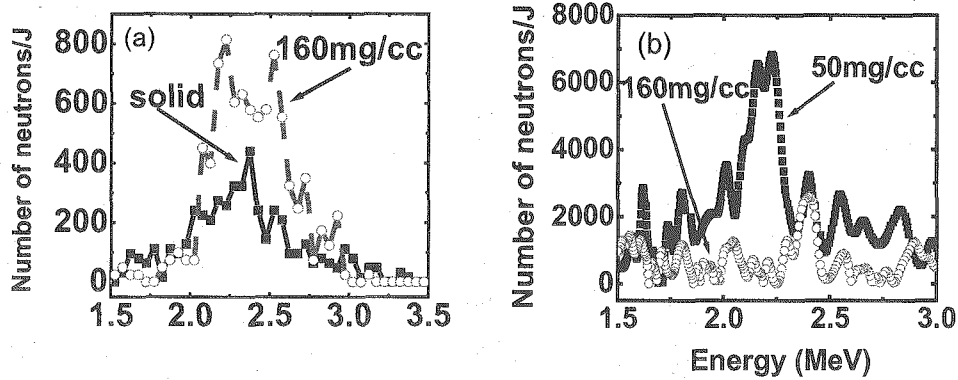


Figure 6(a) shows the neutron spectra for a 0.25 mm thick solid and a 1.6 mm thick, 160 mg/cc foam, measured by the Mandala detector in front of the target at  $76^\circ$  with respect to the front target normal and at a distance of 13.5 m from the target. Figure 6(b) shows the neutron spectra of the same shot of the 160 mg/cc foam and the neutron spectrum of a 1 mm thick 50 mg/cc foam, measured by a single channel detector in front of the target at  $16^\circ$  to the front target normal. The single channel detector is put at a distance of 4.5 m for the shot on the 50 mg/cc foam target while at 3.0 m for the shot on the 160 mg/cc foam target. The laser energy is 190 J, 103 J, and 160 J for the 50 mg/cc foam, 160 mg/cc foam, and solid, respectively. Note the spectra for the 160 mg/cc foam in Figs. 6(a) and 6(b) were measured in different directions. The neutron yield for the 50 mg/cc foam is about 7000 per Joule laser energy, which is higher than 2500 per Joule energy for the 160 mg/cc foam at  $16^\circ$  to the target normal. Moreover, the neutron yield from the 160 mg/cc foam is also higher than that from the solid in Fig. 6(a). Taking account for the lower densities of the foam, the high neutron yields for foam targets imply that there are more energetic deuterons produced inside the foam targets than that inside the solid target.

The split peak in Fig. 6(a) indicates that part of ions are accelerated in the radial direction. To deduce the momentum distributions of the accelerated ions, we are developing a three-dimensional Monte-Carlo code to simulate the measured neutron spectra. The preliminary results show that the momentum distributions of the accelerated ions consist of two components, a predominantly isotropic one (70-90%) and a radial one (10-30%). The radial ion component would be generated by hole-boring or shock wave acceleration mechanism [18]. While the isotropic component is due to the random distribution of the lamellar layers in a real foam target.

#### IV. Plasma Bragg grating formation and laser pulse compression

Laser intensities have grown remarkably during recent years due to the chirped pulse amplification (CPA) technology. In CPA, the amplified chirped pulse is compressed by a grating. Usually the thermal damage threshold (DT) for the conventional gratings made of metals or dielectrics is limited to a few J/cm<sup>2</sup> for subpicosecond laser pulses. This proves to be one of the most significant barriers limiting peak light intensities with this technology. The plasma medium has, however, no thermal DT and can sustain extremely high intensities. Recently there have been a few efforts to control ultrashort intense laser pulses in the plasma medium, such as plasma focusing mirrors [19] and proposed light amplification or compression concepts in plasmas [20]. Most recently, we propose that plasma Bragg gratings (PBG) [21] can be used to manipulate ultrashort intense laser pulses [22]. The ponderomotive DT of the PBG is found to be a few 10<sup>3</sup>J/cm<sup>2</sup> for subpicosecond laser pulses, three orders larger than that of the conventional gratings. The light speed reduction, pulse stretching, chirped pulse compression (CPC) and fast compression of Bragg grating soliton (BGS) have been demonstrated in the uniform PBG [22].

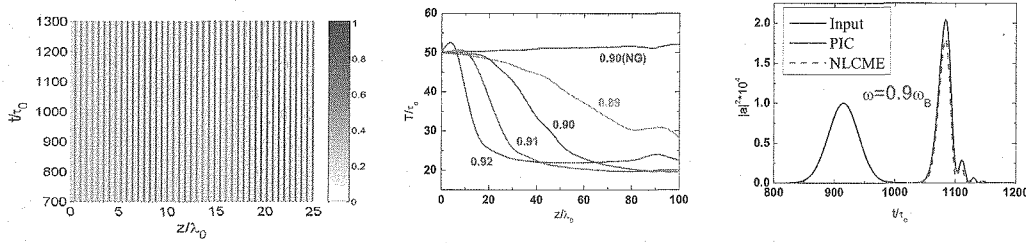


Fig. 7 (a) Spatio-temporal plot (part) of the plasma density grating induced by two counterpropagating laser pulses with amplitude  $a_0=0.03$  and duration of 200 laser cycles in uniform plasma with density  $0.3n_c$ ; (b) Compression of chirped pulses as a function of the propagating distance because of the PBG's strong dispersion. The numerical labels indicate the central frequencies of the incident pulse in unit of the Bragg frequency; (c) Compressed pulse shapes found from PIC simulation and model calculation for  $\omega=0.9\omega_B$ .

The transmissive CPC in the uniform PBG makes use of the strong grating dispersion nearby the photonic bandgap edges of the PBG. As shown in Ref. 21, the compressed pulse loses only 10% of the energy due to the grating reflection and reaches the compression efficiency of 61%. The third-order dispersion is the main limiting factor for the high-efficiency CPC in the uniform PBG. Figure 1 shows typical simulation results from our 1D PIC code on the

A kind of reflective CPC in the nonuniform PBG (NUPBG) is also proposed. The NUPBG exhibits a nonuniform photonic bandgap, which reflects light waves of different frequencies at different locations and thus produces different group-velocity delays. As a result, pulse compression can be realized either for positively or negatively chirped pulses, provided that the frequency spectrum of the chirped pulse is completely inside the widest photonic bandgap of the NUPBG.

A NUPBG can be naturally induced through intersecting two Gaussian laser pulses in homogeneous plasmas. At the location where two pump-pulse peaks meet, the strength of the ponderomotive force produced by the interference fields is the biggest and it also lasts the longest period of time. The deepest density modulation is thus induced over there. For other places, the weaker the local ponderomotive force and the shorter the life-span of this force, the shallower the density modulation. Note that such a PBG is quasi-neutral, i.e., the ion density modulation follows almost exactly with the electron density modulation [21].

Now let us consider the CPC in the NUPBG. Assuming the incident signal laser pulse is with a Gaussian profile  $a_{s0} \exp[-(1+iC)t^2/T_c^2 - i\omega_{s0}]$  with the chirp factor  $C$ , the duration  $T_c$ , and the central frequency  $\omega_{s0}$ . In particular, we take a positive-chirped pulse with  $C=4$ ,  $T_c=60\tau_0$  and  $\omega_{s0}=0.975\omega_B$ , for example. Theoretically this chirped pulse can be compressed to a chirp-free Gaussian pulse with the duration  $T_0 = T_c/(1+C^2)^{1/2}$ . Numerical simulation shows that the duration of the compressed pulse for  $a_{s0}=0.01$  is  $15.9\tau_0$ , corresponding to a compression factor of 3.8. The compression efficiency, which is defined as the ratio of the actual compression factor to the theory limit, is 91%. Moreover, the compressed pulse reserves almost completely the energy and spectrum of the input pulse. For the high intensity case with  $a_{s0}=0.1$ , the compressed pulse has two peaks. This is mainly owing to the nonlinear self-phase modulation related to relativistic electron mass correction, which stretches the frequency spectrum of the chirped pulse and makes the chirped pulse deviate from the perfect linear-chirped state.

## V. Emission of electromagnetic pulses from laser wakefields

The interactions of ultrashort intense laser pulses with plasma can provide a variety of novel radiation sources, such as short pulse X-rays, coherent high harmonics, attosecond pulses, as well as coherent far-infrared radiation in terahertz (THz) frequencies [23]. Recently, we suggest a new mechanism for powerful coherent emission of broad band, few THz radiation from laser wakefields in inhomogeneous plasmas by linear mode conversion [24]. Since the laser wakefield can be excited at amplitudes as high as 100 GV/m even at the plasma density  $10^{18}\text{cm}^{-3}$  (at which the plasma frequency  $\omega_p/2\pi=9\text{ THz}$  [25], the field strength of the mode-converted emission can reach a few GV/m.

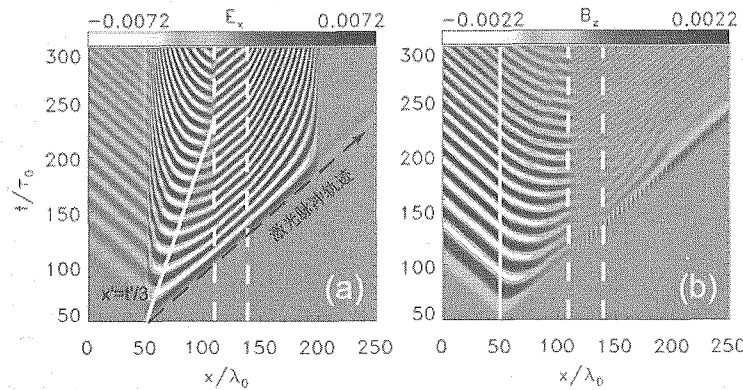


Figure 8. Spatial-temporal plots of the longitudinal electric field  $E_x$  (a) and magnetic field  $B_z$  (b) in the laboratory frame obtained from 1D PIC simulation. The incident pulse has parameters  $a_0=0.5$ ,  $d_-=20\lambda_0$ , and  $\theta=25^\circ$ . The trapezoid plasma profile takes parameters  $L=60\lambda_0$  and  $n_0/n_c=0.01$ . It rises linearly from 0 to  $n_0$  between  $x=50\lambda_0$  and  $110\lambda_0$ , then remains to be homogeneous at  $n_0$  up to  $x=140\lambda_0$ , and finally declines linearly to 0 again at  $x=200\lambda_0$ . The white solid line in (b) shows the vacuum-plasma boundary.

Figure 8 shows the longitudinal and transverse fields in the  $x$ - $t$  plane found from 1D PIC simulation when the laser pulse is incident obliquely into plasma. In the inhomogeneous regions, Fig. 8(a) shows that the phase velocity of the wakefield changes with time. In particular, the phase velocity changes its sign in the region for increasing electron density (between  $x=50\lambda_0$  and  $110\lambda_0$ ) along the line  $x=t/3$ . Around this line, mode conversion from the wakefield to electromagnetic emission becomes possible. The reduced field

amplitude inside plasma along the line  $x=t/3$  indicates that a significant part of electrostatic energy is converted into electromagnetic energy, which propagates away. Figure 8(b) displays the magnetic field component. This is just the wakefield emission through linear mode conversion. It is found only in vacuum and in the region with increasing plasma density, i.e.,  $x < 110\lambda_0$ . This is a direct proof that the linear mode conversion occurs only in the region with positive plasma density gradients.

When taking into account the finite transverse diameter of the incident pulse, the produced wake emission is in a conical structure if the laser pulse propagates along the density gradient. The energy conversion efficiency is comparable to that found in 1D case. The conical angle of the emission decreases with increasing transverse diameters. To avoid conical emission, one can use an obliquely incident pulse so that collimated emission becomes dominant in the "specular reflection" direction, which is preferable for practical applications.

In addition to its potential use as a novel radiation source, the wake emission provides the possibility to diagnose the wakefield itself. Direct diagnostics of regular wakefields have been developed by a few groups [26]. A limitation with these diagnostics is that one obtains only some local information about the wakefield amplitude at particular positions. The wake emission can provide information about the global structure such as wakefield amplitudes, plasma densities, and even wavebreaking, etc. Particle acceleration by laser wakefields driven inside a plasma channel is also proposed for GeV electron energy gains [27]. The plasma channel allows for the laser pulse to propagate over many times of the Rayleigh length without significant diffraction and can thus increase the acceleration length. For the wakefield diagnosis inside a plasma channel is also challenging. We show that the wake emission from the plasma channel can also provide a very useful diagnostic. In the simulation, we assume that the plasma density changes like  $n=n_0+\Delta n(y-y_c)^2/y_0^2$ , where  $n_0$  is the density in the center of the channel,  $\Delta n$  is the density change. The plasma region with such a channel is located in the middle of the simulation box along the laser propagation  $x$ -direction. We take  $n_0=0.005n_c$ ,  $\Delta n=0.04n_c$ , and  $y_0=40\lambda_0$  in the following. The incident laser pulse is s-polarized with  $a_0=0.5$ ,  $d_L=10\lambda_0$  and  $W=10\lambda_0$ . It is found that there is emission towards vacuum regions from the channel at both sides. The emission appears in conical structures, similar to the case in longitudinally inhomogeneous plasma found before [24]. The magnitudes of the emission from the both sides of the channel are comparable.

## Acknowledgements

This work was supported in part by the National Science Foundation of China, the National High-Tech ICF Committee, and the Knowledge Innovation Program, CAS. We acknowledge fruitful cooperation with Prof. K. Mima and other colleagues at ILE, Osaka University through the JSPS-CAS Core University Program on Fusion Plasma. We also acknowledge our colleagues at the Institute of Physics, CAS for their contribution to the work presented in this report.

## References

- [1] G. Mourou, T. Tajima, and S. Bulanov, *Rev. Mod. Phys.* 78, 309 (2006).
- [2] J. Zhang, Y. T. Li, Z.M. Sheng, Z. Y. Wei, Q. L. Dong, X. Lu, *Appl. Phys. B* 80, 957 (2005).
- [3] A. Bourdier, *Phys. Fluids* 26, 1804 (1983); R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, *Phys. Plasmas* 3, 3425 (1996); Z.-M. Sheng *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 85, 5340 (2000).
- [4] M. Chen, Z.-M. Sheng, J. Zhang, *Acta Phys. Sinica* 55, 337 (2006) (in Chinese); M. Chen *et al.*, *Acta*

Phys. Sinica 55, 2381 (2006) (in Chinese).

- [5] T. Zh. Esirkepov, Comput. Phys. Commun. 135, 144 (2001); J. Villasenor and O. Buneman, *ibid.* 69, 306 (1992).
- [6] M. Tabak *et al.*, Phys. Plasmas 1, 1626-1634 (1994).
- [7] Z. M. Sheng *et al.*, Phys. Rev. Lett. 88, 055004 (2002); Phys. Rev. E 69, 016407 (2004).
- [8] A. Pukhov, Z. M. Sheng, and J. Meyer-ter-Vehn, Phys. Plasmas 6, 2847 (1999)
- [9] Y. T. Li *et al.*, Phys. Rev. Lett. 96, 165003 (2006).
- [10] K. A. Tanaka, *et al.*, Rev. Sci. Instrum., 76, 013507 (2004).
- [11] Y. Sentoku, *et al.*, Phys. Plasmas 6, 2855 (1999); Z.-M. Sheng, *et al.*, Phys. Rev. Lett. 85, 5340 (2000); Y.T. Li *et al.*, Phys. Rev. E 64, 046407 (2001); L. M. Chen, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 87, 225001 (2001).
- [12] Y. Sentoku *et al.* Phys. Plasmas, 11, 3083 (2004) ; T. Nakamura, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 93, 265002 (2004).
- [13] M. Chen *et al.*, Opt. Express 14, 3093 (2006).
- [14] E. L. Clark *et al.*, Phys. Rev. Lett. 84, 670 (2000); J. Badziak *et al.*, Phys. Rev. Lett., 87, 215001 (2001) ; M. Zepf *et al.*, Phys. Rev. Lett. 90, 064801(2003); K. Matsukado *et al.*, Phys. Rev. Lett., 91, 215001 (2003) ; M. Kaluza, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 93, 045003 (2004); M. S. Wei *et al.*, Phys. Rev. Lett. 93, 155003 (2004); A. Macchi, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 94, 165003 (2005).
- [15] S. Wilks *et al.*, Phys. Plasmas 8, 542 (2001); S. Hatchett *et al.*, Phys. Plasmas 7, 2076 (2000); M. Hegelich *et al.*, Phys. Rev. Lett. 89, 085002 (2002); A. Pukhov, Phys. Rev. Lett. 86, 3562 (2001); M. Roth *et al.*, Phys. Rev. Special Topics-Accelerators and Beams, 5, 061301 (2002); R. Snavely *et al.*, Phys. Rev. Lett. 85, 2945 (2000), M. Allen, *et al.*, Phys. Rev. Lett. 93, 265004 (2004).
- [16] M. Roth *et al.*, Phys. Rev. Lett. 86, 436 (2001).
- [17] Y. T. Li, Z. M. Sheng, J. Zhang *et al.*, Phys. Rev. E 72, 066404 (2005); J. Zhang *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion 47, B879 (2005).
- [18] A. Pukhov *et al.*, Phys. Plasmas 6, 2847 (1999) ; S. C. Wilks, *et al.*, Phys. Rev. Lett., 69, 1383 (1992).
- [19] M.D. Perry *et al.*, Opt. Lett. 24, 160 (1999).
- [20] G. Shvets *et al.*, Phys. Rev. Lett. 81, 4879 (1998).
- [21] Z.-M. Sheng, J. Zhang, and D. Umstadter, Appl. Phys. B 77, 673 (2003).
- [22] H.-C. Wu *et al.*, Phys. Plasmas 12, 113103 (2005); Appl. Phys. Lett. 87, 201502 (2005).
- [23] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, Phys. Rev. Lett. 71, 2725 (1993).
- [24] Z.-M. Sheng *et al.*, Phys. Rev. E 69, 025401(R) (2004); Z.-M. Sheng *et al.*, Phys. Rev. Lett. 94, 095003 (2005); Z.-M. Sheng, K. Mima, J. Zhang, Phys. Plasmas 12, 123103 (2005).
- [25] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, and A. Ting, IEEE Trans. Plasma Sci. PS- 24, 252(1996).
- [26] C. W. Siders *et al.* Phys. Rev. Lett. 76, 3570 (1996); J. R. Marques *et al.* Phys. Rev. Lett. 76, 3566 (1996); J. R. Marques *et al.*, Phys. Rev. Lett. 78, 3463 (1997).
- [27] P. Sprangle *et al.*, Phys. Rev. E 63, 056405 (2001).

### 3.4 Laser Pump Probe and Related Asian Activities

Kazuo A. Tanaka and Kiminori Kondo

Institute of Laser Eng., & Graduate School of Eng., Osaka University

Suita, Osaka 565-0871 Japan

#### Abstract

Based upon the request to be responsible to cover and promote the pump probe activities in Asia, especially in China, Korea and Japan by JAEA under the three country network project, the most recent activities are reviewed. The unique frequency space interferometer was established at Osaka University, Japan which may be used to characterize a plasma channel formation for electron acceleration. Inst. Appl. Phys. and Math., China showed a very high level x-ray laser probe interferometer technique which can be utilized for plasma formation characterization etc. KAERI, Korea shows that well defined point neutron source development which can be used to various applications such as reactor damage studies etc.

**Key Words:** Intense laser pump probe, frequency space interferometer, x-ray laser interferometer, neutron point source

#### 1. Introduction

In Japan, Korea, and China, there are growing interest for the use of ultra-intense laser for studying high energy density matter in a relativistic laser intensity regime. We would like to introduce most updated such

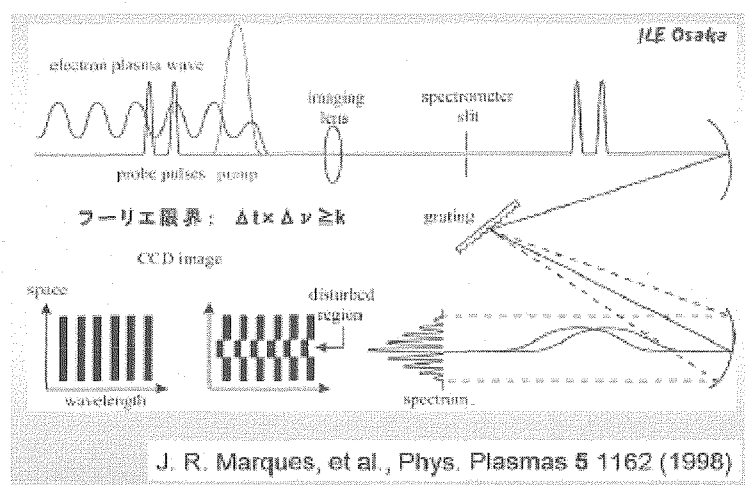


Fig. 1. Concept of frequency space interferometer in 1 dimension.

activities from these countries. From our university, the frequency space interferometric

technique was applied to study the plasma wake field for electron acceleration with a new white light origin ultra-short probe as shown in Fig.1 the schematic[1]. We hosted a high energy density workshop at the Jyuzaigo (Nine Village Valley), China in last Oct. 2005 with Prof. Z. Lin at the Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics through the Japan—China core university program organized by National Institute of Fusion Science under Prof. T. Watari sponsored by JSPS. The results from China and Korea are presented in the workshop by Dr. Guoping Zhan (SIOM)[2]. The Korea result shows a point neutron source, possibly applicable the material study while the Chinese shows an x-ray laser interferometric technique to study a plasma formation.

## 2. Frequency Space Interferometer

This technique has been recently developed by K. Kondo, Osaka University in order to know the 2-D distribution of charge state in a fine plasma channel for laser-electron acceleration application. The original idea of this type was introduced by J. Marques [3] and is shown in Fig. 1. This idea has been extended to two dimension by introducing an imaging capability with single shot capability.

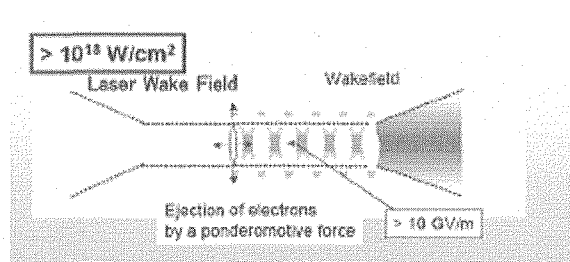


Fig. 2 Application of this type of interferometric technique to a plasma channel.

In laser wake field acceleration experiment as shown in Fig. 2, electrons in the plasma channel are ejected out of the channel by the Ponderomotive force of the pump laser light.

We present a single-shot 2D plasma measurement technique based on standard spectral interferometry (SI). High visibility interference was successfully obtained with a commercial narrowband filter. The probe pulse was spectrally broadened by a hollow fiber filled with Ar gas and then recompressed to its near transform limit by a pair of chirped mirrors, setting a constant phase over the frequency domain. The probe pulse is then split in two, and both probe pulses are temporally separated, so as to obtain interference in the frequency domain. The probe beam is then imaged through a narrowband filter onto a CCD, which records the 2D relative phase shift between both probe pulses with a single-shot at each probing time.

The experiment was performed with an OPCPA / Ti:sapphire hybrid laser system<sup>14</sup>,

which delivers 10 Hz, 50 fs pulses at 800 nm wavelength. The laser pulse was divided into pump and probe pulse with a beam splitter consisting of a high reflection mirror with a small hole at the center. The reflected pulse was used as the pump pulse, and the transmitted pulse through the hole was the probe. The experimental setup is shown in Fig. 3.

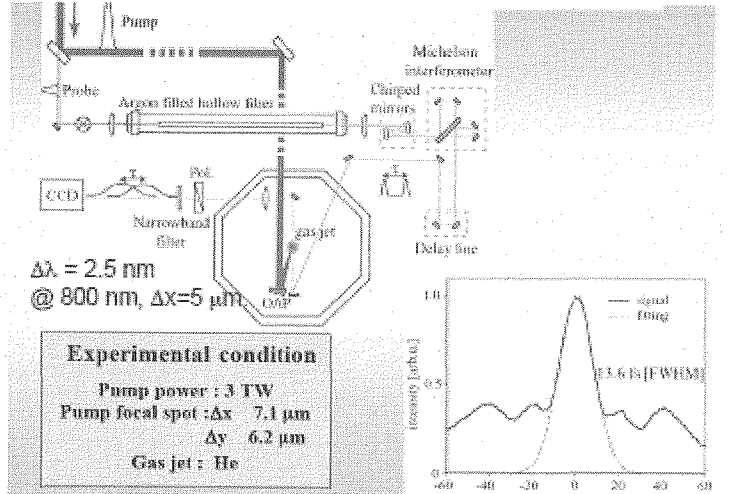


Fig.3 Experimental Set Up of 2D plasma measurement using SI technique.

The pump energy was 150 mJ and it was focused on a supersonic He gas jet with an f/4.6 off-axis parabolic mirror. The spot size of the pump pulse at the focal plane was measured to be  $7.3 \mu\text{m} \times 8.3 \mu\text{m}$  FWHM in intensity. The orifice diameter of the gas jet nozzle was 2 mm, and the average atomic number density was  $8.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ . To obtain sufficient temporal resolution, we injected the probe pulse into an Ar-filled hollow fiber where spectral broadening was induced by self-phase modulation<sup>15</sup>. The bandwidth of the output pulse from the hollow fiber was 100 nm with 100  $\mu\text{J}$  in energy. The output pulse was compressed with a pair of chirped mirrors with a negative group velocity dispersion of  $-35 \text{ fs}^2$  per reflection. After 32 bounces set to compensate for material dispersion in the setup, the pulse width was measured by single-shot autocorrelation to be 14 fs FWHM in intensity. This pulse was sent to a Michelson interferometer to generate two collinear probe pulses with adequate temporal separation. The time delay between the probe pulses and the pump pulse was adjusted by a delay line set after the Michelson interferometer. The polarization direction of the probe pulses was rotated by 90 degrees from that of the pump pulse. Probe pulses were focused inside the gas jet with an f/410 and a polarizer was inserted before the CCD to avoid stray light from the pump pulse. Moreover, the injecting direction of the probe beam was tilted by 7 degrees with respect to the pump pulse. This tilt caused the image to be asymmetric in the horizontal direction. Work is underway to demonstrate that the principle can be applied to the collinear geometry. The focal point of the pump pulse was imaged on the CCD with an f/6 lens.



The spatial resolution was  $\sim 5 \mu\text{m}$  with a magnification factor of 15. A commercial narrowband filter with a 2.5-nm spectral width centered at 800 nm was put in front of the CCD to obtain the spectral interference. The experimental results are presented in Fig. 4.

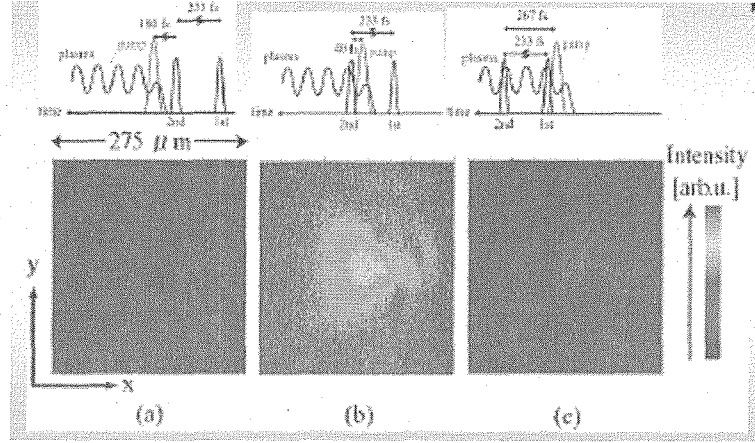


Fig.4 2D interfered data (a) probe laser pulses before the pump laser, (b) first probe pulse after the pump, but second probe after the pump pulse, (c) probe pulses after pump pulse.

The image in Fig. 4(a) was obtained when both probe pulses were earlier than the pump pulse. The relative phase shift between both probe pulses is then spatially uniform. The images of Fig. 4(b) was obtained when the first probe pulse propagated in the gas, while the second one propagated in the plasma produced by the pump pulse. These 2D images correspond to the spatial distributions of the relative phase shift induced on the second probe pulse by the plasma at an interval of 13.3 fs. An expansion of the plasma region can be observed during this interval. In comparison with the image of Fig. 4(b), the signal level of the image of Fig. 4(c) drastically decreased. The residual relative phase shift in Fig. 4(c) is thought to be caused by the electron plasma wave excited by the pump pulse, although the temporal reconstruction of the electron plasma wave could not be obtained due to the stability of the laser. The solid curve in Fig. 5 shows the spatial intensity profile along the line A-A' in Fig. 4(b). There are 3 regions which correspond to different charge state populations in the plasma. At  $50 \mu\text{m} < |y| < 90 \mu\text{m}$ , the intensity is lower than the ionization threshold of  $\text{He}^{2+}$  and the phase shift is attributed to singly-ionized He only. At  $15 \mu\text{m} < |y| < 50 \mu\text{m}$ , the pump intensity is high enough to produce  $\text{He}^{2+}$ , in addition to  $\text{He}^+$ . At  $|y| < 15 \mu\text{m}$ , He was predominantly doubly-ionized over the whole region.

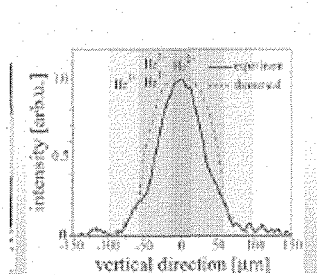


Fig. 5 Reconstructed data and theoretical calculation.

Theoretical calculations were performed and compared to the experimental results. The dash line in Fig. 5 shows the calculated profile which is consistent with the experimental result. The inhomogeneous distribution of ionized He atoms results in points of discontinuity separating the three regions also visible in the experimental profile.

### 3. X-ray Laser Pump Probe Method.

Another interesting pump probe technique is introduced referring Dr. Zhang Guoping, Inst. of Appl. Physics & Comput. Math., Beijing China.

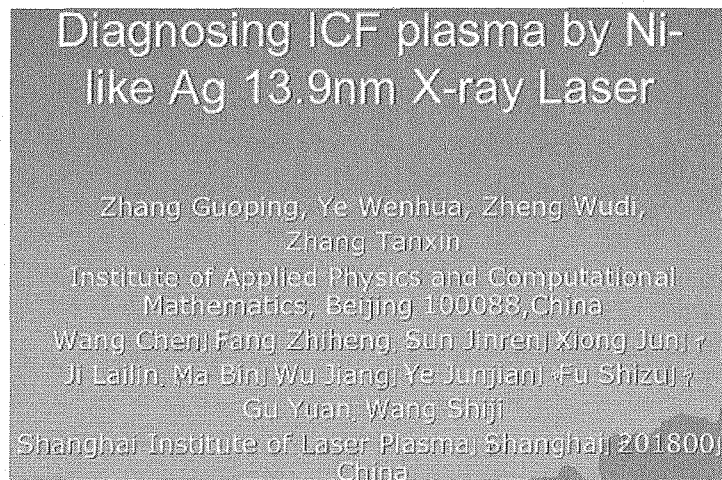


Fig. 6 Cover page of Dr. Zhang Guoping presentation.

This was presented at the 2005 workshop on ultrahigh density plasma production, application and theory for laser fusion, Oct. 9-13 2005, Nine Village Valley, China (Chaired by Prof. Z. Lin & K.A. Tanaka). The experimental set up is shown in Fig. 7, where 13.9 nm x-ray laser was set up for an interferometry.

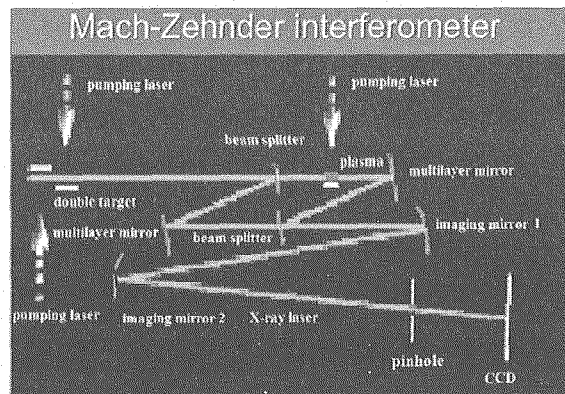


Fig. 7 X-ray Laser Interferometry Set Up.

Ni-like x-ray laser was excited on a Ag target at 200  $\mu\text{J}$  level pumped by a 100 psec laser pulse at 1053 nm at 100J. Another 1053 nm pump laser produced a plasma on a CH target at  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  intensity. After the x-ray laser beam was split into two beams, one beam went through a plasma formed by a pump laser pulse. Then two beams were combined together to make an interference image onto a CCD camera. The multilayered x-ray mirrors were used with 30-40 layers. Similarly multilayered beam splitter was used at 20 % reflectivity and transmission. The total transmission was about 0.75 %. The raw data obtained on the CCD is shown in Fig. 8 where one can see fine interference fringes change their directions according to the plasma formation.

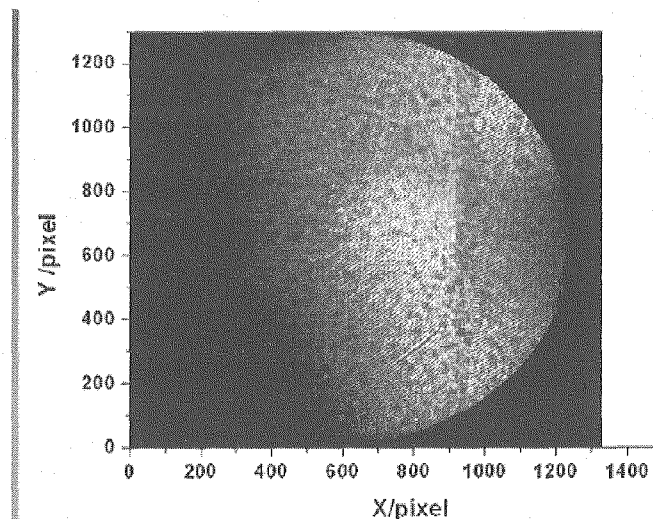


Fig. 8 Raw data obtained in the interferometric system on a CCD.

The data was reduced to reproduce the plasma profile as shown in Fig. 9, where the left hand side image shows the fringe shifts and the right hand side image shows that reproduced plasma profile. The max density observed was about  $3 \times 10^{20} / \text{c.c.}$

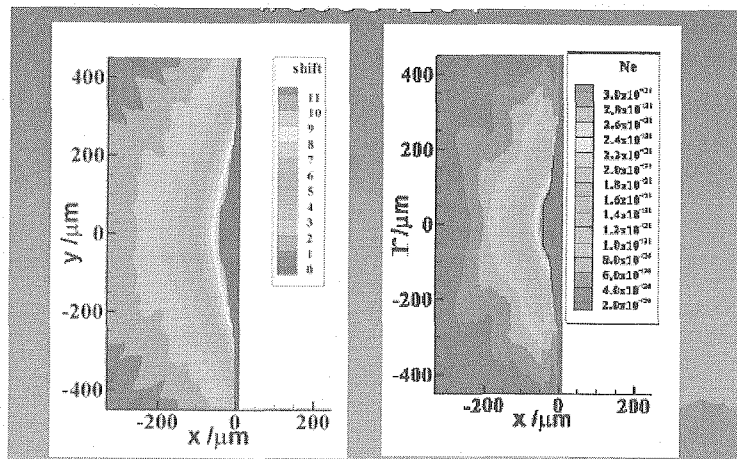
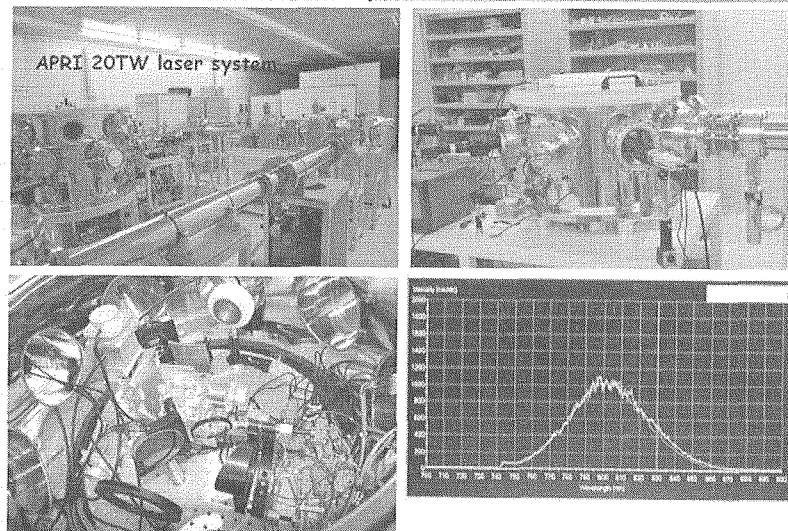


Fig.9 Left: Reduced phase shift data, and Right: Reduced plasma density profile data.

### 3. Neutron Point Source Development

At KAERI, Korea, there have been a rapid development to deploy ultra-intense laser plasma experiments.

#### Neutron generation experiment



Laboratory for Quantum Optics

KAERI 6

Fig. 10 Experimental Set Up of KAERI neutron generation.

This talk was presented by Dr. Yangjoo REE, KAERI, Laboratory for Quantum Optics, Korea Atomic Energy Research Institute, KAERI:

S.M.Nam, J.M.Han, D.H.Kwon, K.T.Lee, Y.U.Jung, Y.K.Kim, J.H.Ha,

APRI: I.W.Choi, T.J.Yu, D.K.Ko, J.M.Lee. This was presented at the 2005 workshop on ultrahigh density plasma production, application and theory for laser fusion, Oct. 9-13 2005, Nine Village Valley, China. The experiments were conducted with a 30 fsec, 100 mJ, 10 Hz,

P-polarized light. The light was focused onto a target via. f/3 45 degree incidence off axis parabola mirror with  $F = 178$  mm. The neutrons were detected with He3, CR 39, and faraday cups. CR 39 data shows that a  $0.5 \times 10^6$  neutrons/pulse.

### Laser fusion in $D_2$ clusters

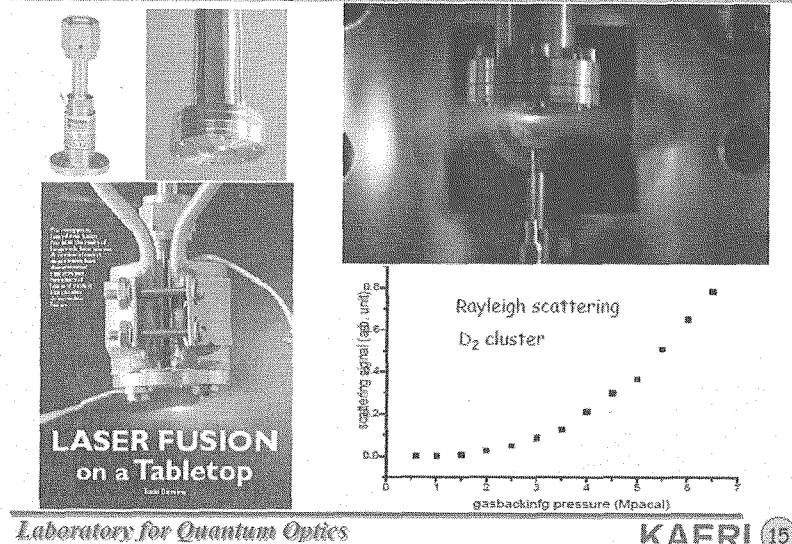


Fig.11 D2 Cluster Experiment for Neutron Generation

Also D2 cluster generation was also demonstrated. These facilities will be used for the neutron damage study for reactor walls.

#### Reference

1. Y. Hama, K. Kondo, K.A. Tanaka et al., Opt. Letters 31, 1917, 2006.
2. G. Zhan et al., presented in fast ignition and high energy density science workshop held in 2005 Workshop on Ultrahigh Density Plasma Production, Application and Theory for Laser Fusion, Oct. 9-13, 2005, Nine Village Valley
3. J. R. Marques, J. P. Geindre, F. Amiranoff, P. Audebert, J. C. Gauthier, A. Antonetti, G. Grillon, Phys. Rev. Lett. **76**, 3566 (1996).
4. Y. REE et al., presented in fast ignition and high energy density science workshop held in 2005 Workshop on Ultrahigh Density Plasma Production, Application and Theory for Laser Fusion, Oct. 9-13, 2005, Nine Village Valley



### 3.5 Nuclear Photon Science with Inverse Compton Photon Beam

Mamoru Fujiwara<sup>1,2)</sup>

- 1) Research Center for Nuclear Physics, Osaka University, Mihogaoka 10-1 Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan
- 2) Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency, Kizu, Kyoto 619-0215, Japan

Recent developments of the synchrotron radiation facilities and intense lasers are now guiding us to a new research frontier with probes of a high energy GeV photon beam and an intense and short pulse MeV  $\gamma$ -ray beam. New directions of the science developments with photo-nuclear reactions are discussed. The inverse Compton  $\gamma$ -ray has two good advantages for searching for a microscopic quantum world; they are 1) good emittance and 2) high linear and circular polarizations. With these advantages, photon beams in the energy range from MeV to GeV are used for studying hadron structure, nuclear structure, astrophysics, materials science, as well as for applying medical science.

**Keywords:** inverse Compton scattering, quark, hadron and nuclear structure, nuclear resonance fluorescence, high intensity laser

#### 1. Introduction

In the scientific field called “nuclear photon science”, many applications from basic science research to the biotechnology are performed with photon beams. Nuclear excitation, synchrotron radiation, bremsstrahlung, inverse Compton scattering are used to obtain these photon beams. Starting from the observation of X rays by Rontogen in 1895, the applications now reaches at the sophisticated technology developments with help of the fast computer such as PET (positron electron tomography) and the observation of chemical dynamics. These fields will be more widely extended for contributing to nuclear science and human life.

Historically, the scientific developments have mostly been made by observing the emitted-, reflected-, and absorbed-lights from the objects. Observations were made by naked eyes for a long time in human history. The novel invention of microscopes in 1590 and telescopes in 1608 with optical-lens combination changed the means of observation very much, and triggered to investigate the microscopic world as well as the macroscopic world, the universe. After 400 years later, we have acquired the deep knowledge both on the microscopic and macroscopic worlds: The basic elements of the microscopic world consist of quarks, leptons, and their mediators (photon, gluons, bosons). The universe starts from a big bang, and creates nuclear elements through various reaction processes in stars in the circular transmigration. Many of these observations have been made by using the probe “photon”.

In case of the studies of the microscopic world, interesting developments are now going on. For example, hadron physics are studied with GeV photon beam obtained via the inverse Compton scattering of laser photons by 8 GeV electrons at SPring-8 [1, 2, 3]. Recent experiments report that a new hadron

consisting of 5 quarks (two u-quarks, two d-quarks and one anti s-quarks (called Penta-quark particle) may exist at 1540 MeV [4]. This report has triggered world-wide enthusiasm of further experimental and theoretical researches since there is no explicit reason of quark theory to prohibit the existence of hadron particles with four, five, six quarks and so on. Although the existence of the penta-quark particle are now in controversial situation since the new high statistics experiments at the Jefferson laboratory presented the negative results on the penta-quark particle at 1540 MeV [5,6], this problem will be still discussed in future until we understand the basic reason to govern the quark world.

Apart from the hadron physics with GeV photons, our scientific development with photons seems to arrive at the birth of a new era. The laser beam is extraordinary intensified with the usage of new optical crystals [7], making the laser acceleration possible. The operation of a high intensity free-electron laser (FEL) becomes feasible [8, 9], and it is possible to use a high power infrared laser with a kW level for further applications in combination with electron beam. Surprising discovery has been achieved in obtaining electron beam with laser acceleration in 2004 [10-12]. Considering these recent developments of laser technologies, a new feasibility is now extended for a unique feasibility that is to utilize the inverse Compton process for obtaining a high intensity photon beam in the MeV energy region. Since the inverse Compton photons are naturally polarized, we can employ MeV  $\gamma$ -rays for new experiments with polarization observables. These samples are follows:

1. High precision measurements of nuclear resonance fluorescence and Mossbauer effects are much feasible for studying the nuclear structure, the basic symmetries like the parity non-conservation, materials science, bioscience, and archeology.
2. Application of nuclear physics for astrophysics: Simulation experiments by producing high-flux  $\gamma$ -rays are feasible. We can approach to answer the questions concerning the nuclear synthesis in supernova sites.
3. Application for nuclear engineering: A very small amounts of nuclear contaminant would be possible to be detected if a high resolution and intensive photon beam is available.
4. Observation of basic quantum effects would be realized by using a high-intensity polarized photon beam.

In the present report, I wish to review the history of photo nuclear science and to discuss new developments in physics with the inverse Compton  $\gamma$ -ray beams. In Japan, China, Taiwan and Korea, excellent synchrotron radiation facilities are in operation or under construction. It would be a nice timing to discuss the possibilities performed with inverse Compton photon beam.

## **2. What is the future of inverse Compton photon beam?**

Recent technologies to deliver a high intensity photon beam are enormously enhanced with an appearance of the 3<sup>rd</sup> generation synchrotron radiation facilities. Intrinsic feature of photon is the fact that photon is boson, which can be coherently overlapped in space and in time. For this reason, photon energy density increases without limitation whenever the coherence condition is satisfied. A good sample is the laser acceleration of monochromatic electron beam at  $E = 20\text{--}200$  MeV with a resolution of about 5%

[10-13]. One can say that the dream predicted by the paper of Tajima and Dawson [14] in 1979 really comes true. The point here is the fact that we can really control a high intensity photon in space and time. This feature is also used for the inverse Compton scattering process.

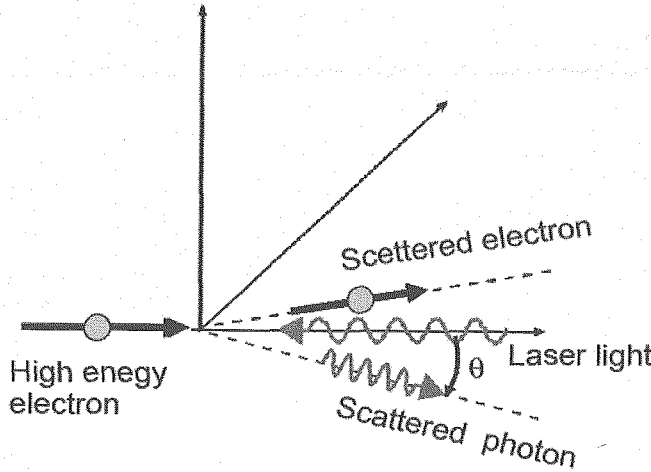


Fig.1: Scheme of Backscattered Compton Process via the collision between high energy electron and laser light. When a laser light collides with a high energy electron, the photon is recoiled and is boosted up its energy by a factor of about 4  $\gamma^2$  thanks to the relativistic effect, where  $\gamma = E_e(\text{MeV})/0.511(\text{MeV})$  is the Lorentz-FitzGerald contraction factor.

Figure 1 shows a schematic illustration of the inverse Compton scattering. If the laser light is backscattered to the electron beam direction, the maximum photon energy becomes

$$E_{\gamma}^{\max} = \frac{4vE_e^2}{(m_e c^2)^2 + 4vE_e},$$

where  $v$  is the energy of incidence laser,  $E_e$  is the energy of the electron beam,  $m_e$  is the mass of electron. The detailed description has been given in many text books. The features of the inverse Compton scattering are 1) high energies, 2) high linear and circular polarizations, 3) short pulse width, and 4) high emittance. All these features stems from the properties of the electron beam. It is noted that when the energy of the incidence laser photon is relatively high compared with the electron beam energy, almost mono-energy beam is available [15-19]. Thus, using this principle, it is possible for us to obtain the quasi-monochromatic photon beam at high energy.

An important question to be addressed is “how can we generate a “high intensity photon beam?”. In fact, the intensity of photon beam is weak in the past; this is a serious disadvantage in case of the nuclear physics experiment since the hadron beam intensity is now exceed to  $10^{15}$  /second whereas the photon beam intensity in the MeV – GeV energy region remains at the level of  $10^6$  /second. This long unfavorable situation for photon beams is now at the turning point thanks to the recent novel developments of 1) short-pulse and high-intensity electron gun, 2) acceleration of electron beam, 3) control system with high-speed personal computers, 4) short-pulse and high-intensity laser.

At present, the modern storage ring can store the electron beam at the GeV energies with an intensity more than 100 mA ( $6 \times 10^{17}$  electron/second). The laser intensity amounts to the 10 kW range. If this laser is a far-infrared laser with a wave length of 100  $\mu\text{m}$ , the laser energy is about 0.01 eV The photon intensity is



$6 \times 10^{20}$  /second. Assuming the laser and electron beams can be focused with the same size of the order  $1 \text{ mm}^2$  and the inverse Compton process is used for obtaining a MeV photon, the intensity of such photons is estimated to amount to  $10^{18}$  /second. This possible intensity is extremely higher than the present level of the photon intensity. Many scientists imagine a dream that the photon beam with an intensity of  $5 \times 10^{13}$  becomes feasible in the near future. For example, Ruth et al., [20,21] at the Stanford accelerator facility now test a new machine to obtain a photon beam in the X-ray energy region from the inverse Compton scattering. Ruth's statement is somewhat shocking. The essential point of his statement is the fact that big machines like a 3<sup>rd</sup> generation synchrotron radiation (SR) facility may not be necessary for developing the science with X-rays in future and it would be possible to obtain a compact alternative machine delivering an intensive X-ray beam compatible with those from the expensive SR machine.

Remarkable developments of the free electron laser (FEL) have been done in recent years. A high power FIR laser of 10 kW class is competitively developed [9, 22]. As an promising extension of this rapid scientific developments, the construction of the energy recovery linear-accelerator (ERL) facility is discussed [22]. If the dream comes true, the photon intensity from the inverse Compton scattering will reach at  $10^{13}$  /second, and new kinds of nuclear photo-science will be promised. At TUNL (Triangle University Nuclear Laboratory), a high intensity photon beam has been achieved using the inverse Compton scattering process between the stored electron beam and the FEL light. Some fruitful experiments aiming at the studies of nuclear physics and nuclear astrophysics are pursued with a photon intensity of  $10^7$  /second. If the photon intensity of the order  $10^{13}$  /second will be realized, the world of these studies will be completely changed.

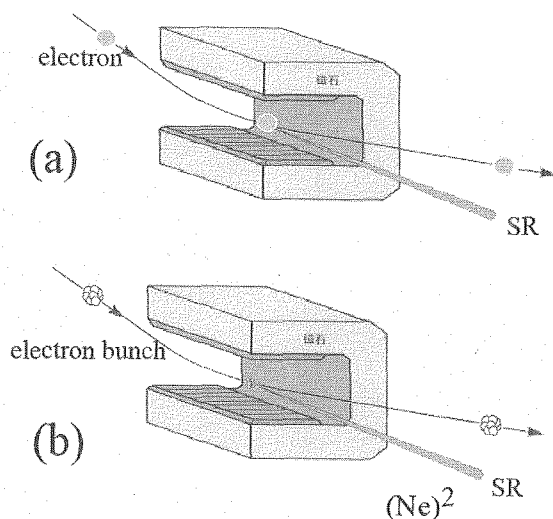


Fig. 2: Synchrotron radiation with a single electron and an electron bunch with a number of  $N$ . If the  $N$  electrons in the bunch are bent in coherent in a dipole magnet, the synchrotron radiation from the electron bunch is enhanced by a factor of  $(N)^2$  compared with that from a single electron.

First, let's consider a different challenge of obtaining a high energy photon beam using the coherency in the collision process between electron and photon. Fig.2 illustrates what happens for the synchrotron radiation if the electrons move coherently in a dipole magnet. When a single electron is bent in the dipole magnet, the basic QED process is described in terms of the coupling constant with the bare electron charge  $e$ , resulting the radiation is proportional to  $e \times e$ . In this case, the intensity of synchrotron radiation is, of course, proportional to the electron number included in the beam passing through the dipole magnet. When the bunch of the electron beam is short enough to move together in the size of the wave length of radiated

photons, a strong photon radiation is expected to be emitted thanks to the coherent effect. In fact, such enhanced radiations have been experimentally observed at the linear accelerator facility of Tohoku University [24].

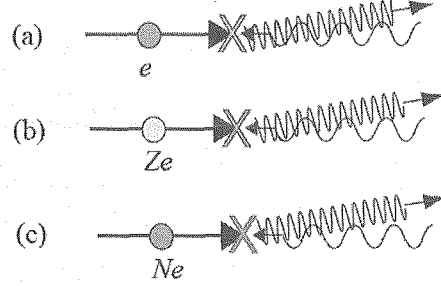


Fig.3: Compton scattering processes of photons from (a) single electron, (b) atomic nucleus with a charge  $Z$ , and (c) a beam bunch with  $N$  electrons. The scattering cross sections are given

by  $\sigma_T^e = \frac{8\pi}{3} \left( \frac{e \times e}{4\pi\epsilon_0 mc^2} \right)^2 = 6.7 \times 10^{-25} \text{ cm}^2$ ,  $\sigma_T^Z = Z^2 \sigma_T^e$ , and  $\sigma_T^N = N^2 \sigma_T^e$ , respectively.

Second, we consider the case of the inverse Compton scattering. Fig.3 shows three types of the Compton scattering processes. It is well known that the cross section of the Compton scattering process from the nucleus with an atomic number  $Z$  is proportional to  $Z^2$ . Since the individual protons in the nucleus are trapped in the nuclear potential governed by the strong force and the size of the nucleus is very small as the order of  $10^{-13} \text{ cm}$ , photon colliding with the nucleus interacts with protons coherently. The process with the electron bunch is more complex. Usually, the size of the electron beam bunch is not small, and the individual electrons in the beam bunch are not trapped in the potential, and moved randomly in the space of the beam size as a molecule of an ideal gas. If the electrons are trapped in the beam bunch and the size becomes small as the order of the wave length of incoming photons, the cross-section could be enhanced with the order proportional to  $N^2 \times \sigma_T$ , where  $\sigma_T$  is the Thomson cross-section for the photon-electron scattering. This situation is illustrated in Fig. 3(b). In fact, the mirror or polished mirror-like metal surfaces used in our common life reflect light with a 100% reflectivity. This is due to that many electrons in metal move coherently against a photon, and as a result the photon is completely reflected.

Now let's consider the collision between photons and the shortly bunched electron-beam under the special condition illustrated in Fig. 4. What we wish is to trap the electrons in the beam bunch with a special potential. The key ingredient is the method for generating the trapping field of electrons. On the basis of the idea given by Hartemann et al. [25], this trapping mechanism is given by irradiating the electron beam with a short-pulse and high-intensity laser along the same direction of the electron beam direction. Since the laser provides a very strong electromagnetic field, the electrons in the beam bunch is trapped for a short period. This kind of trapping mechanism of electrons is now a well known concept when we consider the FEL machine: the SASE (Self-Amplified Stimulated Emission) mechanism is the most important ingredient.

When the electron beam bunch is irradiated with a high intensity laser, some parts of the electron

group in the beam would be confined in the laser potential for a short period. In the same instance, we shoot the electron beam with another laser light divided from the same laser. For example, if 1000 electrons associated with the coherent scattering, the cross-section of the inverse Compton scattering is enlarged by a factor of  $10^6$ . This means that the reflectivity of the laser becomes large, and the laser energy is boost up by a  $\gamma^2$  factor as well. The possibility of achieving at the coherent scattering with many electrons is not small: The electron beam bunch with an intensity of  $\mu\text{A}$  with MHz repetition contains about  $10^6$  electrons. If 1/1000 of  $10^6$  electrons is trapped in the laser potential in the short period of the laser irradiation, the coherent Compton scattering is available. Such trails with the  $N^2$  effect in coherent inverse Compton scattering are made to generate a high flux X-rays and for the application of cancer therapy [16-19].

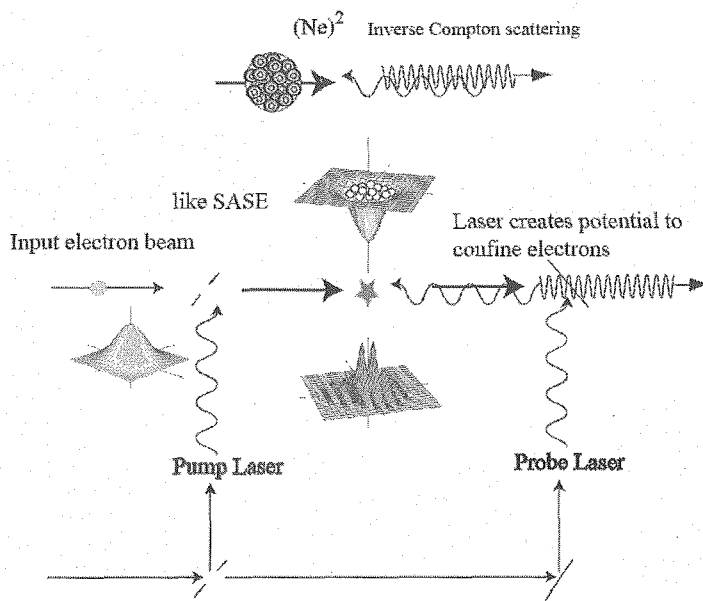


Fig. 4: Scheme illustration of the coherent backscattered Compton process via the collision between high energy electron and laser light. When a laser light collides with a high energy electron, the photon is recoiled and is boosted up its energy by a factor of about  $4\gamma^2$  thanks to the relativistic effect, where  $\gamma = E_e(\text{MeV})/0.511(\text{MeV})$  is the Lorentz-FitzGerald contraction factor. When a bunch of the electrons are trapped in a strong laser potential, the electrons in the potential move coherently, and scatter photon with a large cross-section. In such case, the reflection rate is enhanced by a factor of  $(Ne)^2$ , where  $N$  is the number of electrons associated with the collision process.

At Kansai Photon Science Institute (KPSI), there is a betatron accelerator. The beam bunch from this betatron accelerator is rather short. A high intensity laser is also guided into the same experimental room. Thus, the KPSI is the best place to check the feasibility of the coherent inverse Compton scattering with the  $N^2$  effect.

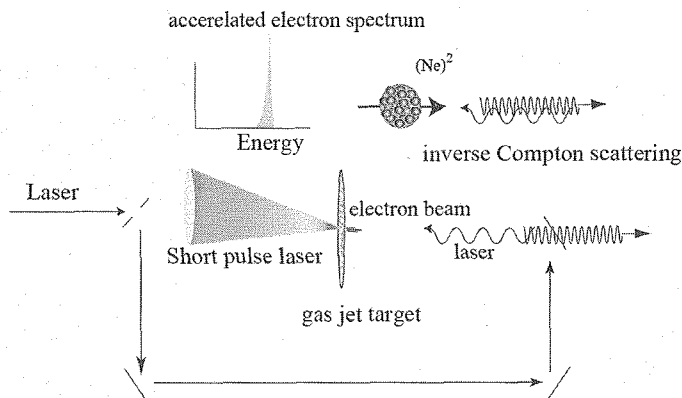


Fig. 5: Scheme illustration of the coherent backscattered Compton process via the collision between high energy electrons from laser driven acceleration and laser light.

Another possibility of testing the  $N^2$  effect is to use the electron beam from the laser acceleration. Recently,

the laser acceleration of electron beam has been realized [7,10-12]. The beam bunch of this laser driven electron beam should be extremely small with a size much less than the laser wave length of about  $0.1\ \mu\text{m}$ . It is interesting to consider what happens when the laser collide with this electron beam from the laser driven acceleration (see Fig. 5). We can expect the same coherent inverse Compton scattering from the electron beam since the electron beam bunch is expected to be very short because of the laser acceleration mechanism.

#### 4. Nuclear Photon Science with high intensity $\gamma$ -rays

A famous study of the nuclear structure using a photon beam has been made by Bothe and Gentner in 1937 [26]. They obtained the cross-section for the  $^{63}\text{Cu}(\gamma, n)$  reaction from the radioactivity induced by  $\gamma$ -radiation from the  $\text{Li}(p, \gamma)$  reaction. The cross-section value is about  $5 \times 10^{-26}\ \text{cm}^2$ , which corresponds to those of exciting the giant dipole resonances (GDR) in nuclei. Actually, the existence of such GDR excitation mode has been commonly recognized from the work by Baldwin and Klaiber [27] in 1947. Since then, many discoveries were reported on the nuclear level excitations. The “nuclear giant resonances” have been one of the important subjects in nuclear physics for long time. “Photon” played an important role to probe the nuclear structure because the nature of photon is completely well understood in terms of QED. It should be noted that the observation of  $\gamma$ -ray de-excitation is also a powerful tool to study nuclear level structures.

Needless to say, the discovery of nuclear resonance fluorescence (NRF) is a benchmark event in the development of nuclear physics. Especially the finding of the recoil-less NRF by Mossbauer brought a great benefit for the materials science. Combining NRF methods with a high-resolution Ge detector, nuclear structure has been studied for many stable nuclei [28-30].

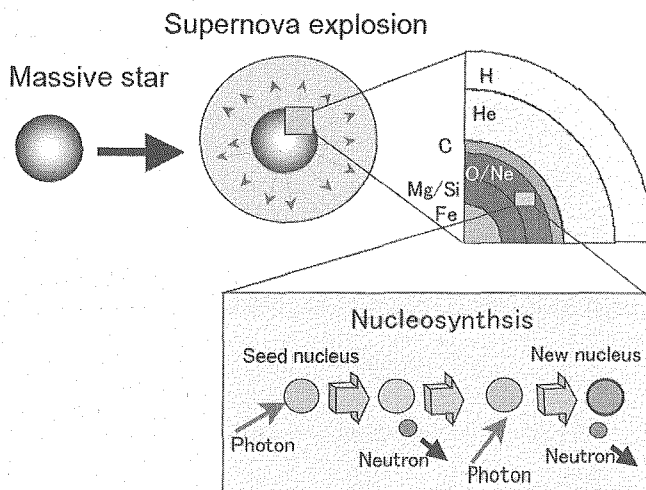


Fig. 6: Schematic drawing to explain the production mechanism of *p*-nuclei in the strong photon field at supernova explosions. At the death of a star with a mass by about twenty times heavier than the mass of the sun dies, the core irons in the heavy star start to capture electrons and explode. As a result, nuclei at the core of star become neutron rich, leading to a neutron star. However, nuclei at the outside of the supernova star capture neutrons, and become heavier. This heavy nuclei are irradiated with extraordinary strong photons from the supernova explosion at the star center. There is a possibility to make neutron deficient nuclei after repeating two  $(\gamma, n)$  processes. This kind of nuclei is called “*p*-nuclei”. (by courtesy of T. Hayakawa).

In recent years, the demand to study the nuclear synthesis processes with photons increases since some new observations in cosmos are reported. Especially, the nuclear synthesis at the site of supernova explosion is considered to be of importance in understanding the story to create nuclear elements from

light to heavy. In order to experimentally simulate the nuclear reaction processes in the photon fields at the supernova site, a extremely high-intensity photon-beam is required.

Figure 6 shows a scheme to illustrate the creation process of  $p$ -nuclei at the supernova site. The mechanism of the  $p$ -nucleus synthesis was one of the mysteries in astrophysics. Hayakawa et al., [31] conclude on the basis of the systematic nuclear-abundance ratio and of the theoretical network calculation that the  $p$ -nuclei are created by sequential two  $(\gamma, n)$  processes in ultra-high  $\gamma$ -ray fields at the supernova site. It becomes gradually clear that in our solar system, the elements up to heavy uranium are synthesized by repeating supernova explosions several times and the  $s$ - and  $r$ -processes in stars of the Galaxy. Further detailed studies of the nuclear synthesis in cosmos are needed for understanding the birth history of the solar system, and the earth. Especially, the explosion mechanism of supernovae is remained as an unsolved problem. For this purpose, knowledge of detailed nuclear structures of the  $fp$ -shell nuclei is still required. The NRF experiments with high-intensity photon beams at  $E_\gamma > 5$  MeV are useful to understand the level structures concerning the E1 and M1 excitations. The information on the M1 strengths in nuclei is especially important for the neutrino absorption calculations for construction of a large-scale detector to detect the supernova neutrinos, which are expected to appear within a few seconds. Thanks to the recent developments of nuclear theories, more sophisticated experiments are also required to refine the theoretical calculations. On basis of the new developments of shell-model and alpha-cluster calculations, new experiments for photo-absorption processes are necessary for further improvements of theories.

If a high-intensity photon beam via the inverse Compton scattering process, a great benefit in physics experiments is “linear and circular polarization”. Circular polarized photon beam is useful for the parity non-conservation (PNC) experiment to study the weak-boson and nucleon coupling in nuclear medium. The origin of  $\beta$ -decay is now well understood as a manifestation of the exchange process of charged weak bosons,  $W^+$  and  $W^-$  after the discovery of mirror symmetry violation in  $\beta$ -decay by Wu [32], following the suggestion by Lee and Yang [33]. Observations of the PNC effect in nuclear excitation are not quite new. The trial to observe the PNC effect was first reported by Tanner in 1957 [34], followed by the famous work of Feynman and Gell-Mann [35] for the universal current-current theory of weak interaction. In the PNC effect in nuclear excitations, neutral weak boson  $Z^0$  is responsible, and strongly coupled with the vertices of strong forces. The details of the PNC studies were reviewed, for example, in Refs [36-39]. The current problem is originated from the fact that weak meson-nucleon coupling constants deduced from various PNC experiments are not consistent. Haxton et al., [40] concluded that the experimental PNC results are still not satisfactory and more experimental as well as theoretical studies are needed.

Common methods of experimental PNC studies are to measure the parity mixing between the parity-doublet states. In the traditional experiment, one of the doublet levels is excited in the nuclear reaction. Then, the PNC effect is appeared as the asymmetry of emitted circularly polarized photons. Emitted circularly polarized photons are very difficult to be correctly measured.

Recently, we propose a new method for measuring the PNC effect in nuclei by measuring the excitation and de-excitation of the parity doublets using NRF [41, 42]. Let us consider electromagnetic excitation and decay of the lowest excited  $1/2^-$  ( $E_x=109.9$  keV) state in  $^{19}\text{F}$  as an example. It is assumed

that the ground state with  $J^\pi=1/2^+$  and the first excited state with  $1/2^-$  are the parity doublet. In this case, the first  $1/2^-$  ( $E_x=109.9$  keV) state in  $^{19}\text{F}$  is excited by NRF. In the previous experiments for the circular polarization measurement of emitted  $\gamma$ -rays, one of the doublet levels was excited via a nuclear reaction, and the admixture of the configuration of the opposite parity was manifested as the asymmetry  $A$  of  $\gamma$ -rays emitted from the excited states with a polarization, or as the circular polarization  $P$  of  $\gamma$ -rays emitted from unpolarized excited states. In the case of the  $1/2^- \rightarrow 1/2^+$  transition in  $^{19}\text{F}$ , the PNC value is reported as  $-8.5 \times 10^{-5}$  [43] with 30% error bar. In case of  $^{19}\text{F}$ , a high intensity photon source from the synchrotron radiation facilities at SPring-8, ESRF, and APS is available for the PNC measurement. At SPring-8, the intensity from a Wiggler system reaches at  $10^{13}$  photons/second at  $E_\gamma = 109.9$  keV with an energy width of about 0.1 keV. The NRF events for exciting the 109.9 keV  $1/2^-$  state are expected to be around  $10^8$  /second for the LiF target with a thickness of 0.5 cm. This NRF event rate is high enough to examine the theoretical formula presented in the present work..

Figure 7 shows a sample NRF spectrum measured with a Ge detector at SPring-8 using a Wiggler beam [44]. A strong excitation of the  $1/2^-$  109.9 keV level in  $^{19}\text{F}$  is demonstrated. The accuracy of the measurement depends on the details of the experimental set-up (counting rates, detection solid angles etc.). According to our estimation we expect to achieve the accuracy better than 10-20% for one week measurement, which exceeds considerably the previous experiments in the traditional design. A serious difficulty stems from a high counting ratio of the Compton scattered  $\gamma$ -rays as backgrounds. One method to overcome this problem is to use a multi-segmented detector in order to greatly reduce the counting rate of each detector and obtain the necessary total counts of  $10^{10}$  as the NRF events. The use of newly developed lutetium oxyorthosilicate ( $\text{Lu}_2\text{SiO}_5$ , LSO) and lutetium-yttrium oxyorthosilicate ( $\text{Lu}_{2(1-x)}\text{Y}_{2x}\text{SiO}_5$ , LYSO) crystals with a decay constant of about 40 ns and an energy resolution of 7-10% is also promising for the NRF measurement with a high-counting rate. Another way is to obtain a photon beam with an ultra high resolution of  $\Delta E/E = 10^{-5} - 10^{-6}$ . In this case, the background photons due to Compton scattering are greatly reduced, and the  $\gamma$ -ray events due to the NRF process are relatively enhanced to get a high counting rate necessary for performing a high-statics PNC measurement.

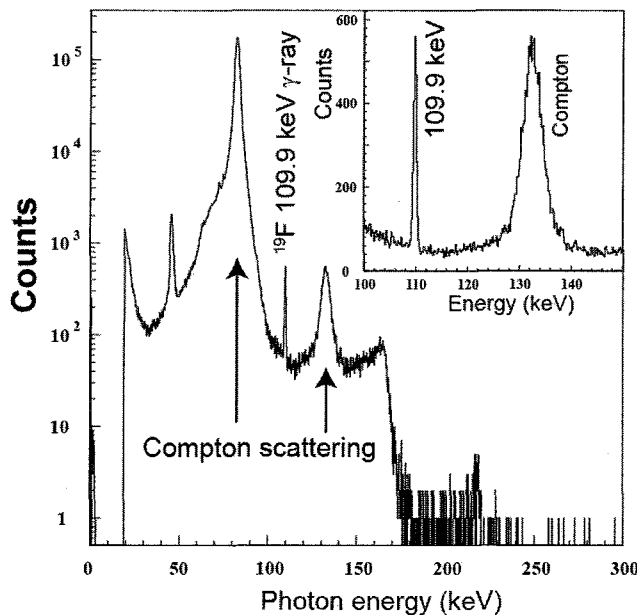


Fig. 7: Photon spectrum to demonstrate the nuclear resonance fluorescence  $\gamma$ -rays from the 109.9 keV level in  $^{19}\text{F}$ . A 110 keV Wiggler photon beam with an energy resolution of about 100 eV has been used at SPring-8.

If a high-energy photon beam with a high-intensity stronger than  $10^8$  /second will be realized in near future, the following experiments, which have been difficult to be performed due to the lack of intensity, are feasible.

1) NRF studies of nuclear structure:

The NRF process is only favorable to excite with the E1 and M1 modes. With linear polarized photons, E1 and M1 excitations are determined without any theoretical ambiguities. Samples of such experiments are relevant to

- a) the transitions between the octupole-deformed states with the same spin and with different parities in the mass of about 180,
- b) the collective excitations of scissor or troidal modes in medium-heavy nuclei,
- c) photo-nuclear fission
- d) E1 and M1 excitations near the particle emission thresholds for the network calculations in astrophysics.

For this purpose, we need to obtain the  $\gamma$ -ray beam with an energy higher than several MeV, which is only successful with the inverse Compton process. There are additional important studies that are relevant to the nuclear transmutation with  $(\gamma, n)$  reactions, the materials science with polarized positrons, the Mossbauer effect measurements with the NRF photons, and the medical application of the high-intensity photons.

## 5. Summary and final remarks

Thanks to the recent laser and accelerator technologies, it is turned out that photon beams in the energy range from sub-MeV to a few GeV become usable for various scientific developments. The subjects to be studied with such photon beams are 1) astrophysics applications of nuclear physics to draw the story of nuclear synthesis in the universe, 2) nuclear and hadron structures with high intensity and high polarization photon beams, 3) studies of basic symmetries in the nuclear and atomic processes, 4) feasibility studies of nuclear transmutation technologies with high-intensity photon beams in the energy range of 10-30 MeV, 5) application of polarized photon beams to generate polarized positrons, which are useful for materials science developments, 6) new technologies to generate the high intensity MeV photons with a full usage of the quantum effect of coherency.

Recently, in Japan, South-Korea, China, Taiwan, US, and EU countries, many scientists discuss to install the beam lines for inverse Compton scattering at the SR facilities. There are great possibilities of having a high-intensity photon beam due to the boson nature of light, which is not fully used in the past.

## 5. Acknowledgment

I thank T. Hayakawa, T. Kimura, T. Tajima, A.I. Titov, K. Kawase, H. Akimune, H. Ejiri, S. Dat'e, M. Itoh, Y. Ohashi, H. Ohkuma, Y. Sakurai, S. Suzuki, K. Tamura, H. Toki, and H. Toyokawa for fruitful discussions.

## References

- 1) M. Fujiwara, Nuclear Physics News 11 (2001) 28.
- 2) M. Fujiwara, Progress in Particle and Nuclear Physics 50 (2003) 461.
- 3) R.G.T. Zegers et al., Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 092001.  
T. Ishikawa et al., Phys. Lett. B (2005) 215.  
T. Mibe et al., Phys. Rev. Lett. 95 (2005) 182001,  
M. Sumihama et al., Phys. Rev C 73 (2006) 035214.
- 4) T. Nakano et al., Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 012002.
- 5) B. McKinnon et al., Phys. Rev. Lett. 96 (2006) 212001.
- 6) S. Niccolai et al., Phys. Rev. Lett. 97 (2006) 032001.
- 7) G. Mourou, T. Tajima and S.V. Bulanov, Rev. Mod. Phys. 78 (2006) 309.
- 8) T. Brabec and F. Krausz, Rev. Mod. Phys. 72 (2000) 545.
- 9) R. Hajima and R. Nagai, Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 024801, and references therein.
- 10) S.P.D. Mangles et al., Nature 431 (2004) 535.
- 11) C.G. R. Geddes et al., Nature 431 (2004) 538.
- 12) J. Faure et al., Nature 431 (2004) 541.
- 13) E. Miura et al., Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 251501.
- 14) T. Tajima and S.M. Dawson, Phys. Rev. Lett. 43 (1979) 267.
- 15) V. Nelyubin, M. Fujiwara, T. Nakano, and B. Wojtsekhowski, Nucl. Instrum. Method Phys. Res., Sec A 425 (1999) 65.
- 16) S.G. Anderson et al., Appl. Phys. B 78 (2004) 891.
- 17) W.J. Brown and F.V. Hartemann, PRST-AB 7 (2004) 060703.
- 18) D.J. Gibson et al., Phys. Plasmas. 11 (2004) 2857.
- 19) W. J. Brown et al., PRST-AB 7 (2004) 060702.
- 20) Z. Hung and R.D. Ruth, Phys. Rev. Lett. 80 (1998) 000976.
- 21) J. Arthur, et al., Conceptual Design Report No. SLAC-R-593, Stanford Linear Accelerator Center, 2002.
- 22) L. Merminga, D. R. Douglas, and G. A. Krafft, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci., **53** (2003) 387.
- 23) JAEA proposal for ERL (2006).
- 24) T. Nakazato et al., Phys. Rev. Lett. 63 (1989) 1245.
- 25) F.V. Hartemann, A.L. Troha, E.C. Landahl, J.R. van Meter, and T. Tajima, preprint.
- 26) W. Bothe and W. Gentner, Z Physik 106 (1937) 236.
- 27) G.C. Baldwin and G.S. Klaiber, Phys. Rev. 71 (1947) 3.
- 28) For example, U.E.P. Berg and U. Kneissl, Rev. Nucl. Part. Sci. 37 (1987) 33.
- 29) P. Mohr et al., Phys. Rev. C 69 (2004) 032801.
- 30) N. Pietralla et al., Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 012502.
- 31) T. Hayakawa et al., Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 161102.



- 32) C.S. Wu et al., Phys. Rev. 105 (1957) 1414.
- 33) T.D. Lee and C.N. Yang, Phys. Rev. 104 (1956) 254.
- 34) N. Tanner, Phys. Rev. 107 (1957) 1203.
- 35) R.P. Feynman and M. Gell-Mann, Phys. Rev. 109 (1958) 193.
- 36) E.G. Adelberger and W.C. Haxton, Ann. Rev. Nucl. Sci. 35 (1985) 501.
- 37) B. Desplanques, Phys. Rep. 297 (1998) 1.
- 38) B.R. Holstein, "Weak Interaction in Nuclei", (Princeton University Press, 1989).
- 39) Symmetries and Fundamental Interaction in Nuclei" ed. By W.C. Haxton and E.M. Henley, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd. 1995 p.17.
- 40) W.C. Haxton, C.-P. Liu and M.J. Ramsey-Musolf, Phys. Rev. C 65 (2002) 045502.
- 41) M. Fujiwara and A. I. Titov, Phys. Rev. C 69 (2004) 065503.
- 42) A.I. Titov, M. Fujiwara, and K. Kawase, J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. 32 (2006) 1097.
- 43) E. G. Adelberger et al., Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 402.
- 44) K. Kawase et al., RCNP annual report (2004) pp. 27.

### 3.6 Recent Progress on High Energy Particle Generation at CRIEPI

Y. Oishi<sup>1</sup>, T. Nayuki<sup>1</sup>, T. Fujii<sup>1</sup>, X. Wang<sup>1</sup>, K. Takano<sup>2</sup>, K. Nemoto<sup>1</sup>, A. Sagisaka<sup>3</sup>, A. Yogo<sup>3</sup>, S. Orimo<sup>3</sup>, K. Ogura<sup>3</sup>, Z. Li<sup>3</sup>, A. Pirozhkov<sup>3</sup>, H. Daido<sup>3</sup>, I. W. Choi<sup>4</sup>, H. T. Kim<sup>4</sup>, T. J. Yu<sup>4</sup>, J. H. Sung<sup>4</sup>, T. M. Jeong<sup>4</sup>, K.-H. Hong<sup>4</sup>, J.-H. Kim<sup>4</sup>, Y.-C. Noh<sup>4</sup>, D.-K. Ko<sup>4</sup>, and J. Lee<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI), Japan

<sup>2</sup>Tokyo Institute of Technology (T.I.T), Japan

<sup>3</sup>Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency (JAEA), Japan

<sup>4</sup>Femto Science Group, Advanced Photonics Research Institute, GIST, Korea

Energetic particles, such as proton and x-ray, were generated by an ultrashort-pulse laser and their characteristics were investigated. In our experimental condition ( $10^{18}$ - $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup>, 55-400 fs), the dependencies of the maximum proton energy ( $E_{p\_max}$ ) on laser pulse duration were close to the value expected by the expansion model and  $E_{p\_max}$  depends on not only the laser intensity but also the laser fluence. This tendency is also in good agreement with the GIST experimental results. As for a pre-pulse effect, we find it is useful for electron generation, but not good for proton acceleration. We have also demonstrated near 1 MeV protons with the laser energy of only 30 mJ by optimizing focusing spot using a deformable mirror. In addition, preliminary data of x-ray generation and x-ray imaging have been obtained.

**Keywords:** Ultrashort pulse laser, Proton generation, X-ray generation

#### 1. Introduction

Generation of high-energy particles by irradiation of ultrashort-pulse laser is expected to have diverse applications, such as compact particle accelerators, fast ignitors for laser fusion, and medical applications such as positron emitter production and cancer therapy [1]. Because the system can be compact and spatiotemporal controlling is very easy. Therefore, in future, we would like to use these systems for application in electric power industry. At the present stage, our objects are (i) generation of high energy particles using ultrashort pulse laser. (ii) investigation of characteristics of particle acceleration to find effective acceleration. Here, we introduce our recent progress on high energy particle generation at CRIEPI.

#### 2. Proton generation

In this section, the characteristics of energetic ion emission in the medium laser intensity region around  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> will be presented. The laser was a Ti: sapphire laser of which laser pulse duration was about 50 fs, and could be extended to about 400 fs at the maximum by adjusting grating distance in a pulse compressor. The laser energy on targets, which were usually 5  $\mu$ m-thick copper tapes, was around 200 mJ.

In our experimental condition, the dependencies of the maximum proton energy ( $E_{p\_max}$ ) [2] were close to the value expected by an analytical plasma-expanding model [3]. According to this model,  $E_{p\_max}$  increases with laser pulse duration. Therefore,  $E_{p\_max}$  depends on not only the laser intensity [ $\text{W} \cdot \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ ] but also the laser fluence [ $\text{J} \cdot \mu\text{m}^2/\text{cm}^2$ ]. As a result, even a longer pulse laser such as a sub-ps laser is also effective for ion acceleration.

This tendency is also in good agreement with GIST experimental results which were conducted with JAEA and GIST using a GIST laser (Feb.-Mar. 2006). The experimental conditions were close to our previous one. Laser intensity was on the order of from  $10^{17} \text{ W/cm}^2$  to  $10^{18} \text{ W/cm}^2$ . Irradiation angle was 45 degree. A tape of 5  $\mu\text{m}$  Copper was used as a target. Typical data are plotted on the Fig.1. Laser energy of black data is approximately twice of gray data. 38 fs was the shortest pulse duration at that time and 103 fs was the optimum condition. Basically, proton energy was higher than CRIEPI's data at the same laser intensity and laser fluence. It is probably because that the optimization, of such as target position and prepulse condition, was better than ours by using time of flight method. When the laser energy was kept constant, the difference in  $E_{p\_max}$  is small (compare (i) with (ii), or compare (iii) with (iv) in Fig.1(a)). However, when we compare (i) with (iv), although laser intensities are close to each other,  $E_{p\_max}$  is higher for longer pulse duration. This results agree with our previous data and the expanding model. In addition, the scaling of  $E_{p\_max}$  with laser fluence is also good agreement as shown in Fig. 1(b).

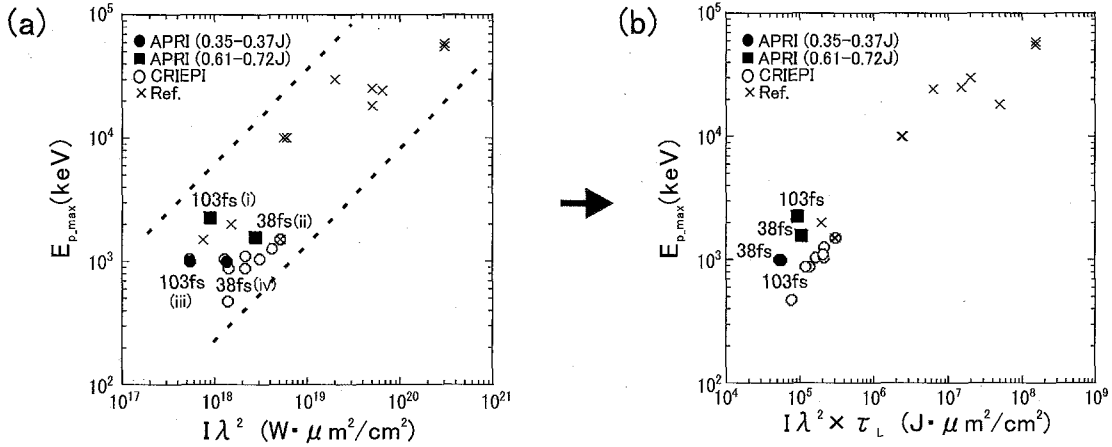


Fig. 1 Scaling of  $E_{p\_max}$ : (a)  $E_{p\_max}$  vs laser intensity, (b)  $E_{p\_max}$  vs laser fluence.

We also investigated the influence of pre-pulse on ion acceleration [4]. By adjusting timing of a pockel's cell after a regenerative amplifier, we increased the pre-pulse intensity at around 5 ns from  $<10^{-5}$  to order of  $10^{-2}$  compared with the main pulse. When pre-pulse level was increased, the irradiated laser target was supposed to be under dense plasma because transmitted laser light was observed. In this under dense plasma condition, the ion energy emitted from the rear of the target was a few times less than the over dense plasma condition. Along with the plasma peak density changed from over dense to under dense, a transition of proton acceleration from the forward to the radial direction is observed, and in the latter case energetic protons are emitted radially and slightly forward. In addition,  $E_{p\_max}$  was increased with the product of the target thickness and the mass density.

We measured proton source size using a method like pinhole camera. When combined with Thomson mass spectrometer, energy resolution is more precise and discrimination of ion species is possible. The typical source size was 150  $\mu\text{m}$  at 400 keV and 40  $\mu\text{m}$  at 1 MeV for 55 fs,  $6.6 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  condition [5]. The size was large, more than four times the laser spot size of  $4 \times 11 \mu\text{m}^2$ . These values are similar with other group's reports [6]. When the dependence of source size on proton energy is fitted by power-law scaling for some laser conditions, power-law exponent decreases as laser intensity increases, which means that the variance of source size is larger for a higher laser intensity [7].

As for target material, when the polyimide tape target of 7.5  $\mu\text{m}$  thickness was irradiated with the laser energy of 430 mJ and the pulse duration of 100 fs, the observed maximum proton energy was 3 MeV which is larger than the threshold of  $^{18}\text{O}(\text{p},\text{n})^{18}\text{F}$  [8]. For efficient proton acceleration, polyimide was suitable for a tape target because it contains much hydrogen and has a small mass density and a high tensile strength. We also demonstrated near 1 MeV protons with the laser energy of only 30 mJ by optimizing focusing spot using adaptive optics [9].

### 3. X-ray generation

Effective nondestructive diagnostic techniques are desired to inspect stress corrosion cracking and plumbing recession in power plants. x-ray generation using T-cubed laser is expected to be a useful diagnostic tool for power plants because of its possible high spatial-resolution, compactness and easy controlling. Here, we would like to introduce our x-ray generation experiment. Basically, the experimental setup was similar with that of proton acceleration. For x-ray generation, instead of 5 micron Copper target, a thicker target is preferable because interaction length is need for bremsstrahlung. But here, at first step, we used the same 5  $\mu\text{m}$  thick Copper tape as a target. Main differences were detector setups. Ionization chamber was used for dose measurement and x-ray image intensifier (X.I.I.) with CCD camera was used for x-ray imaging. Figure 2 shows the signal decay with tungsten filter thickness. Both axes in the figure are normalized for generalization.

We determined x-ray temperature  $T_x$  like electron temperature. Usually, temperature is determined by fitting energy spectra with boltzman distribution ( $T_x$ ;  $dN_x/dE \propto \exp(-E/T_x)$ ) But here, we estimated x-ray temperature from signal decay using simulation code of Geant 4. Geant 4 is the abbreviation of geometry and track and is made by mainly CERN in France for the simulation of the passage of particles through matter. Its areas of application include high energy, nuclear and accelerator physics. Using this code, we can calculate the absorbed energies in ionization chamber for different filter thickness and different assumed temperatures.

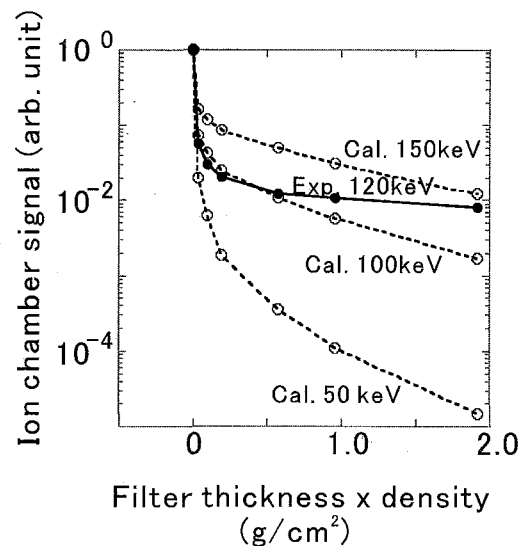


Fig.2 Ion chamber signal vs filter thickness

Compared normalized signals with simulation data, we estimated x-ray temperature to be 120 keV.

We also demonstrated x-ray imaging of some samples as shown in Fig. 3. These are preliminary data and not optimized yet. Figure 3(a) shows a x-ray imaging of integrated circuits placed at outside the chamber. Another sample shows copper plates. There were five copper plates, each thickness was 1mm and was slightly shift each other. It is difficult to distinguish the boundary between 4mm and 5mm. We think x-ray intensity was not enough because x-ray with 150 keV can pass through 10mm thick Nickel.

A similar demonstration was also conducted in GIST experiments. Imaging plate (IP) covered with Al was placed outside the chamber (SUS 8 mm) and upper of target normal axis because this experiment was conducted in proton acceleration experiments and another detector was located at the target normal axis. Some kinds of bolts as shown in Fig.4(a) were attached to IP. Accumulated shots were about 100 with various conditions and the

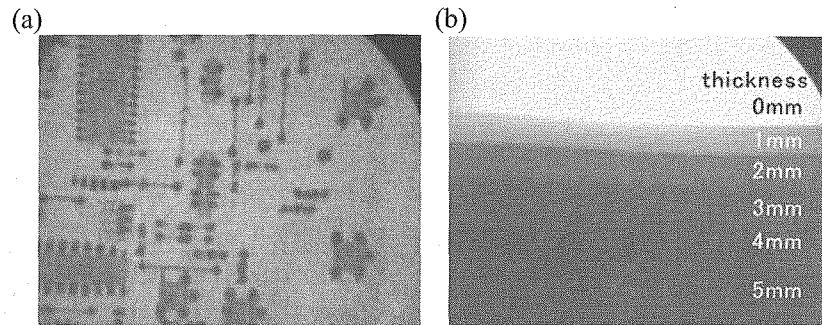


Fig.3 X-ray imaging demonstration using CRIEPI laser and X.I.I. (a) integrate circuit, (b) Cu plate

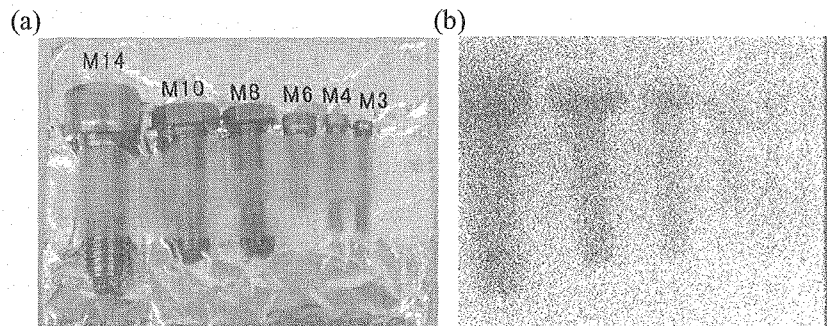


Fig.4 X-ray imaging demonstration using GIST laser and IP (a) IP and Bolts, (b) Readout data

reading was conducted in CRIEPI two days after the experiments. Although we could not obtained sharp images, we can see some bolt figures through 8mm thick SUS (Fig.4(b)). These signals were thought to be mainly contributed by x-ray because 8mm SUS chamber wall is enough to decrease electron. More clear images will be obtained by more shots and by setting IP on target normal axis.

## References

- [1] D. Umstadter: J. Phys. D, **36** (2003) R151.
- [2] Y. Oishi, et al., Phys. Plasmas, **12** (2005) 073102.
- [3] P. Mora: Phys. Rev. Lett., **90** (2003) 185002.
- [4] X. Wang, et al., Phys. Plasmas, **12** (2005) 113101.
- [5] Y. Oishi, et al., J. Appl. Phys., **97** (2005) 104906.
- [6] M. Borghesi, et al., Phys. Rev. Lett., **92** (2004) 055003.
- [7] Y. Oishi, et al., Jpn. J. Appl. Phys., **45** (2006) 1853.
- [8] T. Nayuki, et al., is accepted to be published in J. Appl. Phys., **100** (2006)
- [9] T. Nayuki, et al., Rev. Sci. Instrum., **76** (2005) 073305.



### 3.7 Characterization of a proton beam driven by a high-intensity laser

Akito SAGISAKA<sup>1</sup>, Hiroyuki DAIDO<sup>1</sup>, Koichi OGURA<sup>1</sup>, Satoshi ORIMO<sup>1</sup>, Yukio. HAYASHI<sup>1</sup>,  
 Michiaki MORI<sup>1</sup>, Mamiko NISHIUCHI<sup>1</sup>, Akifumi YOGO<sup>1</sup>, Masataka KADO<sup>1</sup>, Atsushi FUKUMI<sup>1,2</sup>,  
 Zhong LI<sup>1,2</sup>, Alexander S. PIROZHKOV<sup>1</sup>, Shu NAKAMURA<sup>1,3</sup>, Yoshihisa IWASHITA<sup>3</sup>,  
 Toshiyuki SHIRAI<sup>3</sup>, Akira NODA<sup>3</sup>, Yuji OISHI<sup>4</sup>, Takuya NAYUKI<sup>4</sup>, Takashi FUJII<sup>4</sup>,  
 and Koshichi NEMOTO<sup>4</sup>

1 Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency,  
 8-1 Umemidai, Kizu, Kyoto 619-0215, Japan

2 National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1, Anagawa, Inage, Chiba 263-8555, Japan

3 Institute for Chemical Research, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto 611-0011, Japan

4 Central Research Institute of Electric Power Industry, 2-6-1 Nagasaka, Yokosuka,  
 Kanagawa 240-0196, Japan

High-energy protons are observed with a 3  $\mu\text{m}$  thick tantalum target irradiated with a high intensity laser. The maximum proton energy is  $\sim 900$  keV. The half angle of the generated proton beam ( $> 500$  keV) is about  $10^\circ$ . Characterization of the proton beam will significantly contribute to the proton applications.

**Keywords:** High intensity laser, Proton beam, Preformed plasma

#### 1. Introduction

High-intensity laser and matter interactions have been extensively investigated. High-energy ions induced by laser-matter interactions have been observed experimentally [1-6]. The proton beam driven by a high-intensity laser is paid attention as a compact ion source for medical application [7]. In order to develop the laser-driven proton beam, characterizing the proton energy distribution and beam divergence are important as well as achieving high energy.

#### 2. Experimental setup

We use a Ti:sapphire laser system at Central Research Institute of Electric Power Industry [8]. The central wavelength is 800 nm and the pulse duration is 70 fs [full width at half maximum (FWHM)]. The intensity ratio of a prepulse at 5 ns before the main pulse versus that of the main pulse is measured to be  $\sim 10^{-5}$  by a photodiode detector. Figure 1 shows the schematic view of the experimental setup. A p-polarized laser beam is transported into a target chamber and is divided into main and probe beams by a beam splitter. The main beam is focused by an off-axis parabolic mirror with a focal length of  $f = 179$  mm and an incident angle of  $45^\circ$ . The focal point of the attenuated laser beam is imaged with a magnification of  $\sim 30$  with an achromatic lens and detected by a charge-coupled device (CCD) camera. The spot size is 7  $\mu\text{m}$  (FWHM) in vertical  $\times$  8  $\mu\text{m}$  (FWHM) in horizontal, containing  $\sim 28\%$  of the energy estimated from the profile of the focusing pattern. In this condition the estimated peak intensity is up to  $2.7 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>.

with the energy of 250 mJ at the target surface. A tape target driver provides a fresh surface of the 3  $\mu\text{m}$  thick tantalum (Ta) target with a width of 5 mm [9]. The probe beam is frequency-doubled with a 2 mm thick KDP crystal (Type-I). The pulse duration of the second harmonic pulse is estimated to be  $\sim 200$  fs, which comes from an effect of group-velocity dispersion. We use both fundamental (800 nm) and second harmonic (400 nm) pulses as an optical probe beam [10]. The two-color probe beams pass through the optical delay line. A linear translation stage is used to vary the delay between the main and probe beams. Interference fringes are produced using a Fresnel biprism with an apex angle of  $176^\circ$  and fringe separation is adjusted by the position of the Fresnel biprism [10-12]. The plasma image is magnified by a factor of  $\sim 10$  and detected by the CCD camera. The intensity of the probe beam is attenuated by neutral density filters so as to fall within the dynamic range of the camera. We place the narrow-band interference filters with the band pass width of 10 nm for each wavelength in front of the CCD cameras to reject unwanted emission from the plasma.

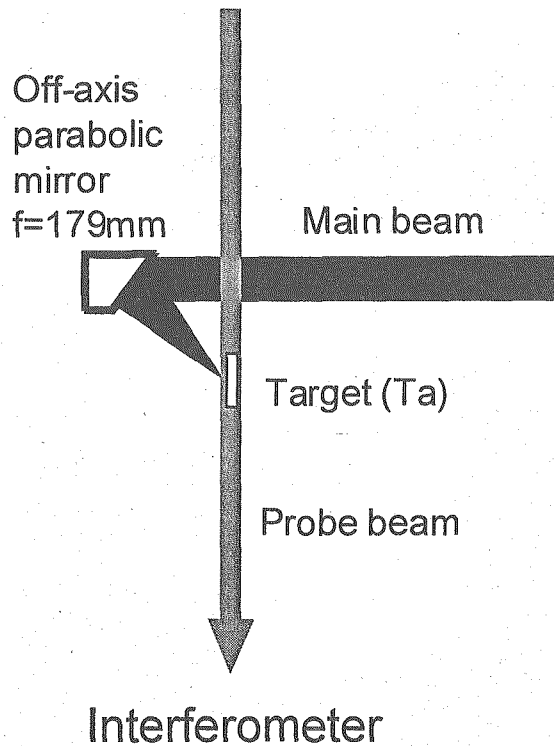


Fig.1 Experimental setup

### 3. Experimental results

We observe a preformed plasma with the interferometer [10,12]. The preformed plasma at the front side of the target is generated by a prepulse with a high-intensity Ti:sapphire laser pulse. An expansion size of the preformed plasma is  $\sim 60$   $\mu\text{m}$ . On the rear side, no fringe shift is observed within the region  $\sim 30$   $\mu\text{m}$  away from the original surface.

We measure the x-ray, electrons, and ions generated from the main laser pulse interactions. The x-ray image of the plasma is observed by using the pinhole camera with the 0.8  $\mu\text{m}$  thick aluminum (Al) filter for each shot. This measurement indicates that the spatial stability of the target is less than a few tens of  $\mu\text{m}$ . High-energy electrons and protons are observed by using the Thomson parabola ion energy analyzer and the magnetic electron energy spectrometer at the rear side of the Ta foil target [13,14]. The electrons with energies up to  $\sim 2$  MeV are observed. Figure 2 shows the proton energy spectrum measured with a Thomson parabola ion energy analyzer. The maximum proton energy is  $\sim 900$  keV. In order to investigate the angular distribution of the ion emission, we use CR-39 track detectors with a 5  $\mu\text{m}$  thick Al filter. We observe the proton emission only in the target normal direction. The half angle of the proton emission with energies above 500 keV is approximately  $10^\circ$ .

#### 4. Summary

High-energy protons are observed with a thin-foil tantalum target irradiated with a high intensity Ti:sapphire laser. The maximum proton energy is  $\sim 900$  keV. The half angle of the generated proton beam ( $> 500$  keV) is measured with a CR-39 track detector and is about  $10^\circ$ .

#### Acknowledgements

This work is partly supported by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan (Advanced Compact Accelerator Development project). We acknowledge the support for this work by Dr. T. Tajima, Dr. T. Kimura, and Dr. A. Nagashima of the Japan Atomic Energy Agency.

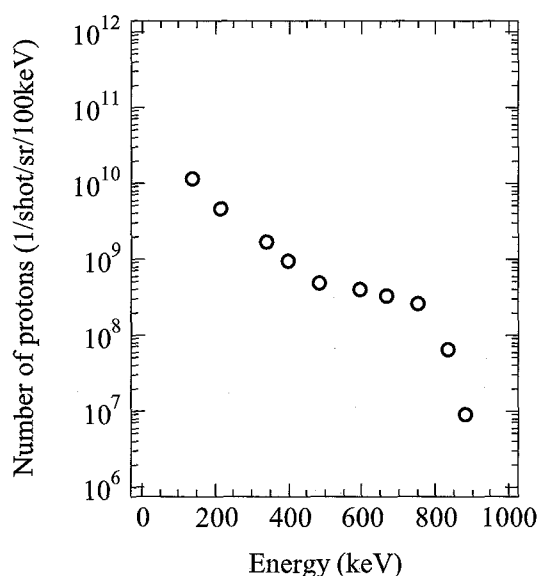


Fig.2 Energy distribution of proton

#### References

- [1] A. Maksimchuk, S. Gu, K. Flippo, D. Umstadter, and V. Yu. Bychenkov, Phys. Rev. Lett. **84**, 4108 (2000).
- [2] E. L. Clark, K. Krushelnick, J. R. Davies, M. Zepf, M. Tatarakis, F. N. Beg, A. Machacek, P. A. Norreys, M. I. K. Santala, I. Watts, and A. E. Dangor, Phys. Rev. Lett. **84**, 670 (2000).
- [3] R. A. Snavely, M. H. Key, S. P. Hatchett, T. E. Cowan, M. Roth, T. W. Phillips, M. A. Stoyer, E. A. Henry, T. C. Sangster, M. S. Singh, S. C. Wilks, A. MacKinnon, A. Offenberger, D. M. Pennington, K. Yasuike, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, J. Johnson, M. D. Perry, and E. M. Campbell, Phys. Rev. Lett. **85**, 2945 (2000).
- [4] S. Fritzler, V. Malka, G. Grillon, J. P. Rousseau, F. Burgy, E. Lefebvre, E. d'Humieres, P. McKenna, and K. W. D. Ledingham, Appl. Phys. Lett. **83**, 3039 (2003).
- [5] S. P. Hatchett, C. G. Brown, T. E. Cowan, E. A. Henry, J. S. Johnson, M. H. Key, J. A. Koch, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, R. W. Lee, A. J. Mackinnon, D. M. Pennington, M. D. Perry, T. W. Phillips, M. Roth, T. C. Sangster, M. S. Singh, R. A. Snavely, M. A. Stoyer, S. C. Wilks, and K. Yasuike, Phys. Plasmas **7**, 2076 (2000).
- [6] A. J. Mackinnon, Y. Sentoku, P. K. Patel, D. W. Price, S. Hatchett, M. H. Key, C. Andersen, R. Snavely, and R. R. Freeman, Phys. Rev. Lett. **88**, 215006 (2002).
- [7] H. Daido, M. Nishiuchi, A. Fukumi, Z. Li, A. Sagisaka, K. Ogura, S. Orimo, M. Kado, Y. Hayashi, M. Mori, A. Nagashima, A. Pirozhkov, S. Bulanov, T. Esirkepov, T. Kimura, T. Tajima, K. Nemoto, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, A. Noda, Y. Iwashita, T. Shirai, and S. Nakamura, Proceedings of Third



International Conference on Superstrong Fields in Plasmas, Varenna, Italy, 2005, AIP Conference Proceedings **827**, 203 (2006).

- [8] T. Fujii, Y. Oishi, T. Nayuki, Y. Takizawa, K. Nemoto, T. Kayoji, K. Horioka, Y. Okano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura, and K. Kondo, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1524 (2003).
- [9] T. Nayuki, Y. Oishi, T. Fujii, K. Nemoto, T. Kayoji, Y. Okano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura, K. Kondo, and K. Ueda, *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 3293 (2003).
- [10] A. Sagisaka, A. S. Pirozhkov, H. Daido, A. Fukumi, Z. Li, K. Ogura, A. Yogo, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, S. Orimo, M. Nishiuchi, Y. Hayashi, M. Mori, M. Kado, S. Nakamura, A. Noda, I. W. Choi, J. H. Sung, D.-K. Ko, J. Lee, *Appl. Phys. B* **84**, 415 (2006).
- [11] B. Rus, P. Zeitoun, T. Mocek, S. Sebban, M. Kalal, A. Demir, G. Jamelot, A. Klisnick, B. Kralikova, J. Skala, and G. J. Tallents, *Phys. Rev. A* **56**, 4229 (1997).
- [12] A. Sagisaka, H. Daido, K. Ogura, S. Orimo, Y. Hayashi, M. Nishiuchi, M. Mori, K. Matsukado, A. Fukumi, Z. Li, S. Nakamura, K. Takagaki, H. Hazama, M. Suzuki, T. Utsumi, S. V. Bulanov, and T. Esirkepov, *Appl. Phys. B* **78**, 919 (2004).
- [13] A. Fukumi, M. Nishiuchi, H. Daido, Z. Li, A. Sagisaka, K. Ogura, S. Orimo, M. Kado, Y. Hayashi, M. Mori, S. V. Bulanov, T. Esirkepov, K. Nemoto, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, A. Noda, and S. Nakamura, *Phys. Plasmas* **12**, 100701 (2005).
- [14] Z. Li, H. Daido, A. Fukumi, A. Sagisaka, K. Ogura, M. Nishiuchi, S. Orimo, Y. Hayashi, M. Mori, M. Kado, S. V. Bulanov, T. Zh. Esirkepov, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, S. Nakamura, and A. Noda, *Phys. Plasmas* **13**, 043104 (2006).



### 3.8 Study of x-ray emission enhancement via high contrast femtosecond laser interacting with solid foil

L. M. Chen, M. Kando, S. V. Bulanov, J. Koga, T. Tajima

*Advanced Photon Research Center, Kansai Photon Science Institute,  
Japan Atomic Energy Agency, Kyoto 619-0215, Japan*

M. H. Xu, X. H. Yuan, Y. T. Li, Q. L. Dong, J. Zhang

*Institute of Physics and China Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

We studied the hard x-ray emission and the  $K\alpha$  x-ray conversion efficiency ( $\eta_K$ ) produced by 60 fs high contrast frequency doubled Ti: sapphire laser pulse focused on Cu foil target. Cu  $K\alpha$  photon emission obtained with second harmonic laser pulse is more intense than the case of fundamental laser pulse. The Cu  $\eta_K$  shows strong dependence on laser nonlinearly skewed pulse shape and reaches the maximum value  $4 \times 10^{-4}$  with 100 fs negatively skewed pulse. It shows the electron spectrum shaping contribute to the increase of  $\eta_K$ .

**Keywords:** X-ray emission, Conversion efficiency, KDP crystal

#### I. Introduction

The availability of intense femtosecond laser pulses [1] opens a new laser-solid interaction regime in which intense laser pulses deposits onto a solid faster than the hydrodynamic expansion of the target surface. Hot electrons generated via collective absorption mechanisms such as resonant absorption (RA) [2] or vacuum heating (VH) [3] penetrate into the solid target to produce hard x-rays via K-shell ionization and bremsstrahlung [4]. This kind of intense and ultrafast hard x-ray source has a number of interesting applications for medical imaging techniques [5].

Control and optimization of the hard x-ray emission produced by high intensity laser-solid interaction requests an understanding of several mechanisms. Several groups have already reported x-ray emission experiments relying on sub-picosecond laser systems [6-12]. Previous works [6,7] used hundreds of femtosecond laser pulse produced by CO<sub>2</sub> or Nd laser systems. Plasma density gradient steepened by ponderomotive force and satisfy the optimal conditions for RA, which is the main heating mechanism at this regime. Recently, it has shown that the use of shorter laser pulse durations less than 100 fs involve new x-ray emission processes. Eder *et al.* reported observing a maximum in  $K\alpha$  emission when the target was placed away from best focus [8] and qualitatively explained with the re-absorption of produced photons inside the target. Based on optimal scale length for RA, Reich *et al.* [9] theoretically presented a scaling law to estimate the optimal laser intensity and predicted a reduction of the hard x-ray yield if the laser intensity is higher. Zhidkov *et al.* [10] studied prepulse effects with a low contrast fundamental 42 fs laser due to presence of ASE and showed the presence of a large plasma gradient  $L/\lambda=2.5$  at modest laser intensities laser. They observed a decrease of the laser energy absorption for shorter pulse duration with constant laser energy, which was also proved by Schnürer *et al.* in experiment [11], and they reported the critical influence of the plasma gradient for the hard x-ray emission via the resonant process. All theses publications proved that there is a limitation for hard x-ray enhancement with laser intensity based on RA when tens of fs, low contrast laser are used.

In this report, we show a breakthrough for this limitation of hard x-ray enhancement in the case of high contrast relativistic fs laser pulse. Cu  $K\alpha$  photon exhibits a higher flux when we work with a high contrast laser pulse at 400 nm. The yield of x-ray emission can be controlled and optimized via detuning compressor gratings positively and negatively. The maximum  $\eta_K$  can reach  $4 \times 10^{-4}$  for 100 fs negatively skewed pulse irradiation.

## II. Experiment

The experiments are realized with the high intensity Ti:Sapphire laser system on Lab of Optical Physics, Institute of Physics of China Academy of Sciences. The laser delivers a maximum output energy of  $> 300$  mJ after compression with a pulse duration of 60 fs. After compression, the prepulse from 8 ns before the main pulse is better than  $1 \times 10^5$  monitored using fast photodiode. The laser contrast for picosecond pedestal obtained using a high dynamic range third-order femtosecond auto-correlator (Sequoia) is  $1 \times 10^4$  (see Fig. 1a). A type I potassium di-deuterium phosphate (KDP) frequency doubling crystal (1 mm thick) is used to get the 400 nm second harmonic pulse. The double-frequency conversion efficiency of the KDP crystal is about 35% at  $200 \text{ GW/cm}^2$  intensity. The infrared is almost rejected by passing the beam over 4 dielectric coated mirrors. This increases a pulse contrast ratio compared to the picosecond pedestal  $> 10^8$  and  $> 10^{10}$  in the ns time window. Finally the *p*-polarized laser pulse is obliquely incident on the target at  $45^\circ$  by an  $f/3.5$  parabola mirror in a focal spot diameter of  $10 \mu\text{m}$  (FWHM) with an average  $1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  intensity. By means of a  $\lambda/2$ -plate *p*- or *s*-polarized light could be used. Cu foil target with thickness  $5 \mu\text{m}$  was used in experiments. The measurement of the x-ray spectrum and the determination of the  $\eta_K$  are made with a single photon counting x-ray LCX-CCD camera [6] placed 1.5 m away from source as a dispersionless spectrometer. An electron spectrometer with permanent magnetic field  $B=1000$  Gs is used to detect electron spectrum [12]. Imaging plate is used as detector in spectrometer and also used for electron angular distribution measurement. The x-ray emission size is measured by the knife-edge imaging technique [6]. The FWHM of fitted Gaussian function shows source size  $\sim 10 \mu\text{m}$  in 400 nm laser irradiation, implying no evident plasma expansion in this case.

Pulse duration is increased by detuning compressor grating but then the uncompensated linear or B-integral phase reduces pulse contrast. We were able to vary the laser pulse duration from 60 fs up to 2 ps by changing the distance between gratings at constant laser energy. Distance increasing (decreasing) will cause incomplete compensation of accumulated phase nonlinearities results in negatively (positively) chirp pulses having a gentle (steep) rise time [13]. For a sample pulse, the integrated rising edge energy, normalized by the case of 60 fs, are 0.98 and 2.14 for laser with pulse duration 100 fs positively skewed and 100 fs negatively skewed respectively. It shows that positively skewed 100 fs pulses are provided with almost the same rising edge as the case of 60 fs laser pulse, whereas the negatively skewed one has double energy in rising edge. This is a key factor for following experimental phenomena. The development of preplasma for high contrast laser was calculated using hydrodynamic code HYADES. A double Gaussian fit to the temporal pulse shape was used and an estimate of prevailing plasma

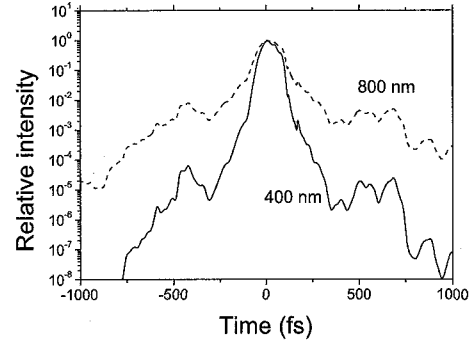


Figure 1: Temporal distribution for low-contrast 800 nm pulse (dashed line)/high-contrast 400 nm pulse (solid line). The 800 nm pulse distribution is probed by cross-correlator. The 400 nm pulse distribution is estimated from  $I_{(400)} \sim I_{(800)}^2$ .

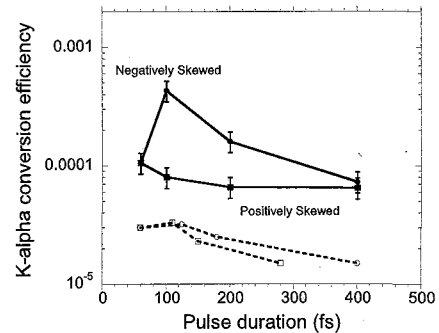
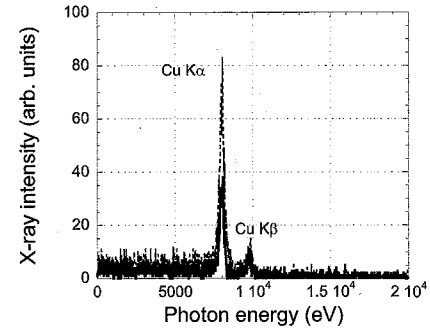


Figure 2: (a) Cu hard x-ray spectra produced by 800 nm (solid line)/400 nm (dotted line) laser at  $1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ . (b) Cu K $\alpha$  conversion efficiency as a function of laser pulse width at negatively (solid circle) or positively (solid square) skewed in P-pol. laser, also negatively (open circle)/positively skewed (open square) in S-pol. laser.

scale length ( $L/\lambda$ ) before the arrival of the high intensity pulse was obtained. It is 0.1, 0.05 and 0.04 correspond to 100 fs negatively skewed, 60 fs and 100 fs positively skewed pulse respectively.

**Figure 2(a)** represents shows the spectra measured on a Cu target with an x-ray CCD camera with following parameters: 60 fs, 100 mJ,  $1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  at 800 nm (solid line) and 400 nm (dotted line) wavelength in p-polarized laser. We observe that the  $K\alpha$  yield at 400 nm is higher than at 800 nm by a factor of 2. The Cu  $\eta_K$  in  $2\pi$  steradian reaches  $\sim 1 \times 10^{-4}$  at this intensity. It should be noted, however, that the x-ray spectrum is not distributed in Maxwellian and an evident energy cutoff ( $E \sim 20 \text{ keV}$ ) exist, which also predicted in Ref. [10]. In order to optimize Cu  $\eta_K$ , we introduce slight long pulse duration with nonlinearly skewed pulse shape. **Figure 2(b)** represents Cu  $\eta_K$  as a function of laser pulse width at negatively skewed (solid circle) and positively skewed (solid square). It shows Cu  $\eta_K$  with negatively skewed 100 fs pulse width reach a maximum as  $4 \times 10^{-4}$  and almost 5 times greater than the case of positively skewed pulse. However, for S-polarized laser incidence, Cu  $\eta_K$  (dotted line) is 3 folds lower and do not show evident pulse chirp dependence. It simply reduces as increasing the laser pulse duration.

A higher  $\eta_K$  for a 400 nm laser pulse corresponds to a higher laser energy absorption by hot electrons. According to Freshel's equations prediction and Price's experimental results [14], inverse bremsstrahlung (IB) decreases for an increasing intensity, whereas in our results the x-ray emission increases as a function of the laser intensity. Therefore, it implies that an additional absorption mechanism is stimulated. If we consider that RA is the main additional mechanism to generate hot electrons [2], a 800 nm laser pulse should be more effective than a 400 nm one because the later presents a much weak pedestal which induces a smaller  $L$  ( $< 0.1\lambda$ ) that is far away from optimal scale length for RA [15]. However, our measurement doesn't agree with this assumption. Simulation shows VH dominates RA for steep density gradient [3, 16]. In our laser condition with intensity of  $1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ , the plasma scale length is  $0.05\lambda$  according to our hydro-calculation and Ref [17] in similar conditions. It agrees with the necessary condition to stimulate VH:  $X_{osc} \geq L$ . It also satisfies the optimal condition for VH:  $V_{osc}/c \geq 3.1(L/\lambda)^2$  [16] in which  $V_{osc} = eE/m_e\omega$  is the electron quiver velocity in the laser field that is governed by the quiver energy:  $E_q = mc^2[(1+2U_p/mc^2)^{1/2}-1]$ , where  $U_p(eV) = 9.3 \times 10^{-14} I \lambda^2$  is the ponderomotive potential. The most important evidence is the cutoff energy we detected, i.e. 20 keV, which rationally fit for the scaling law of VH:  $E_q = 15 \text{ keV}$ . The x-ray emission size we measured confirmed our electron energy measurement. The x-ray emission size generated by 400 nm laser is  $15 \pm 5 \mu\text{m}$ . This value is much smaller than in the case of 800 nm laser pulse ( $> 80 \mu\text{m}$ ) [12]. Therefore, we conclude VH is stimulated and may be the main absorption mechanism in our experiment.

Hot electrons generated by intense laser field are responsible for producing characteristic and bremsstrahlung x-ray radiation as they interact with a solid target. Therefore, it is important to determine the energy spectrum and angular distributions of fast electrons, which are generated by P- and S-polarized laser fields. As **figure 3** shown, fast electron emission is concentrated in target normal and specular reflection direction in case of S-polarized laser incident. For P-polarized laser irradiation, electron emission is much

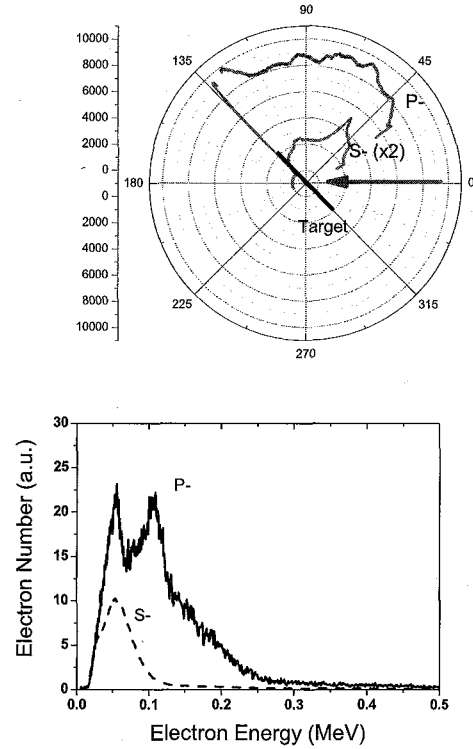


Figure 3: Hot electron detection in case of P- and S-polarized laser irradiation. (a) Angular distribution of hot electron observed in case of P-polarized laser (solid line) and S-polarized laser (dashed line) interaction. (b) Hot electron spectrum observed in case of P-polarized laser (solid line) and S-polarized laser (dashed line) interaction.

stronger, by a factor 4-5, and show broad emission in regime of concerned, excepting a peak along target direction that is presented, in Ref. [17], as surface fast electrons when similar high contrast laser incident. Fast electron spectrum shows a peaked structure and it is suitable for Cu K $\alpha$  photon generation, considering Cu K-shell ionization cross section. The spectrum cannot be fitted by Maxwellian distribution for a temperature because the laser pulse is too short to cause plasma satisfied to local thermal equilibrium [12]. It should be noted that there is an individual second peak with energy  $\sim 110$  keV in case of P-polarized laser irradiation, which means another group of quasi monoenergetic electron heated by other mechanism and contribute enhancement of fast electron and K $\alpha$  photon generation in this case. Considering enhanced "vacuum heating" mechanism [18] as a candidate, which stimulate surface plasma wave resonantly excited by laser and accelerated electrons perpendicular to target surface, it will accelerate quasi monoenergetic electron, when ponderomotively heated electron phase match for charge separation potential, to maximum energy  $E_{\max} \sim mc^2(\gamma_{\text{osc}}-1) \sim 120$  keV in our experimental condition, that is almost same as experimental data.

### III. Summary

In conclusion, Cu K $\alpha$  produced by a high contrast laser pulse at 400 nm with intensity  $I = 1 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> reaches  $4 \times 10^4$ , thanks for restructure hot electron spectrum shape. Tuneable control of hard x-ray emission is succeed via control pulse duration and nonlinearly skewed pulse shape. It implies an effective method for hard x-ray enhancement in fs-plasma regime: resonant absorption maybe non-effective with femtosecond laser-dense plasma interactions [12], whereas high contrast laser is more efficient for hard x-ray generation via enhanced "vacuum heating".

*This work is joint supported by the Trilateral project, KAKENHI project in KPSI JAEA and NSFC (Grant No. 10474134) in China.*

### References

- 1). D. Strickland and G. Mourou, *Opt. Commun.* **56**, 219(1985);  
M. D. Perry and G. Mourou, *Science* **264**, 917(1994)
- 2). W. L. Kruer, *The Physics of Laser Plasma Interactions* (Addison-Wesley, New York, 1988)
- 3). F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52(1987); *Phys. Fluids*. **31**, 2714 (1998)
- 4). H. Chen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3431(1993)
- 5). A. Krol *et al.*, *Med. Phys.* **24**(5), 725(1997)
- 6). J. Yu *et al.*, *Phys. Plasmas*, **6**(4), 1318(1999)
- 7). B. Soom *et al.*, *J. Appl. Phys.* **74**(9), 5372(1993); M. Schnurer *et al.*, *J. Appl. Phys.*, **80**(10), 5604(1996); U. Teubner *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 794(1993)
- 8). D. C. Eder *et al.*, *Appl. Phys. B*, **70**, 211(2000)
- 9). Ch. Reich *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4846(2000)
- 10). A. Zhidkov *et al.*, *Phys. Rev. E*, **62**, 7232(2000)
- 11). M. Schnurer *et al.*, *Phys. Rev. E*, **61**, 4394(2000)
- 12). L. M. Chen *et al.*, *Phys. Plasmas* **11**(9), 4439(2004)
- 13). W. P. Leemans *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 174802(2002)  
U. Andiel *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 198(2002)
- 14). D. F. Price *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 252 (1995)
- 15). D. Salzmann *et al.*, *Phys. Rev. E*, **65**, 036402(2002)
- 16). P. Gibbon and A. R. Bell, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1535 (1992)
- 17). Y. T. Li *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 165003(2006)
- 18). J. Kuperszttych *et al.*, *Phys. Plasmas*, **11**, 1669(2004); A. Macchi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 205004(2001)

This is a blank page.

4. 第7回光量子科学研究シンポジウム 講演

JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research - Speeches

This is a blank page.





## 4.1 高いコヒーレンスをもつ軟 X 線レーザーを利用した

### 新固体分光法の構築

#### A Novel Solid State Spectroscopy by Use of Plasma Based X-Ray Laser

並河一道<sup>1,2)</sup>、岸本 牧<sup>2)</sup>、田中桃子<sup>2)</sup>

東京学芸大学教育学部自然科学系<sup>1)</sup>

日本原子力研究開発機構

量子ビーム応用研究部門<sup>2)</sup>

Kazumichi Namikawa, Maki Kishimoto, Momoko Tanaka

Tokyo Gakugei University

Quantum Beam Science Directorate

Japan Atomic Energy Agency

CREST-JST

#### § 1 はじめに

第三世代高輝度放射光光源が利用できるようになって、コヒーレントな X 線の生成とそれを生かしたいいくつかの研究が行われ、ERL や FEL のようなコヒーレント光源の開発に熱い期待が寄せられている。放射光がほぼ連続的なパルス光源とみなせるのに対し、プラズマ基盤の X 線レーザーは単発パルス光源であって、その使い勝手は放射光と比べてまったく比較にならないものの、コヒーレンスに関する特性は、現在開発中の FEL と比べてみても遜色ないものである。プラズマ X 線レーザーのコヒーレンス特性を生かして特異な分光法を実現することができる。日本原子力研究開発機構関西光科学研究所では X 線レーザーのコヒーレンス特性を利用して CREST の表記課題の研究が行われている。この CREST の研究を紹介するのが本稿の目的である。研究課題の 1 つは、誘電体の相転移点付近に現れる分極クラスターのダイナミクスをスペックルの強度相関を観察して調べる時間相関分光法を実現することであり、2 つ目の研究課題は、銅酸化物高温超伝導体などの強相関電子系の電子相関や交換相互作用などに関する知見が得られる原子内殻 2 ホール生成分光法を実現することである。

#### § 2 ダブルターゲット方式のプラズマ X 線レーザー

光量子科学研究センターの X 線レーザーは、過渡励起型の電子衝突励起レーザーと呼ばれるタイプで、ガラスレーザーで増強された強力なパルス幅の狭い IR 光を Ag ターゲットに線集光して  $\text{Ag}^{+19}$  イオンプラズマを作り、電子衝突励起と輻射減衰によって  $\text{Ag}^{+19}$  イオンに反転分布を発生し、この反転分布が緩和するより早く SASE モードでレーザー発光を行な

うものである。発生する X 線レーザーの波長は 13.9nm である。X 線レーザーは波長固定の単パルス光源という制約はあるものの、コヒーレンスに関する特性は、現在開発中の SASE-FEL と比べても遜色ないものである。時間コヒーレンスはスペクトル幅に対応して 0.5 ピコ秒程度であり、縦モードの数は 20 程度と推定されている。一方、空間コヒーレンスは、ダブルターゲット方式の Ni 様 Ag ターゲットレーザーではほぼ回折限界に達しており、横単一モードが実現している。この過渡利得方式の X 線レーザーのパルス幅は数ピコ秒で、1 パルスに含まれる X 線光子数は  $10^{11}$  程度もあるので、 $10^9$  程度のコヒーレント光子数（ボース縮退度）が見込まれる<sup>1)</sup>。

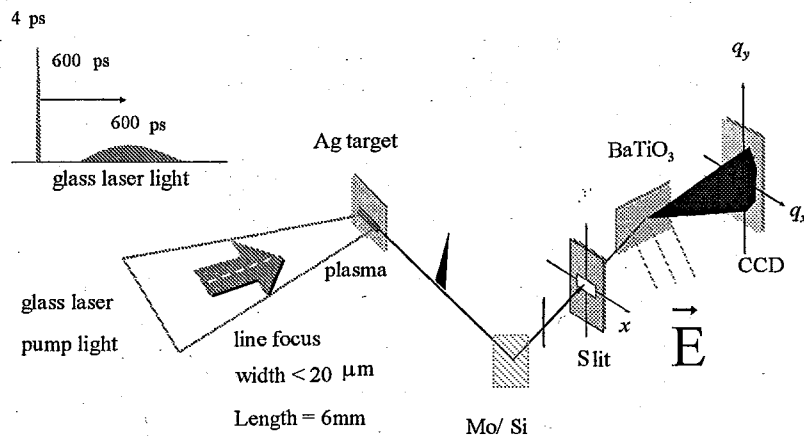
### § 3 誘電体分極クラスターによるスペックルの時間相関分光

コヒーレントな X 線が、空間的に不均一で時間的なゆらぎのある物質系に照射されると、X 線スペックルと呼ばれる、乱雑で不規則な強度ゆらぎをともなう干渉像が現れる。スペックルは光の波動的側面の関わる現象であって、散乱強度は散乱電場の 2 次の相関関数のフーリエ変換で表される。その強度の  $q$ -空間の分布は散乱体の空間相関を反映し、特定の  $q$  に対応する点の強度の時間相関は散乱体の実空間における距離  $1/q$  の相関の緩和時間を反映する。入射光の空間コヒーレンスが悪くなると、スペックルから長距離相関に関する情報が失われていく。また、スペックルの観察時間が散乱体の緩和時間よりも長くなると、スペックルは散乱体のゆらぎの統計平均を表すようになり、ゆらぎの相関にかんする情報は消失する。入射光のこれらの 1 次の干渉性は、それぞれスリットとモノクロメーターを用いて光の一部を入射切り出すことによって得られるので、原理的にはどのような X 線光源を用いても X 線スペックルを観察することができる。しかし、X 線光源の輝度が小さい場合には、X 線スペックル像を観察するためには時間的・空間的な強度の積算をしなければならず、速いゆらぎや長距離相関に関する情報は消失し散漫散乱が現れる。実際、X 線スペックルは第三世代の高輝度放射光光源が実現して始めて観察された。しかしながら、第三世代の高輝度放射光光源といえども、空間干渉性を持つのは X 線ビームの  $10^{-3}$  に相当する部分に過ぎず、1 パルスに含まれるコヒーレント X 線光子数はたかだか  $10^5$  程度に過ぎない。それゆえ、これまで放射光を用いて行なわれた動的 X 線スペックルの実験は、コロイド粒子の運動<sup>2)</sup>、合金の相転移<sup>3)</sup>、磁性体の磁区形成<sup>4)</sup>など速くてもミリ秒程度の時間スケールの現象に限られていた。

BaTiO<sub>3</sub> はペロブスカイト構造をとる変位型の誘電体で、高温から温度を下げていくと 122 °C での立方晶の常誘電相から正方晶の強誘電相に転移する。この相転移の機構については、光学フォノンのソフトモードによるモデル<sup>5)</sup>や安定なポテンシャル位置へ Ti が移動する規則不規則型のモデル<sup>6)</sup>が提案されてきたが、どちらのモデルも全ての実験を説明するまでには至らなかった。最近では、光学フォノンのソフト化から始まって、安定なポテンシャル位置へ Ti が移動する規則不規則の相転移に連続的に移行すると考えられるようになった<sup>7)</sup>。いくつかの実験事実から、いずれの場合も常誘電相から相転移温度に近づくと、常

誘電相の母体の中に存続時間の極めて短い微小な分極クラスターが出没するようになると推測されていた。

光科学研究センターでは光源としてプラズマ X 線レーザーを用いて、第 1 図のような実験装置で、鏡面反射の周りにノイズ状に広がっているスペックル像を観察した。

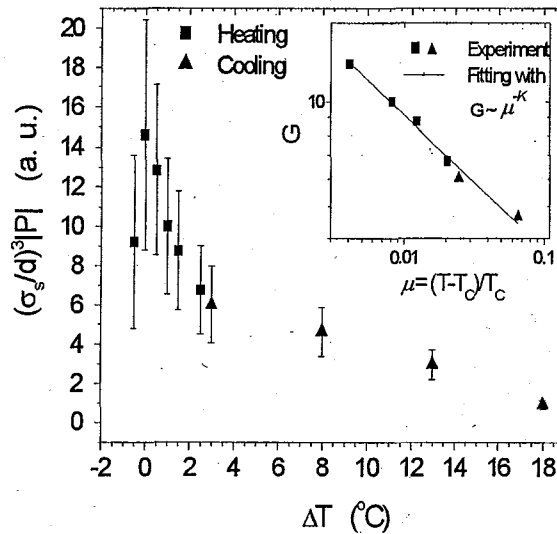


第1図 スペックルの実験配置

ノイズ状の強度分布は試料に散在する不均一構造によるもので、これらの強度の広がりには試料温度が転移点から離れるほど小さくなり、また試料に垂直に電場を印加すると高温の場合と同じように小さくなることが分かった。これらのスペックル像の特徴から、BaTiO<sub>3</sub>の常誘電相には、軟 X 線散乱に対し複屈折と同様な電場依存性を示す微小な散乱体、つまり分極クラスターが散在していることが分かった<sup>8)</sup>。

入射 X 線に対する BaTiO<sub>3</sub> の応答を複素透過率でモデル化し、フレネル回折理論を用いて複素透過率の空間相関関数を求めた。この際、BaTiO<sub>3</sub> を透過率一定の位相物質と考えたので、相関関数は位相の相関、つまり屈折率（分極の 2 乗に比例する）の相関を表すことになる。相関関数のもつ性質から、移転点付近における分極クラスターの大きさ( $\sigma_s$ )、クラスター間距離( $d$ )、分極の大きさ( $P$ )などに関する知見が得られた。分極クラスターの大きさは 0.8  $\mu\text{m}$  程度でほとんど変化しないのに対し、クラスター間距離は 9  $\mu\text{m}$  程度(140°C)から 2  $\mu\text{m}$  程度(122°C)まで直線的に減少する。クラスターサイズとクラスター間距離の温度依存性を表す直線は転移点のおよそ 6°C 低温側(116°C)で交差し、この温度で試料全体に分極が発生し、ドメイン構造（単一ドメインとなることもありうる）が実現されることがわかる。このことは強誘電相のドメイン観察の結果とも一致している。一方、分極の 2 乗（常誘電相の屈折率  $n$  からのずれ  $\Delta n$  に比例する）は移転点の 6°C 上で極大値をとる。これらの物理量の温度依存性から第 2 図に示す試料全体の“平均分極”( $\sigma_s/d$ )<sup>3</sup> $P$  の温度依存性が求められた。”挿

入図はこの“平均分極”に関する臨界指数を示している。また、分極クラスターを“超常誘電双極子”とみなしたとき、 $\sigma_s^3 P$  が“超常誘電双極子”の大きさを表し、 $d$  が“超常誘電双極子”間距離をあらわすので、 $(\sigma_s/d)^3 P$  は双極子ポテンシャルを表す。したがって、この量を分極クラスターの分極の向きを平行にそろえようとする分極クラスター間の近接相互作用の大きさ表すものとも考えることもできる。



第2図 “平均分極”の温度依存性

物質系の時空相関関数は定義により、

$$G(r, t) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_{i,j} \int_{-\infty}^{\infty} dr' \delta(r + r_i(0) - r') \delta(r' - r_j(t)) \right\rangle \quad (1)$$

であらわされる。 $G(r, t)$ の空間に関するフーリエ変換

$$S(Q, t) = \frac{N}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \exp(iQr) G(r, t) dr \quad (2)$$

で定義される中間散乱関数  $S(Q, t)$  は、時間差  $t$  で見た空間相関の空間周波数  $Q$  の成分を表すものである。中間散乱関数の時間差  $t$  に関するフーリエ変換、

$$S(Q, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dr \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp(iQr - \omega t) G(r, t) \quad (3)$$

はよく知られたファン・ホーベの動的構造因子である。

散乱ベクトル  $Q$  に対するスペックルは、同時刻相関関数  $G(r, 0)$  の空間に関するフーリエ変換で表される同時刻中間散乱関数  $S(Q, 0)$  に相当する。中間散乱関数  $S(Q, t)$  は、同時刻中間散乱関数  $S(Q, 0)$  と一次の時間相関関数  $g^{(1)}(Q, t)$  の積で表されるので、シーゲルトの関係によって、二次の時間相関関数  $g^{(2)}(Q, t)$  は中間散乱関数  $S(Q, t)$  と

$$g^{(2)}(Q, t) = 1 + B |S(Q, t)|^2 \quad (4)$$

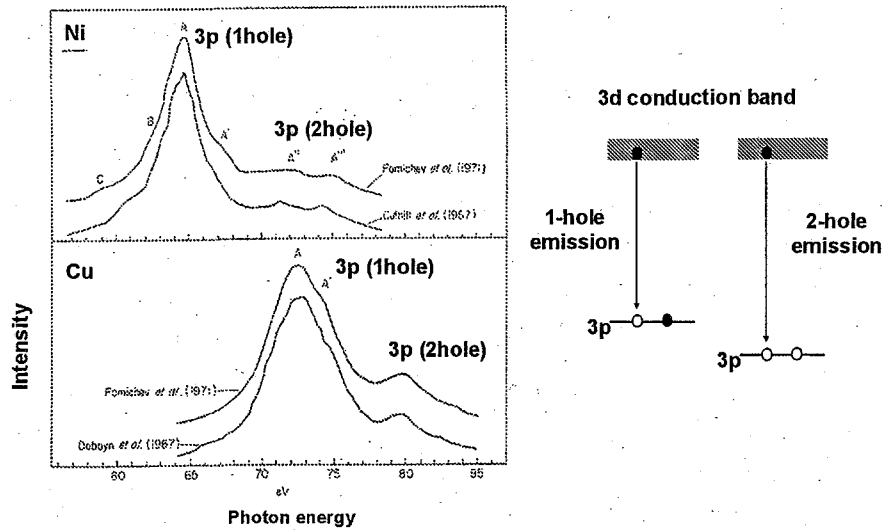
の関係にある。ここで、 $B$  はスペックル観察の方法に依存する定数である。 $g^{(2)}(Q, t) - 1$  は中間散乱関数  $|S(Q, t)|^2$  に比例する。したがって、散乱ベクトル  $Q$  に対するスペックルの X 線強度相関  $g^{(2)}(Q, t)$  から中間散乱関数  $S(Q, t)$  が求まり、 $S(Q, t)$  の時間に関するフーリエ変換からファン・ホーベの動的構造因子  $S(Q, \omega)$  が求まる。コヒーレント時間  $\tau(Q)$  で衝突している気体のような単純な系の場合、強度相関関数から緩和時間  $\tau(Q)$  が求まり、 $\tau(Q)$  の逆数がゆらぎのスペクトル幅を与える。ピコ秒程度の時間差の強度相関分光法が実現されるならば、相転移に関するゆらぎのダイナミクスを明らかにすることができ、 $\text{BaTiO}_3$  など極めて短い緩和時間をもつ物質系の相転移の機構の解明につながるものと思われる。

### § 3 強相関電子系の 2 ホール分光

コヒーレント体積の中に含まれる光子の数はボース縮退度と呼ばれ、一モードあたりの光子の数を表す。ボース縮退度は光源サイズと相対波長幅が同じならば波長が長くなるに従い波長の 3 乗で増大し、第三世代放射光軟 X 線、プラズマ X 線レーザーおよび軟 X 線自由電子レーザーのボース縮退度 (0.01% band width) はそれぞれ  $10^2$ ,  $10^9$  および  $10^8$  程度である<sup>9)</sup>。ボース縮退度の高いことは 2 個の光子が同時に寄与する現象、たとえば 2 光子吸収のような非線形光学現象が極めて高い確率で生ずることを意味する。

これまで原子内殻に 2 ホールを生成する実験は主に高エネルギーの電子衝撃によって行われてきた<sup>10)</sup>。Ni や Cu などに対陰極として高エネルギーの電子を衝突させると原子内殻にホールが生成して蛍光 X 線が発生する。このとき第 3 図に示すように 1 ホール生成による蛍光 X 線の衛星線が高エネルギー側に観察される。この衛星線の生成については入射電子線のエネルギーに関し閾値があり、入射電子線のエネルギーが原子内殻に 1 ホールを生成するエネルギーの 2 倍を超えないと衛星線は現れないことが実験的に分かっている。このことは、この衛星線が、1 ホール生成が偶然同一の原子に対し 2 回続いて起きて 2 ホール状態が生じて発生したものではないことを意味する。入射電子と原子内殻電子との間のクーロン相互作用を通してコヒーレントにバーチャルな 2 光子励起が起きて生じたものと理解される。

原子内殻に光子によって 2 ホールを生成する方法として 2 つの方法が考えられる。1 つ



第3図 電子励起による2ホール蛍光スペクトル

目は1ホール生成を同一原子に対し2回行う方法で、他の1つは1つの量子力学的過程として2つのホールを生成する方法である。これらの方法は一見大して違わないように見えるが、生成の機構が異なるため、2ホールを生成する光に要求される条件や生成の確率が全く異なる。1ホール生成の量子力学的過程を2回続けて同一原子に行う方法の難点は原子密度に対し光密度が極めて薄いことにある。プラズマX線レーザーの波長を $\lambda$ としたとき $\lambda^3$ の体積中にある原子の数が $10^5$ 程度であるのに対し、光子の数は光量子科学研究センターのプラズマX線レーザーの場合でも $10^{-1}$ 程度である。この方式で内殻に2ホールを生成することは、1ホール生成の量子力学的過程を任意の原子に2回つづけて行うことのさらに $10^{-6}$ 程度の困難さがあることになる。これに対し1つの量子力学的過程として2つのホールを生成する場合は、同一の原子を選ぶことは自動的に取り込まれるのでこの因子は寄与しない利点がある。しかしながら、1つの量子力学的過程として光の電場が作用するためには2つの光子が互いにコヒーレントであることが必要であり、光の規格化体積に対するコヒーレント体積の割合が重要になる。1つの量子力学的過程として2つのホールを生成する確率はボース縮退度の2乗に比例して大きくなる。内殻1ホール生成の確率に対する2光子による内殻2ホール生成の確率の比はおおよそ下記の式であたえられる。

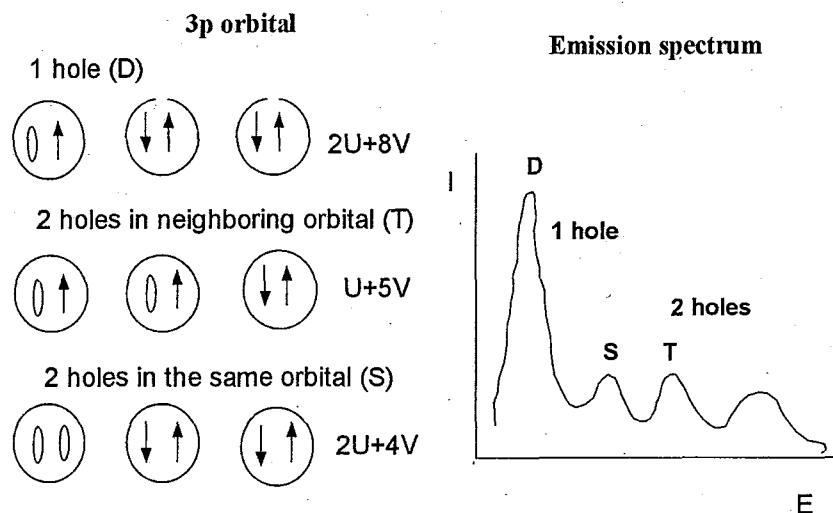
$$\frac{W(2)}{W(1)} = 4\alpha \left( \frac{\hbar\omega}{\Gamma_n} \right)^2 \left[ \frac{|x|_{nm}}{\lambda} \right]^2 \left( \frac{\lambda^3}{V} \right) \left( \frac{v_c}{V} \right) n_B \quad (5)$$

ここで、 $\alpha$ 、 $|x|_{nm}$ 、 $\Gamma_n$ 、 $n_B$ はそれぞれ微細構造因子、位置の演算子の基底状態と励起状

態についての行列要素、励起状態のエネルギー幅およびボース縮退度を表し、 $\nu_c$  および  $V$  はそれぞれコヒーレント体積およびX線パルスの体積を表す。ボース縮退度が  $10^{-9}$  の場合、2光子による内殻2ホール生成の確率は1ホール生成の確率のおよそ  $10^{-3}$  の程度に達する。

プラズマX線レーザーのような熱的光源によって励起された1ホールによる蛍光X線と2光子2ホールによる蛍光X線の1ショットあたりの光子数の比は  $2(C_1/C_2)/M$  で与えられる。ここで、 $C_1$ ,  $C_2$  はそれぞれ単一モードの入射X線にたいする1ホールによる蛍光X線の発生確率および2光子2ホールによる蛍光X線の発生確率を表し、 $M$  はX線レーザーパルスのモード数を表す。 $C_1$ ,  $C_2$  を計算で求めれば、スリット幅を回折限界まで狭めたとき（横単一モードのとき）の1光子ホールによる蛍光X線強度と2光子2ホールによる蛍光X線強度の測定値から光源の縦モードの数が求められる。光源の縦モードの数から光源のスペクトル幅は、 $2\pi\hbar c M_z / \Sigma_f$  で与えられる。ここで  $M_z$ ,  $\Sigma_f$  はそれぞれ縦モードの数およびパルス長を表す。X線ビームの発散角が回折限界に達しないとき、光源の大きさは横モードの数  $M_x$  と横スリットの幅  $w_x$  によって  $(\lambda L / 2\pi w_x) M_x$  と表される。ここで、 $L$  は光源からスリットまでの距離である。この式から横モードの数  $M_x$  を横スリットの幅  $w_x$  の関数として求めれば、直線の傾きから光源の大きさ  $d$  が求まる。原子相関器を用いるこのような光源の評価方法は高いボース縮退度を持ったどのような単パルス光源に対しても適用でき、将来のFELの光源評価にも利用できる発展性がある。

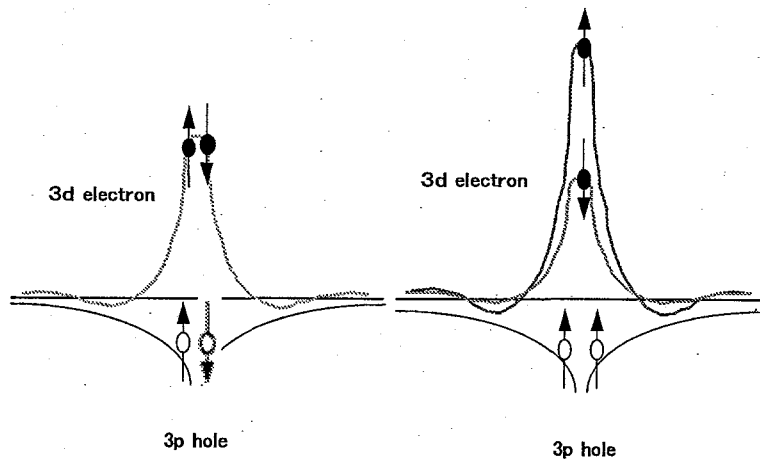
X線発光分光は入射X線で原子内殻にホールを生成し、価電子帯から内殻ホールに電子が遷移する過程で発光する蛍光X線を調べて価電子帯に関する知見を得る手法で、物性研究の有力な実験手段である。



第4図 2ホール発光スペクトル

内殻2ホール状態から発生する蛍光X線スペクトル（衛星線）を調べることによって1ホール状態とは異なる対称性を持つ励起状態に関する分光学的な情報が得られる。2ホール生成分光は1ホール分光と異なり、原子の内殻軌道に2つのホールが生成されるので、これらのスピンの向きに応じてシングレット状態とトリプレット状態が生成され、内殻電子の相関エネルギーが異なるため第4図に示すように蛍光X線のエネルギースペクトルから内殻電子の相関に関する知見が得られる。

また、価電子は生成した2ホールの周りに集まり電荷の分極がおこるが、トリプレット状態では価電子の分極の様子がスピンによって異なり第5図に示すようにスピンの分極も発生する。これらに対応するエネルギースペクトルから価電子と内殻電子の交換相互作用に関する知見が得られる。

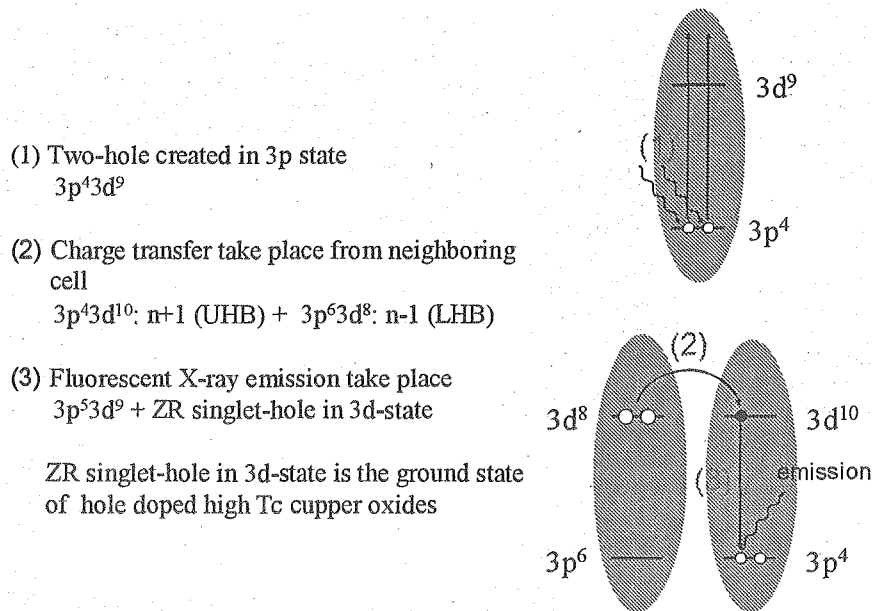


第5図 内殻2ホールによるスピン分極

さらに、内殻2ホール状態の分光学への応用に期待できるのは、たとえば銅酸化物高温超伝導体などの強相関系物質で対称性が破れて分裂した状態のうち今までの共鳴非弾性散乱のスペクトルでは観察できなかった状態を観察できる可能性を持っていることである。銅酸化物高温超伝導体の  $\text{CuO}_2$  格子面の  $\text{Cu}$  の電子配置は  $3p^6 3d^9$  であるが、2光子を吸収して内殻2ホール状態  $3p^4 3d^9$  なる。この中間状態において内殻の2ホールの引力によって隣接する  $\text{CuO}_2$  サイトから  $3d$  電子が一個移動して  $(3d^8, 3d^{10})$  のスピン1重項のペアが生成される。これらは、 $n-1$  の下部ハバードバンドと  $n+1$  の上部ハバードバンドの対である。2ホール蛍光X線放出の終わり状態ではこれらの隣接する  $\text{CuO}_2$  サイトの電子状態はそれぞれ  $\text{ZR1}$  重項と  $3p^5 3d^9$  になる。このとき  $3p$  の3重項ホールはこれらの過程を選択的に実現するので、これらの過程は放出される蛍光X線のスペクトルによって分離できる。この過程で現れる  $\text{ZR1}$  重項はホールをドーブされた銅酸化物高温超伝導体の基底状態と考えら



れているものである。2ホール蛍光X線スペクトルから銅酸化物高温超伝導体の基底状態に関する知見を得ることが期待できる。

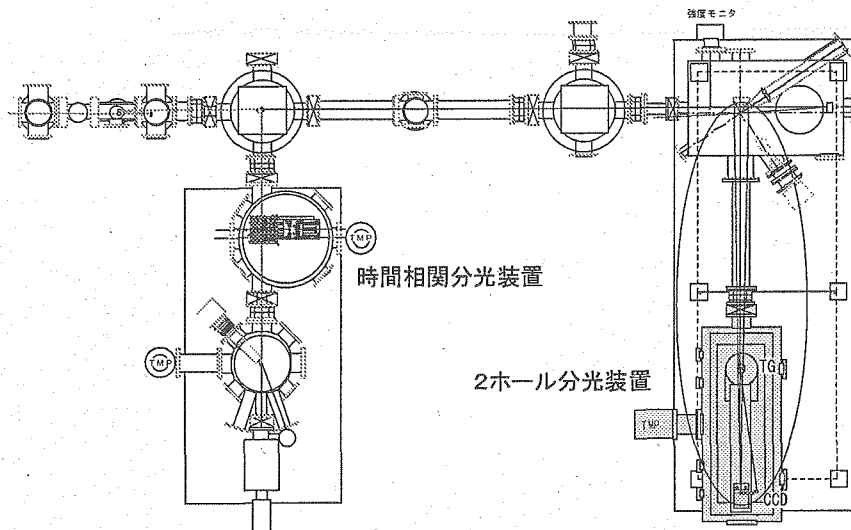


第6図 2ホール蛍光発光過程

#### § 4 実験装置

CRESTの研究を開始してこれまでの2年間で、予備実験を行いながら、これらの分光法の実現のためそれぞれ実験装置を立ち上げ第7図のようにX線レーザーのビームラインへ設置した。X線ビームは振り分けミラーによってスペックル時間相関分光装置と2ホール分光装置の振り分けられるようになっている。スペックル時間相関分光装置は遅延チャンバーと散乱チャンバーから成る。遅延チャンバーではX線ビームをビームスプリッターで2つに分け、2つのビームに時間差を発生できるようになっている。散乱チャンバーでは時間差をおいた2つのX線パルスによるスペックルを観察し、ストリークカメラを用いて特定の散乱ベクトルに対する強度の時間相関が記録できるようになっている。2ホール分光装置は試料チャンバーと分光チャンバーから成る。試料チャンバーでは球面鏡を用いてX線レーザーを試料上に集光し、試料から放射される2ホール蛍光X線を楕円鏡で広い立体角で集め、分光チャンバー内のCCDカメラ上へ集光できるようになっている。集光光路の途中に透過型回折格子を挿入しX線をエネルギー分散させる。CCDカメラは透過型回折格子を回転軸とするゴニオメーターのカウンターアーム上に設置してあるのでエネルギー分散したX線を追尾できるようになっている。スペックル時間相関分光法では銅酸化物高温超伝導体 Bi2212 を試料としてスペックルの観察を行い、ビームスプリッターを用いた遅延発生装置の試験を行った。2ホール分光法では球面ミラーを用いて蛍光X線の集光を

行った予備的な分光実験の結果を分光装置の設計に反映させた。2ホール分光法については関西光科学研究所のX線レーザーのボース縮退度が当初期待していた程は上がらないので、フランスのLOAのX線レーザーを用いた実験も準備している。



第7図 CRESTの実験装置

## §5 おわりに

ここで述べたプラズマX線レーザーを用いた時間相関分光法は誘電体の相転移だけでなく、ピコ秒程度のゆらぎのある系について適用でき、たとえば銅酸化物高温超伝導体のストライプ構造の動的ゆらぎに関する知見もえられる可能性もある。さらに短い時間幅のX線パルスが得られるならば、この方法が威力を発揮することは明らかで、この方向の光源の開発が待たれる。一方、2ホール生成分光はいろいろな現象が含まれているためその解釈には理論的な分析を欠かすことはできないのは明白である。プラズマX線レーザーを用いた2ホール生成分光法の最大の弱点は入射X線にエネルギー選択性を欠くことである。パラメトリック周波数変換などの方法が実現できれば、その有効性は疑いないところである。最近のERLやFELなどのコヒーレントX線光源の開発は、これらの分光法の実用性を確信できるまで進んでおり、ここ数年の内にこれらの分光法が物性研究の一般的手法となるにちがいない。今しばらくは、プラズマX線レーザーを用いた基礎研究の展開が必要であろう。関西光科学研究所のX線レーザーの現実にもかかわらず、プラズマX線レーザー潜在的可能性は高いものがあると感じているので、このコミュニティーが応用を目指して予算と人を集中的に投資することによって、放射光と組み合わせれば、極めて魅力的なX線光源になるものと確信する。

参考文献

- 1) M. Tanaka, M. Nishikino, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Kado, M. Kishimoto, K. Nagashima, Y. Kato, *Optical Letters*, **28**, 1680 (2003).
- 2) L. B. Lurio, D. Lumma, A. R. Sandy, M. A. Borthwick, P. Falus, S. G. J. Mochrie, J. F. Pelletier, M. Sutton, L. Regan, A. Malik, and G. B. Stephenson, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 785 (2000).
- 3) S. Brauer, G. B. Stephanson, M. Sutton, R. Bruning, E. Dutresne, S. G. J. Mochrie, G. Grubel, J. Als-Nielsen, and D. L. Abernathy, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2010 (1995).
- 4) F. Yakhon, A. Letoublon, F. Livet, M. De Boissieu, F. Bley, and C. Vetter, *ESRF Newsletter* **32**, 12 (1999).
- 5) W. Cochran, *Advan. Phys.*, **9**, 387 (1960); **10**, 401 (1961); J. Harada, J. D. Axe and G. Shirane, *Phys. Rev.*, **B4**, 155 (1971).
- 6) Y. Lusin, J. L. Servoin and F. Gervais, *J. Phys. C* **13**, 3761 (1980); R. Comes, M. Lambert and A. Guinier, *Solid State Commun.*, **6**, 715 (1968).
- 7) B. Zalar, V. V. Laguta and R. Blinc, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 037601 (2003).
- 8) R. Z. Tai, K. Namikawa, A. Sawada, M. Kishimoto, M. Tanaka, P. Lu, K. Nagashima, H. Maruyama, and M. Ando, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 087601 (2004).
- 9) *TESLA Technical Design Report, Part V The X-ray Free Electron Laser*, ed. G. Materlik and Tschentscher DESY (2001).
- 10) V. A. Fomichev, Tatiana M. Zimkina and A. V. Rudnev, *Band Structure Spectroscopy of Metals and Alloys*, ed. D. L. Fabian and L. M. Watson, Academic Press, London (1973).



## 4.2 回折格子の物理光学的回折効率解析手法開発とその利用

### Development of simulation methods for analyzing grating diffraction efficiency based on physical optics and their applications

宮内 真二<sup>(1)</sup>、小池雅人<sup>(2)</sup>

<sup>(1)</sup> ㈱島津製作所 設計技術センター

<sup>(2)</sup> 独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

Shinji Miyauchi<sup>(1)</sup>, Masato Koike<sup>(2)</sup>

<sup>(1)</sup> Production/Design Technology Center, Shimadzu Corporation

<sup>(2)</sup> Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Conventional analytical methods for diffractive coefficients require setting of smaller elements and computation of higher-order Fourier coefficients for higher calculation accuracy. These requirements result in huge matrix equations and therefore usually place some restriction to the methods, depending on computing power, including CPU speed and amount of memory. This paper describes two typical analytical methods for diffractive coefficients : Rigorous Coupled Wave Analysis(RCWA) and Boundary Element Method(BEM). We theoretically consider a wavelength range proper for each of the two methods, the validity of which is demonstrated by comparison of actual measurements and analytical results of diffractive coefficient.

**Keywords: Diffractive grating, Diffractive coefficient, Analytical method, Rigorous coupled wave analysis, Boundary element method**

#### 1. はじめに

回折格子の回折効率と偏光特性は周期的な表面及び内部構造による回折の電磁気学的な興味の主題であり、様々な理論が、より複雑で多種多様な構造をもつ回折格子の回折問題をより正確に、より早く解くために開発研究されている。また、弊社のような回折格子製造者としては使用目的に合致した回折格子の設計、性能の予測を立てる上で非常に重要な技術である。

その研究の端緒は 20 世紀の初頭 Rayleigh 卿<sup>1)</sup>とされ、その後、電子計算機の発達とともに主としてフランスにおいて飛躍的な進歩をとげたが、代表的な流れとして微分法<sup>2)</sup>、積分法<sup>3),4)</sup>と呼ばれる二つの流派がある。この他に表面プラズモンに基づく理論<sup>5)</sup>などもある。

本稿では、まず第2章で微分法、積分法のそれぞれの流派に属し、最新且つ代表的な解析手法である厳密結合波解析(RCWA : Rigorous Coupled Wave Analysis)と境界要素法 (BEM : Boundary Element Method) に関してその理論に簡単に触れ、第3章でそれぞれの解析手法に適した波長領域を理論面から考察した上で、第4章において実験や解析結果と比較することでその妥当性を検証する。

#### 2. 回折格子の解析理論

回折格子の解析において我々が注目するのは電磁波 (光、X線など) の回折効率である。電磁波解析の基礎を成すのはいうまでもなく Maxwell 方程式である。Maxwell 方程式は偏微分方程式であるので、その解法は微分解法と積分解法に大きく分けることができる。それぞれの解法には様々なものがあるが、ここでは代表的なものとして厳密結合波解析 (RCWA)<sup>2)</sup>と境界要素法 (BEM)<sup>3),4)</sup>に関してその理論を概説する。

##### 2.1. 厳密結合波解析(RCWA)

厳密結合波解析は Fig.1 のように問題領域を入射媒質、仮想媒質、射出媒質に分け、仮想媒質内の電磁場をその固有モードの重ね合わせとして、入射・射出媒質の電磁場を回折モードの重ね合わせとしてそれぞれ表現し、それらの展開係数を(仮想)媒質間の境界条件から決定することで、それぞれの(仮想)媒質内の電磁場を決定する理論である。仮想媒質は層状であるので、扱えるのは基本的にラミナー型のような矩形近似出来る回折格子形状である。

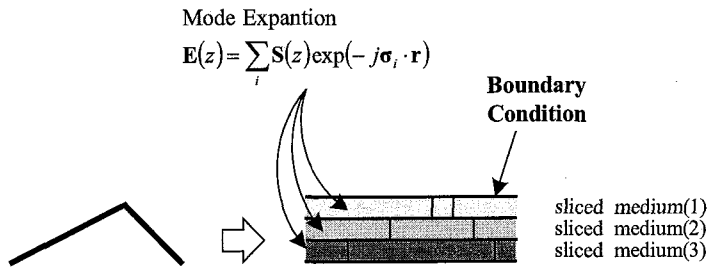


Fig.1 Rigorous Coupled Wave Analysis(RCWA)

## 2.2. 境界要素法(BEM)

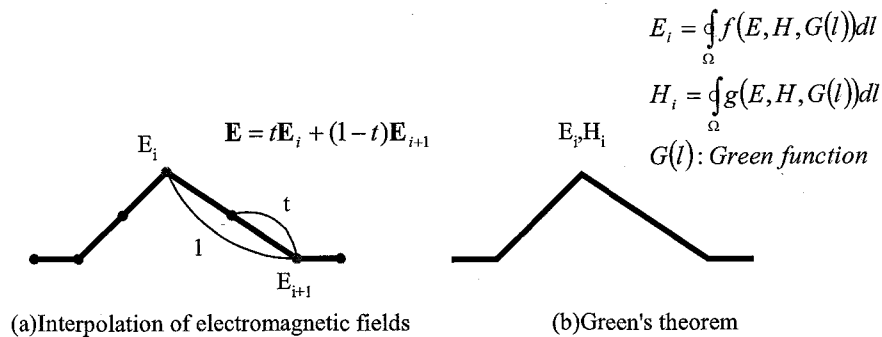


Fig.2 Boundary Element Method(BEM)

境界要素法は媒質境界上にグリーンの定理を適用することで積分方程式を得、その積分方程式を媒質境界上のサンプル点の電磁場により離散化することで行列方程式へと変換し、その行列方程式を解くことで媒質境界上の電磁場を決定する理論である。(Fig.2)

## 3. 各解析理論に適した波長領域

厳密結合波解析(RCWA)、境界要素法(BEM)ともに厳密な理論ではあるが、数値計算を行うとなると計算資源(CPU速度、メモリー容量)による制約を受けざるを得ない。ここでは、それぞれの理論に適した波長領域を理論的に考察することとする。

### 3.1. 厳密結合波解析(RCWA)

厳密結合波解析では Maxwell 方程式から導かれる行列方程式の固有値  $\lambda_m$ 、固有ベクトル  $\mathbf{w}_m$  によって電磁場  $\mathbf{V}(\mathbf{z})$  を展開することが基本となり、適当に式変形すると式(1)のようになる。式(1)をみれば明らかのように、回折格子の溝深さ( $z$ )が深くなれば誤差は拡大すると考えられる。Fig.3 に厳密結合波解析(RCWA)に適すると考えられる波長領域を示した。

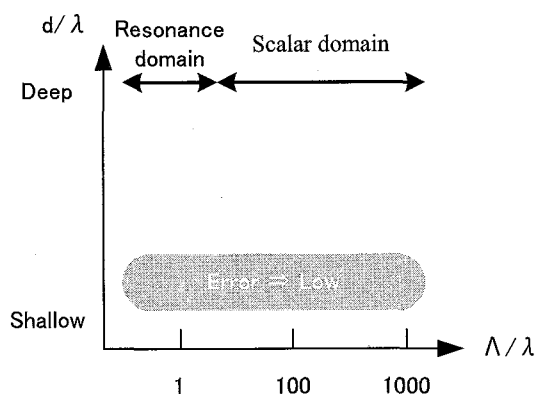


Fig.3 Proper range for RCWA

$$RCWA: V(z) = \sum_m c_m w_m \exp(\lambda_m z) \quad (1)$$

$$\Rightarrow \frac{\Delta V(z)}{V(z)} \cong \Delta \lambda_{\max} \cdot z \quad (\Delta \lambda_m \cdot z \gg 1)$$

### 3.2. 境界要素法(BEM)

厳密結合波解析では電磁場を回折モードと呼ばれる関数によって展開したが、境界要素法では媒質境界上のサンプル点の電磁場から補間する。その為、電磁場を十分に補間できるだけ密にサンプル点があれば計算誤差を実用範囲内に抑えることが期待できる。通常、電磁場の空間的变化は波長程度なので、サンプル点の密度も一波長あたり 10~20 点程度あれば十分に補間可能であると考えられる。しかし、計算資源 (CPU 速度、メモリー容量) の点からはむやみにサンプル点を増やすことはできない。共鳴領域では問題とはならないが、スカラー領域ではサンプル点の増加から一般に実用性は乏しくなる。更に、積分方程式中に現れる無限級数和からなるグリーン関数の計算においても、スカラー領域や溝の浅い領域で級数和の収束が著しく悪化することから実用性が乏しくなる。Fig.4 に境界要素法 (BEMA) に適すると考えられる波長領域を示した。

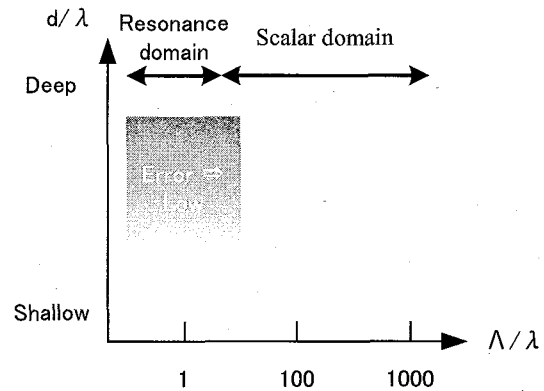


Fig.4 Proper range for BEM

## 4. 実験による検証

前章の考察から (Figs.3,4) のような特徴が理論的に導かれた。その正しさを実測値との比較で確認した。

### 4.1. スカラー領域(軟 X 線多層膜回折格子)

スカラー領域の回折格子である軟 X 線多層膜回折格子の回折効率に関して、実測値と厳密結合波解析の計算値とで比較をおこなった。回折格子に関する条件は Fig.5 の通りである。厳密結合波解析により計算し、その上に Debye-Waller 係数により表面粗さ ( $\sigma=0.6\text{nm}$ ) を考慮した結果 (Fig.6)、実測値とまずまず良い一致を示している。

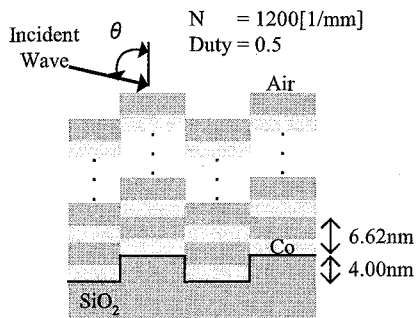


Fig.5 Multilayer Laminar-type grating

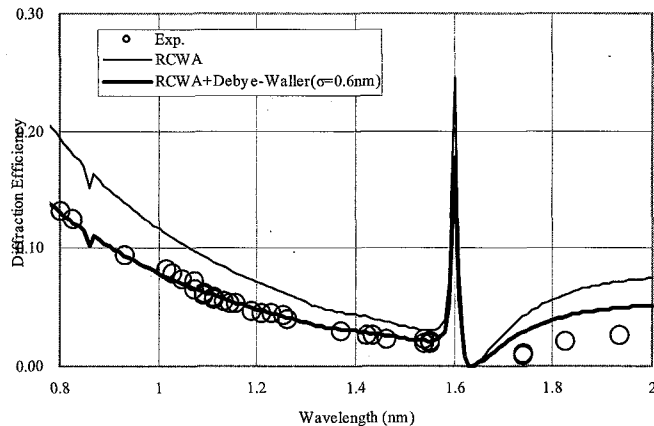


Fig.6 Diffraction Efficiency of Multilayer Laminar-type Grating

### 4.2. スカラー領域(エシエル回折格子)

スカラー領域の回折格子であるエシエル回折格子の回折効率に関して、実測値と境界要素法の計算値とで比較をおこなった。回折格子に関する条件は Fig.7 の通りである。

−211 次光に関して比較を行ったところ、概ね傾向は一致しているが絶対値はかなり異なってしまった。(Fig.8) その原因としては回折格子表面の仕上げ(表面粗さ)などが考えられる。

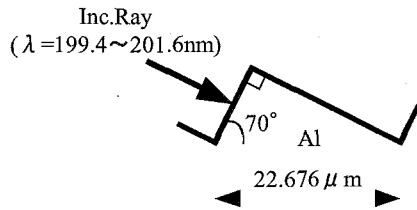


Fig.7 Incident condition of echell grating

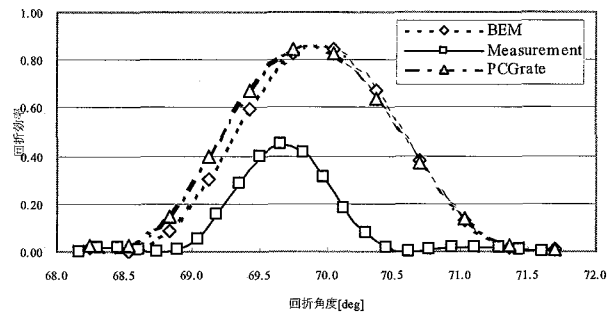


Fig.8 -211th order diffractive coefficient of Echell grating

## 5. むすび

回折格子の代表的な解析手法（厳密結合波解析、境界要素法）について理論を概説し、それぞれの手法に適した波長領域について理論的に考察し、その妥当性を実験との比較で確認した。

## 参考文献

- [1] O. M. Lord Rayleigh, "On the dynamical theory of gratings", Proc. Royal Soc. (London) **A79**, 399-416 (1907).
- [2] M. G. Moharam, T. K. Gaylord, "Tree-dimensional vector coupled-wave analysis of planar-grating diffraction," J. Opt. Soc. Am. **73**, 1105-1112 (1983).
- [3] R. Petit, "Integral method" in Electromagnetic theory of gratings, R. Petit, ed., Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, pp. 63-100 (1980).
- [4] L. I. Goray, "Modified integral method for weak convergence problems of light scattering on relief grating," in Diffractive and holographic technologies for integrated photonic systems, R.I. Sutherland, D.W. Prather, and I. Cindrich, eds., Proc. SPIE **4291**, 1-12 (2001).
- [5] C. E. Wheeler, E. T. Arakawa, and R. H. Ritchie, "Photonexcitation of surface plasmons in diffraction gratings: effect of groove depth and spacing," Phys. Rev. **B13**, 2372-2376 (1976).

### 4.3 0.88 keV 用雲母結晶偏光子を用いた軟X線光源の偏光評価

## Polarization measurement of soft x-ray source using polarizers made with mica crystals at 0.88 keV

今園孝志<sup>1</sup>、木村洋昭<sup>2</sup>、広野等子<sup>2</sup>、斎藤裕児<sup>1</sup>、小池雅人<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

<sup>2</sup> JASRI/SPRING-8

Takashi IMAZONO,<sup>1</sup> Hiroaki KIMURA,<sup>2</sup> Toko HIRONO,<sup>2</sup> Yuji SAITOH,<sup>1</sup> and Masato KOIKE<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

<sup>2</sup> Japan Synchrotron Radiation Research Institute

By means of rotating analyzer method (RAM), soft x-ray polarizers made with single-crystals such as a muscovite and a fluoro-phlogopite micas were newly developed and utilized for evaluating the state of polarization of linearly polarized light. Both of them were found to work as highly efficient polarizers at 0.88 keV. By use of them, the degree of linear polarization of light generated from a variably-polarizing undulator (BL23SU of the SPRING-8) in linear polarization mode was experimentally determined to be 0.993 at 0.88 keV.

**Keywords:** degree of linear polarization, soft x-ray, polarizer, mica, muscovite, fluoro-phlogopite

#### 1. はじめに

可変偏光アンジュレータ光源等から放出される 1 keV 近傍の偏光軟X線は、磁気デバイスにおける磁性元素の内殻電子を元素選択的に励起することが出来るため磁性材料研究に有用である。偏光軟X線を用いた研究では励起光の偏光状態に関する情報を得ることは重要である。直線偏光度や円偏光度等の偏光状態を決定するには、偏光子や移相子等の偏光素子が必要不可欠である。現在、軟X線領域の偏光評価研究において、数十 eV から 0.7 keV までの領域で多層膜型偏光素子が、約 6 keV 以上で結晶型素子が用いられている。しかし、0.7~0.9 keV (以下、1 keV 領域) 領域は高い性能を有する偏光素子の開発が困難であるために偏光評価研究は殆ど行われていなかった。

当研究グループでは 1 keV 領域用偏光素子を開発するために、約 1 nm の格子面間隔を持ち、分光結晶として古くから知られている白雲母 (muscovite、天然) 結晶に着目し、動力学回折理論に基づくシミュレーションや放射光を用いて、同結晶の偏光特性を評価した。その結果、入射角 45°、入射エネルギー 0.88 keV で高い偏光性能を有する反射型偏光子として機能することを明らかにした[1]。また、白雲母結晶と類似した結晶であるフッ素金雲母結晶 (fluoro-phlogopite、合成) も 0.88 keV で高い偏光性能を持つ反射型偏光子として機能する可能性を見出した[2]。しかし、偏光子の性能である偏光能を定量的に決定することが出来なかったために、光の偏光状態を特定するまでには至らなかった。

反射型偏光子の性能は、s(p) 偏光反射率  $R_s$  ( $R_p$ ) と偏光能  $\Gamma$  ( $= (R_s/R_p - 1)/(R_s/R_p + 1)$ ) によって特徴付



Table 1 The chemical formulas, the lattice spacings,  $d_{002}$ , determined by x-ray diffraction measurement, and the energies corresponding to the incident angle of  $45^\circ$ , of muscovite and fluoro-phlogopite micas.

	Muscovite (Natural mica)	Fluoro-phlogopite (synthetic mica)
Chemical formula	$\text{K Al}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10}) (\text{OH})_2$	$\text{K Mg}_3(\text{AlSi}_3\text{O}_{10}) \text{F}_2$
Lattice spacing, $d_{002}$	0.9929 nm	0.9963 nm
$hc/2d_{002}\cos(45^\circ)$	879.06 eV	879.9 eV

\*  $h$ : Planck constant,  $c$ : velocity of light in vacuum

けられ、 $R_s$  が高く、 $\Gamma$  が+1 に近いほど性能が高い。 $\Gamma$  を決定するには回転検光子法 (RAM) が用いられる。2 枚の偏光子 (同一でなくて良い) を用いて 3 つの独立な反射強度の方位角依存測定を行う。偏光子のみを用いた RAM では、光の直線偏光度  $P_L$  及び偏光楕円の主軸の傾き  $\delta$  (光の進行方向に正対する観測者から見て反時計回りを正)、及び  $\Gamma$  を同時に決定することが出来る。

本論文では、0.88 keV にける白雲母及びフッ素金雲母結晶を用いた反射型偏光子としての性能、及び軟X線の偏光状態 (直線偏光度及び偏光楕円の主軸の傾き) を回転検光子法によって明らかにし、雲母結晶の軟X線偏光素子としての有用性について検証する[3]。

## 2. 白雲母とフッ素金雲母結晶

本研究では、白雲母とフッ素金雲母をそれぞれ 2 枚ずつ用意し、1 枚を偏光子として、もう 1 枚を検光子として用いた。両結晶の結晶性及び格子面間隔を X 線回折 (XRD) 測定によって評価した結果、両結晶の結晶性が高いこと、及び偏光子の偏光能が最も高くなる入射エネルギーは約 0.88 keV であることが分かった[1]。Table 1 に両結晶の化学式、格子面間隔  $d_{002}$ 、及びブラッグ角  $\varphi_B = 45^\circ$  を満たす時のエネルギー  $hc/2d_{002}\cos(45^\circ)$  を示す。

## 3. 動力的回折理論に基づく白雲母結晶の偏光特性

X 線の動力的回折理論に基づき計算した白雲母結晶の (002) 対称ブラッグ反射の (a)  $s$  偏光反射率  $R_s$ 、(b)  $p$  偏光反射率  $R_p$ 、(c) 偏光能  $\Gamma$  を入射エネルギー  $E$  及び入射角  $\varphi$  のブラッグ角  $\varphi_B$  からのずれ  $\Delta\varphi$  ( $= \varphi_B - \varphi$ ) の関数として Fig. 1 に示す。ここで、 $\varphi$  は試料表面から測った角度である ( $0.8 \text{ keV} \leq E \leq 1.0 \text{ keV}$  の時、 $38.70^\circ \leq \varphi_B \leq 51.37^\circ$ )。Fig. 1 から  $R_s$  は高く、 $R_s \gg R_p$  であることが分かる (例えば、 $E = 0.88 \text{ keV}$ 、 $\Delta\varphi = -0.084^\circ$  の時、 $R_s = 4.5\%$ 、 $R_p = 1.7 \times 10^{-5}\%$ )。シミュレーション結果は、白雲母結晶が 0.88 keV で反射型偏光子と機能することを示唆している[1]。

## 4. 回転検光子法による偏光評価実験

雲母結晶偏光子の性能評価及び偏光軟X線の偏光評価実験は、SPRING-8 BL23SU を用いて行った。

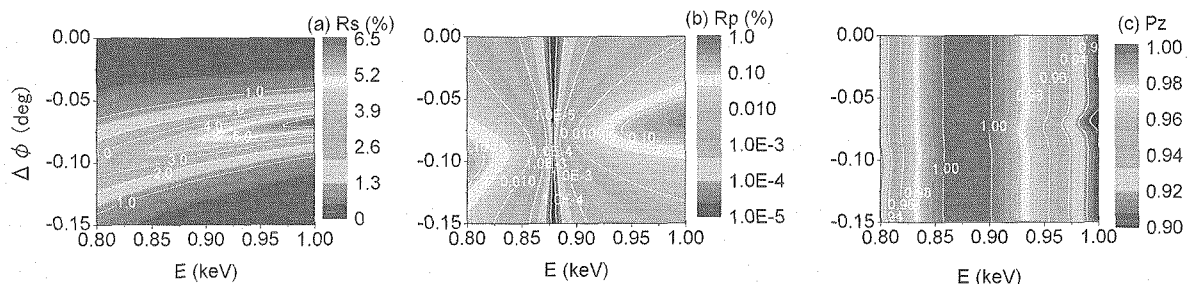


Fig. 1 Two-dimensional maps of the reflectance for s-polarization  $R_s$  (a), the reflectance for p-polarization  $R_p$  (b), and the polarizance  $\Gamma$  (c) of muscovite(002) in a symmetric Bragg geometry, as functions of the incident energy  $E$  and the deviation angle  $\Delta\varphi$  from Bragg angle.

アンジュレータの偏光モードを水平偏光モードとし、水平に直線偏光した光を入射光とした。また、入射エネルギーを 0.88 keV (分解幅は約 0.5 eV) とした。なお、この時の白雲母及びフッ素金雲母結晶のブラッグ角はそれぞれ 44.81° 及び 45.00° である。回転検光子法を用いた偏光測定には、軟X線偏光解析装置 (ELLI) [4] を用いた。ELLI は、光学系として 5 軸ゴニオメータ、偏光子用及び検光子用試料ステージ、及び検出器としてマイクロチャンネルプレートを持つ (エラー! 参照元が見つかりません。参照)。

入射光の直線偏光度  $P_L$  は偏光子 (P) に反射された光のコントラストファクタを  $F_P$  (エラー! 参照元が見つかりません。(a))、検光子 (A) に反射された光のコントラストファクタを  $F_A$  (エラー! 参照元が見つかりません。(a))、P 及び A によって反射された光のコントラストファクタを  $F_{PA}$  (エラー! 参照元が見つかりません。(b))、P に反射された光の偏光楕円の主軸の傾きを  $\delta_{PA}$  (エラー! 参照元が見つかりません。(b)) とすると、 $P_L = [F_P F_A / F_{PA} \cos 2\delta_{PA}]^{1/2}$  である。ここで、 $F_i$  は、素子  $i$  を方位角  $\xi (= \chi, \eta)$  の周りで走査することで得られる反射強度  $I_i$  の最大値  $I_i^{\text{Max}}$  及び最小値  $I_i^{\text{Min}}$  を用いて  $F_i = (I_i^{\text{Max}} - I_i^{\text{Min}}) / (I_i^{\text{Max}} + I_i^{\text{Min}})$  で定義され、Mallus 則で表されるフィッティング関数  $I_i(\xi) = (I_i^{\text{Max}} - I_i^{\text{Min}}) \cos^2(\delta_i - \xi) + I_i^{\text{Min}}$  を適用することによって得られる。ここで、 $\delta_i$  は素子  $i$  に入射する光の偏光楕円の主軸の傾きで、 $i = P, A$  の時、入射光の偏光楕円の主軸  $\delta$  と一致する。素子  $i$  の偏光能  $\Gamma_i$  は直線偏光度  $P_L$  及びコントラストファクタ  $F_i$  を用いると、 $\Gamma_i = F_i / P_L$  であり、 $\Gamma_i$  及び  $P_L$  を同時に決定することが出来る ( $i = P, A$ ) [3]。

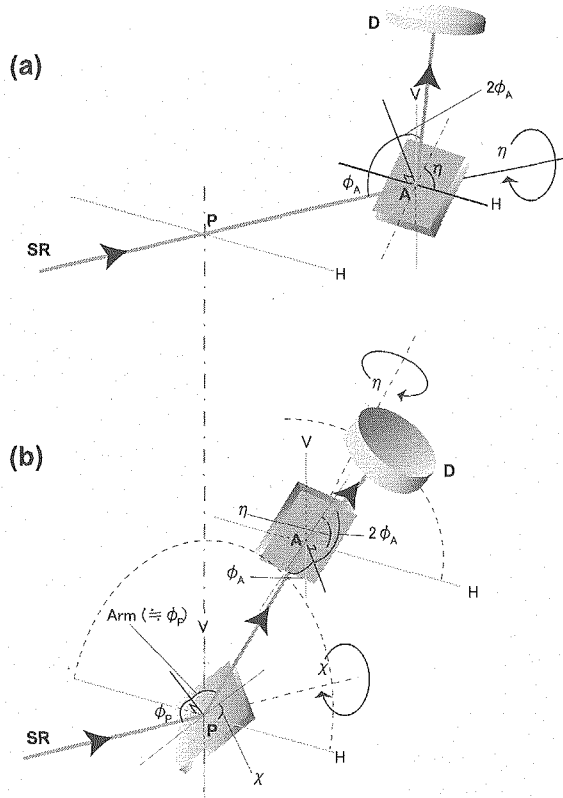


Fig. 2 Schematics of reflection measurement using a polarizer and/or an analyzer (a) and reflection ellipsometry using a polarizer and an analyzer (b).  $\phi_P$  ( $\phi_A$ ) and  $\chi$  ( $\eta$ ) are the incident angle and the azimuth angle of the polarizer at P (the analyzer at A), respectively. Arm is the reflection angle of light reflected by the polarizer and can move the analyzer and a detector, D, without changing a relative position of them.

## 5. 結果

$E = 0.88$  keV、対称ブラッグ配置における (a) 白雲母及び (b) フッ素金雲母結晶の s 偏光反射率  $R_s$  及び p 偏光反射率  $R_p$  を  $\Delta\phi$  の関数として Fig. 3 に示す。白雲母結晶の  $R_s$  及び  $R_p$  のピーク反射率はそれぞれ 3.0% 及び 0.015%、フッ素金雲母結晶の  $R_s$  及び  $R_p$  のピーク反射率はそれぞれ 2.6% 及び 0.013% であり、どちらの結晶も  $R_s$  が高く、 $R_s \gg R_p$  であることが分かる。なお、各偏光の反射曲線のピーク位置のずれは入射光の分解幅を考慮すること

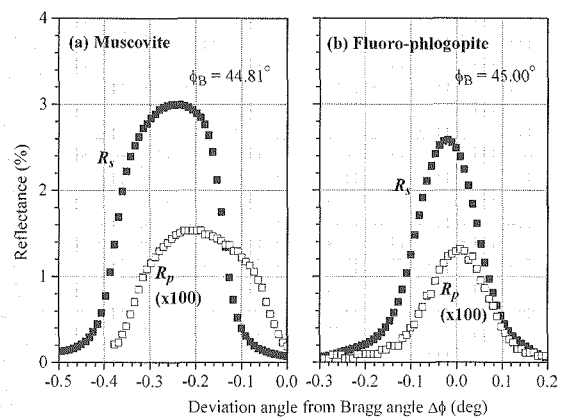


Fig. 3 Measured reflectances for s-polarization,  $R_s$ , and p-polarization,  $R_p$ , of muscovite (a) and fluoro-phlogopite (b) in a symmetric Bragg geometry at 0.88 keV, as a function of  $\Delta\phi$

によって理解できる[1]。

Fig. 4に、Fig. 2に示した配置で測定した(a)白雲母結晶及び(b)フッ素金雲母結晶のPで反射された光の反射強度(○)、Aで反射された光の反射強度(△)、P及びAで反射された光の反射強度(□)を示す。実線はフィッティング結果である。横軸は方位角、縦軸は対数スケールでの反射強度である。測定データとフィッティング結果はよく一致している。解析の結果、白雲母結晶及びフッ素金雲母結晶は0.88 keVで高反射率、高偏光能な反射型偏光子として機能すること、入射光の直線偏光度は極めて高く、水平に直線偏光していることが分かった。Table 2に両結晶の偏光能、入射光の直線偏光度及び偏光楕円の主軸の傾きを示す。どちらの偏光子を用いても直線偏光度の値は一致した。

白雲母結晶及びフッ素金雲母結晶は0.88keVで反射型偏光子として機能し、それらを用いて直線偏光度を決定することに成功した。このことは、当該エネルギー域用の移相子の開発や円偏光度の評価のための検光子として利用できることを示している。また、本研究により雲母結晶は軟X線偏光素子として有用であることが確かめられた。

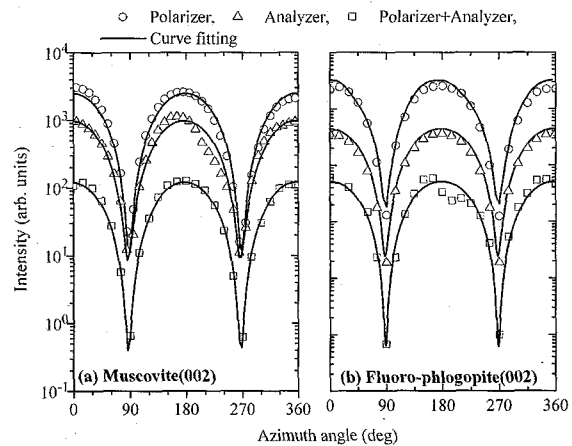


Fig. 4 The azimuth dependences of intensities of muscovite (a) and fluoro-phlogopite (b) measured with the configurations shown in Fig. 2. Open circles, triangles, and squares in these figures show intensities of beam reflected by the polarizer at P, by the analyzer at A, and by the analyzer at A after reflected by the polarizer at P, respectively.

Table 2 Polarization abilities, the reflectance for s-polarization,  $R_s$ , and the polarizance,  $\Gamma$ , of polarizers made with muscovite and fluoro-phlogopite micas, and polarization states, the degree of linear polarization,  $P_L$ , and the azimuth angle,  $\delta$ , of the major axis of polarization ellipse of light at 0.88 keV determined by each polarizer.

	Polarizing abilities		Polarization states	
	Reflectance for s-polarization, $R_s$	Polarizance, $\Gamma_P / \Gamma_A$	Deg. of linear polarization, $P_L$	Azimuth angle, $\delta$
Muscovite	3.0%	0.999 / 0.990	$0.993 \pm 0.001$	$-1.54^\circ \pm -0.24^\circ$
Fluoro-phlogopite	2.6%	0.999 / 0.996	$0.993 \pm 0.004$	$-2.25^\circ \pm -0.45^\circ$

## 謝辞

伊藤機工(株) 殿にはフッ素金雲母単結晶をご提供賜り厚く御礼申し上げます。日本商事(株) 殿には雲母に関し有益な助言を賜り深く感謝申し上げます。本実験は(財)高輝度光科学研究センター(JASRI) SPring-8の実験課題(No.2004B0748)のもと行われた。

## 参考文献

- [1] T. Imazono *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **76**, 023104 (2005).
- [2] T. Imazono *et al.*, JAERI-Conf, **2005-004**, 23-26 (2005).
- [3] T. Imazono *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **76**, 126106 (2005).
- [4] H. Kimura *et al.*, AIP Conf. Proc. **705**, 537 (2004).



#### 4.4 新型転換炉ふげん発電所の廃止措置とレーザー技術への期待

### Decommissioning of ATR Fugen and Expectation for Application of Laser Technologies

清田 史功

独立行政法人日本原子力研究開発機構 敦賀本部 新型転換炉ふげん発電所 環境保全課

〒914-8510 福井県敦賀市明神町 3 番地

Shikou KIYOTA

Decommissioning Planning Section, Fugen Nuclear Power Station, Tsuruga Head Office,

Japan Atomic Energy Agency

3 Myoujin-cho, Tsuruga-shi, Fukui 914-8510, Japan

Decommissioning technology for nuclear facilities has been developed introducing advanced technologies from the perspective of safety and practicality. On the basis of the development of Laser technology promoted recently, we have studied applicability for decommissioning of several technologies including Free Electron Laser (F)EL as a new technology. In this paper, both present status on the Fugen decommissioning project and the availability of Laser technologies are described.

**Keywords: Fugen NPS, Decommissioning, Decontamination, Cutting method, Free Electron Laser**

#### 1. はじめに

新型転換炉ふげん発電所(以下「ふげん」)は、2003 年 3 月 29 日に運転を終了し、その後は 2002 年 3 月に公表した「新型転換炉ふげん発電所の運転終了後の事業の進め方について」に基づき、安全かつ合理的な廃止措置の実現に向け、廃止措置の準備及び必要な技術開発を実施している<sup>1),2)</sup>。

2005 年 10 月 1 日には、日本原子力研究所との統合により「独立行政法人日本原子力研究開発機構」が設立され、「ふげん」は、この新組織において原子炉施設の廃止措置の拠点としての機能を担うこととなり、機構内関連技術の融合・集中化も視野に入れて廃止措置技術の開発・集約を行うと共に、その情報を発信・普及するための取り組みを進めている。

#### 2. 「ふげん」廃止措置への取り組み

##### 2.1. 廃止措置の準備状況

運転終了後は、廃止措置に向けた準備として、炉心燃料を取り出し、燃料を炉心に再度装荷できない措置を講ずると共に、使用済燃料の再処理のために「再処理技術開発センター」への輸送を実施している。また、減速材である重水を系統から回収し、カナダでの再利用のために、「ふげん」で開発された  $\gamma$  核種除去技術を用いて Co-60 等を除去する前処理を施した後、輸送容器に封入してカナダへ輸送している。施設管理においては、プラント管理及び解体作業に係る被ばく低減、放射能レベルの低減による安全性向上や廃棄物の処理・処分コストの低減を目的として、原子炉冷却系統の化学除染を行う<sup>3)</sup>と共

に、設備の休止保管措置を計画的に実施している。

原子力施設の廃止措置に係る安全規制の明確化等を目的として、2005 年 5 月に原子炉等規制法が改正され同年 12 月に施行されたことから、現在、同法に基づく廃止措置計画の申請準備を進めている。

## 2. 2. 廃止措置に係る技術開発

「ふげん」は、重水減速・沸騰軽水冷却・圧力管型原子炉であり、原子炉本体の構造が複雑で多様な材料で構成されていること、減速材に重水を使用していること等の特徴を有している(Fig.1)。また、原子炉本体は、中性子により高度に放射化している。これらの特徴を考慮し、原子炉本体や重水系設備を安全かつ合理的に解体するための検討及び技術開発を進めている。一方、原子炉本体や重水系以外の設備は、沸騰水型の軽水炉(BWR)と同様であり、切断、除染等の既存技術の活用や改良・高度化により、「ふげん」の廃止措置に適用していくことを計画している<sup>2)</sup>。

### (1) 原子炉本体の解体技術

「ふげん」の原子炉本体を安全かつ合理的に解体するために、一般産業技術も含めて解体技術を広く調査した。この結果、切断技術の他に、解体雰囲気や圧力管集合体の取り扱い、廃棄物の処理等、解体方式を構成する諸要素を評価し選択する必要があるとの結論が得られ、これらに対して安全性や経済性等を考慮しながら、最適な解体方法の検討を進めている<sup>4)</sup>。原子炉本体解体工法の一つの検討例を Fig.2 に示す。

主要な既存切断技術として、熱的切断では、プラズマアーク切断やレーザー切断、機械的切断では、ディスクカッターやバンドソー等がある。各切断技術にはそれぞれ特徴があり、切断部材(材質、厚さ)及び切断環境(水中、気中)等を考慮して、最適なものを選定する必要がある。このため、切断技術の比較評価のためのデータ取得等を目的とした試験を実施している。

### (2) 除染技術

運転中の原子炉施設の機器、配管類等には、放射性腐食生成物(クラッド)が付着堆積しており、これらの周辺で作業を行う作業員の被ばくの原因となっている。運転中の原子炉施設の除染は、主に点検保守作業時の被ばく低減を目的として適用実績があり、既に多くの除染方法が実用化されている。これらの除染技術を原理的に分類すると、①化学的方法、②物理・機械的方法、③電気的方法に大別される。

一方、廃止措置段階の除染は、作業員の被ばく低減や解体作業の容易化、効率化の他、放射性廃棄物の処分区分変更(例:低レベル廃棄物を極低レベル廃棄物に変更)を目的として実施される。廃止措置段階の除染方法を選定する際には、高い除染効果はもとより、処理・処分費を低減するために二次廃棄物の発生量を出来るだけ抑制できることが重要となる。廃止措置段階で適用される除染技術は、機器、配管類等の構成材料の腐食や損傷に対する配慮が大幅に緩和されることが運転中と異なるものの、基本的には運転中と同様の技術が適用できる。

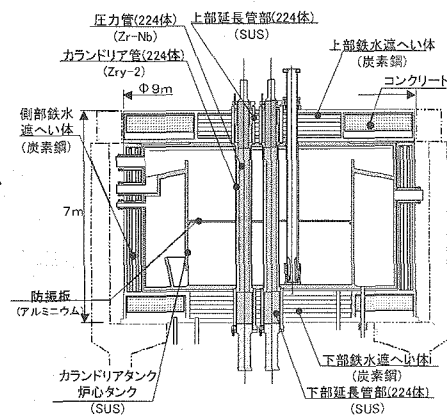


Fig. 1 Structure of the reactor

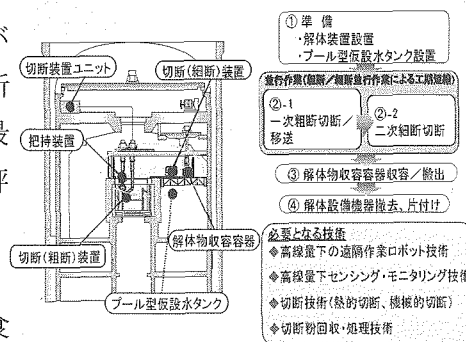


Fig. 2 The outline of reactor dismantling plan

「ふげん」では、廃止措置における除染を、その対象、目的ごとに Fig 3 に示すように分類し検討している<sup>5)</sup>。具体的な除染方法については、二次廃棄物の発生量等も考慮して、除染効果とコストのバランスを評価し、最適な方法を選定することとしており、必要に応じて「ふげん」の実機を用いて除染性能等を確認する試験を計画している。

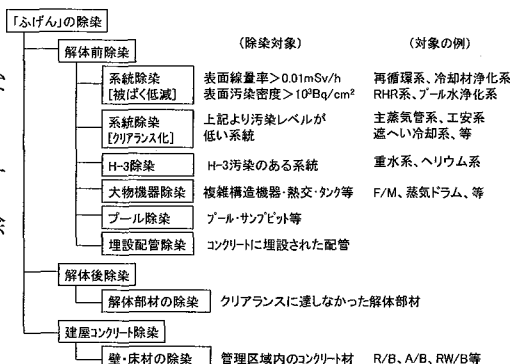


Fig. 3 Classification example of decontamination in Fugen

### 3. レーザー技術の廃止措置への適用の可能性

#### 3.1 レーザー技術の適用分野

原子炉施設の廃止措置において、レーザー技術は、原子炉本体の構造物の切断や機器、配管類等に付着した汚染の除去に適用の可能性がある技術であり、特に、その高密度エネルギーを遠隔制御で利用できるという特徴から、原子炉本体等の高放射線環境下での遠隔解体作業への適用が検討されている<sup>6)</sup>。

レーザー切断は、レーザービームを収束し、このビームで切断対象物を熔融し補助ガスで除去することにより切断する方法で、ビームの集光性が極めて優れており、高いエネルギー密度が得られるため、大きい切断能力を有している。また、制御性と遠隔操作性に優れていること、切断幅が相対的に狭く二次生成物の発生量が少ないこと、各種材料の切断が可能であること等から、原子炉解体の切断技術として使用できる可能性を有している。

一方、レーザー除染は、パルス状に発振するレーザーを除染対象物(機器・設備、コンクリート、塗装等)に照射して放射性物質を剥離除去する方法であり、主として二次廃棄物の抑制が期待される除染方法である。パルスレーザーは、高エネルギー密度のレーザーを断続的に繰り返し発振するレーザーで、被照射物を微小粒子に分解したりあるいはガス化して除去するため、除染液や研磨材が不要であり、原理的に二次廃棄物の発生量の減少が期待される。

このため、従来から、切断や除染への適用を考慮した技術開発が行われてきているが、これまでに実用化されているレーザーの出力規模(10kW 程度)や入熱を伴うという特性から、切断厚の制限、汚染の再付着等の課題が残されている。

関西光化学研究所では、高効率で高品質なエネルギー回収型自由電子レーザー技術について、土木建築分野への適用も視野に入れながら高出力化を目指した開発が進められており、このレーザー技術が従来の課題をブレイクスルーし、原子炉施設の廃止措置の実用技術として成立性を実証していくことが期待される。

#### 3.2 自由電子レーザー技術

自由電子レーザーは、既存のレーザー(YAG レーザーや CO レーザー等)とは異なり、波長可変、超短パルス、ハイピークパワーかつハイアベレージパワーという特徴(Fig.4)があることから、原理的には、高出力レーザーによる厚板部材切断や超短パルスレーザーによる非熱的除染が可能であり、原子炉施設の廃止措置への適用が期待される技術である<sup>7)</sup>。

切断に関しては、自由電子レーザーは、ビーム品質が高く、発散角が小さくかつ高出力なレーザーを出力することができることから、厚板部材を狭幅(0.1mm 以下)で切断することが可能と考えられる。

また、除染に関しては、ピコ秒( $10^{-12}$  秒)からフェムト秒( $10^{-15}$  秒)という非常に短い時間幅のパルスで照射するため、熱が材料に伝わる前に局部的に表面をガス化することが出来、照射部周辺に熱の影響をほとんど与えずに対象部材表面を剥離除去可能な非熱的レーザーとしての特性 (Fig.5 参照)を有しており、ドロス等による再汚染のない除染が可能と考えられる。

現在検討されている 10kW 級の自由電子レーザーの発生装置は、既に実用化されている他の切断装置及び除染装置に対して、装置規模及びコスト面での課題を有しており、実用技術として原子炉施設の廃止措置に適用する場合には、要求される性能条件に対して技術的な見通しが得られることはもとより、その経済的な合理性も十分考慮する必要がある。

#### 4. おわりに

今後「ふげん」は、廃止措置に係る計画認可を経て、「ふげん廃止措置研究開発センター(仮称)」に移行していく計画であり、センターへの機構内関連技術の融合・集中化や国内外の研究機関との協力によって研究開発機能の強化を図ると共に、地元産業界等とも連携・協力し、原子炉施設の廃止措置の拠点としての機能を効果的に発揮していくことが重要となってくる。

レーザー技術は、その原理及び特性から、原子炉施設の切断技術及び除染技術としての適用の可能性を有する技術であり、センターにおける廃止措置に係る技術開発をより効率的に進めていくために、今後も関西光化学研究所とレーザー技術の応用分野で連携・協力を図って行きたい。

#### 参考文献

- [1] 柳澤務: “「ふげん」の廃止措置への取組み”, デコミッションング技報, 第 21 号, p2 (2000)
- [2] 岸和田勝実 他: “今後の廃止措置への取組み”, サイクル機構技報, No.20 別冊, p151 (2003)
- [3] 大和義明, 森田聡 他: “「ふげん」系統化学除染の廃止措置影響評価”, 日本原子力学会「2004 年秋の大会」, (2004)
- [4] 宝珍浩仁, 井口幸弘 他: “「ふげん」原子炉本体解体方式の評価”, 日本原子力学会「2004 年春の年会」, (2004)
- [5] 井口幸弘, 大和義明 他: “「ふげん」の廃止措置における被ばく低減の取組み”, 日本保健物理学界, 38(2), p116(2003)
- [6] 原邦男, 宮尾英彦 他: “レーザ切断による二次生成物回収処理技術試験”, デコミッションング技報, 第 23 号, p41(2001)
- [7] 峰原英介, 「原研超伝導リニアック駆動自由電子レーザー 極短パルス、高効率、高出力、波長可変レーザーの実現に向けて」 日本放射光学会誌「放射光」, 14(3), p.20-27 (2001)

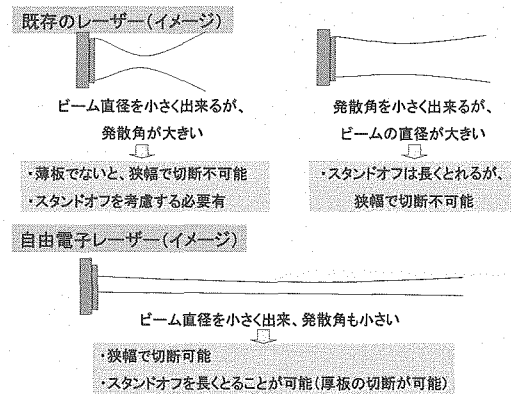


Fig. 4 Comparison between the existing

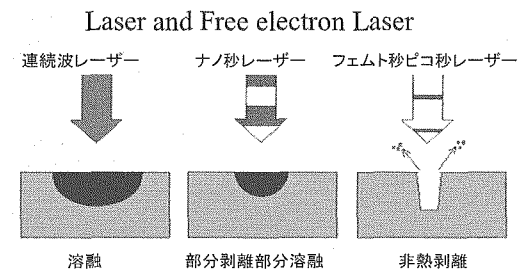


Fig. 5 Comparison with each Laser



#### 4.5 強光子場中での電子遷移確率の位相制御

### Phase control of the probability of electronic transitions in the non-perturbative laser field intensity

横山啓一、杉田明宏、山田秀尚、寺西慶哲、横山淳

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 光量子ビーム利用研究ユニット

K. YOKOYAMA, A. SUGITA, H. YAMADA, Y. TERANISHI, A. YOKOYAMA

Quantum Beam Science Directorate,  
Japan Atomic Energy Agency

A preparatory study on the quantum control of the selective transition  $K(4S_{1/2}) \rightarrow K(4P_J)$  ( $J=1/2, 3/2$ ) in intense laser field is reported. To generate high average power femtosecond laser pulses with enough field intensity, a Ti:Sapphire regenerative amplifier system with a repetition rate of 1 kHz is constructed. The bandwidth and pulse energy are shown to qualify the required values for the completely selective transition with 100% population inversion. A preliminary experiment of the selective excitation shows that the fringe pattern formed by a phase related pulse pair depends on the laser intensity, indicating that the perturbative behavior of the excitation probabilities is not valid any more and the laser intensity reaches a non-perturbative region.

**Keywords:** Quantum control, Selective transition, Population inversion, Non-perturbative inteisity

#### 1. はじめに

核燃料サイクルにおける現在の廃棄物処理の方針では、再処理によってウランとプルトニウムを回収し、残った高レベル廃液をガラス固化体にして地層処分することになっている。しかし、高レベル廃液には長寿命放射性核種が残存している。環境負荷低減の観点から、それらのうち経口毒性が強くやっかいなマイナーアクチノイドは分離回収して核変換してしまおうという研究が実用段階まで進んでいる。これに比べて同じ長寿命放射性核種でありながら核分裂生成物についてはあまり研究が進んでいない。地下水移行シナリオによるとこれら長寿命核分裂生成物による 100 万年後の公衆被爆が懸念されており、そ

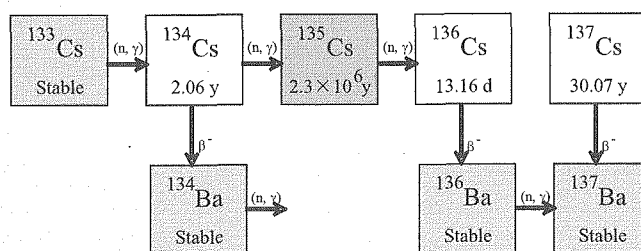


図 1. 中性子捕獲によるセシウム核変換の流れ。 $^{135}\text{Cs}$  が核変換すべき核種。共存する  $^{133}\text{Cs}$  から  $^{135}\text{Cs}$  が生成するため  $^{133}\text{Cs}$  を前もって取り除く必要がある。さらに、強放射性的の  $^{137}\text{Cs}$  が共存するため、同位体分離を実施する場合作業者の被爆が懸念されている。



れを低減するために中性子捕獲反応による核変換が検討されている。ところが、セシウムなどいくつかの元素では安定な同位体も含まれており(図 1)、それを同位体分離して取り除かない限り、核変換が経済的に成立しないことが分かってきた[1]。強放射性核種が共存する中での同位体分離は、現在の技術レベルでは実現困難と言われており、革新的同位体分離技術の創出が望まれている。

レーザー法同位体分離は潜在的に、コンパクトかつ 2 次廃棄物が少ないという放射性物質の同位体分離に有利な特長を持っている。しかしながら、レーザーウラン濃縮の例から分かるように工業化に対して未成熟な部分がある。それは原料供給形態が熱的に非平衡のガス(例えば原子ビーム)であることに起因する。例えば、反応容器を高真空に維持しなければならないことや作業物質が容器内壁に衝突する前にレーザーイオン化あるいは光分解を完了しなければならないことである。これらのために光利用効率や原料利用効率、製品回収効率が大幅に低下していた。この問題は放射性元素に限ったことではなく、酸素やシリコンなど軽元素も含めた同位体分離全般について言えることである。この問題を根本的に解決するために、我々は、熱平衡状態(例えば反応管を流れるガス)でも機能する同位体選択原理の開発を目標に研究を進めている。レーザーパルス波形整形によるコヒーレント量子制御[2]はそのような原理を実現し同位体分離技術にブレークスルーをもたらす可能性を秘めている。熱平衡状態での同位体選択に最も障害となるのは分子振動や回転など内部自由度の熱励起である。その影響を抑制するために振動高励起状態での選択励起及び分子回転運動のレーザー冷却を検討していく。

## 2. 位相制御による超高速選択励起の実証

その第一歩として、極短パルスすなわち広帯域パルスによる近接準位の超高速選択励起をセシウム原子を例にとり実証した。位相相関パルス対を使った量子干渉効果(図 2)によりフーリエ限界波形では到達できない極短時間での選択が可能なることを示し[3]、熱平衡条件下で問題となる衝突緩和を回避する手段として一つの手がかりを得た。

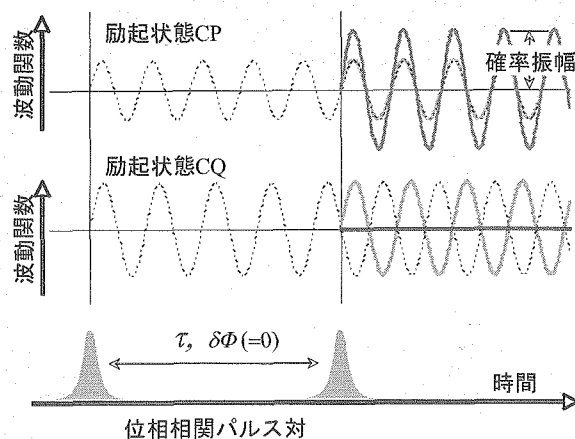


図 2. 位相相関パルス対による選択励起の原理。2つのパルスで生成する波動関数が干渉し、励起状態1では波の強め合いにより最終的な確率振幅が 2 倍になり、励起状態2では波の打ち消しのため確率振幅は零になる。

## 3. 強光子場中での選択励起

しかしながら、この超高速選択励起の実験では使用したレーザーの強度が弱く、励起確率の絶対値は  $10^{-3}$  程度であった。振動高励起状態を生成するために必要となる多段階励起を起こすには、単一段の

励起に対して励起確率をできるだけ 1 に近づける必要がある。そのためにはレーザー強度を強くすることが必要である。ただし、励起確率が 1 に近づくにつれて基底状態の減少を無視できなくなると共に、励起状態からの脱励起も無視できなくなる。そのため、いわゆる非摂動論的取扱が必要になり、干渉による波動関数の完全な打ち消しが起こる条件が複雑になる。この問題を解決する方法として、寺西により、中心周波数の周期的掃引により完全な選択性を保ったまま 100%反転分布できるパルス波形が提案され、時間依存のシュレディンガー方程式を数値的に解くシミュレーションによって確かめられた(図 3)。この方法はすでに提案されている他の方法より高速で且つ拡張性が高いと予想されている。我々はこの方法の実証をめざしてカリウム原子のスピンの軌道準位  $K(4P_{3/2})$  及び  $K(4P_{1/2})$  の選択励起の研究に着手した。

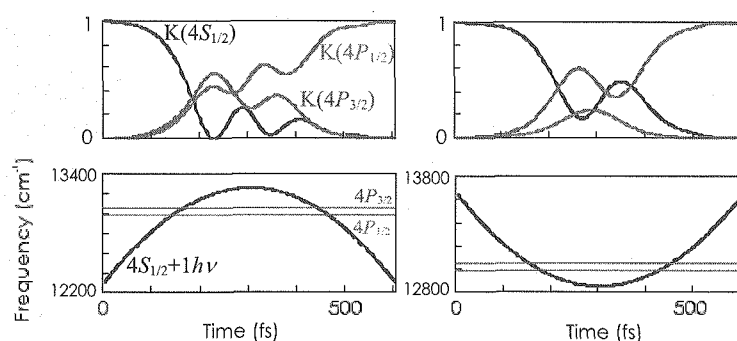


図 3. 計算機シミュレーションによる選択的反転分布。 $K(4S_{1/2}) \rightarrow K(4P_J)$  ( $J=1/2, 3/2$ ) の場合。状態分布の時間変化(上段)及びパルス波形(下段)。左図は  $J=1/2$  が生成する場合、右図は  $J=3/2$  の場合。500fs 程度で完全に選択的に 100%反転分布が達成される。

#### 4. 準備状況

計算機シミュレーションによると、この方法に必要なレーザーの帯域・強度はそれぞれ、730–805nm・20  $\mu$ J と予想される。この仕様を満たし高平均出力が可能な kHz チタンサファイア再生増幅システムを設計製作した。得られた帯域及びパルスエネルギーはそれぞれ 720–805nm 及び 200  $\mu$ J であり目標値を達成できた[4]。さらに、予備的な実験として、このレーザー出力を波形整形器により位相相関パルス対に加工し、位相制御による選択励起を試みた。干渉による励起確率の振動がレーザー強度に依存して変化することが観察された(図 4)。このことは、レーザー強度が非摂動論的領域に達していることを示している。

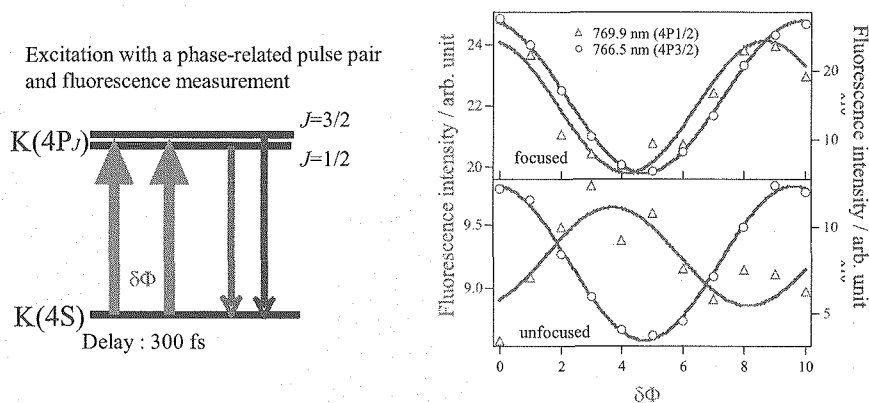


図 4. 位相相関パルス対によるカリウム原子の選択励起実験。状態ごとの励起確率を知るために  $J=1/2$  と  $3/2$  からの蛍光を測定した(左図)。位相差を掃引したときに観測される干渉縞が、集光によりフェーズシフトしていることが分かる(右図)。光子場強度が非摂動論的領域に達していることを表している。

今後、位相制御での選択性の限界を追求した後、チャープによる改善の効果を検証していく予定である。

#### 参考文献

- [1] JNC 調査報告, 高速増殖炉サイクルにおける長寿命核種の分離変換技術の…成果, JNC TN9420 2004-001 (2005).
- [2] 平尾一之・邱建栄編、フェムト秒テクノロジー【基礎と応用】、化学同人(2006).
- [3] H. Yamada, K. Yokoyama, et al., Phys. Rev. A 72, 063404 (2005).
- [4] 「高繰り返しフェムト秒チタンサファイアレーザーシステムの開発と量子制御実験への応用」杉田明宏、山川考一、青山誠、横山啓一、その他 5 名、レーザー学会学術講演会第 25 回年次大会(京都、平成 17 年 1 月)



## 4.6 原子力機構エネルギー回収リニアック高出力自由電子レーザーの応用

### Application of a high power free-electron-laser driven by JAEA energy recovery linac

西森 信行、羽島 良一、飯島 北斗、峰原 英介、永井 良治、沢村 勝、菊澤 信宏、西谷 智博  
独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 先進光源開発研究ユニット  
Nobuyuki NISHIMORI, Ryoichi HAJIMA, Hokuto IJIMA, Eisuke MINEHARA, Ryoji NAGAI, Masaru  
SAWAMURA, Nobuhiro KIKUZAWA, Tomohiro NISHITANI

Advanced Photon Source Development Unit, Quantum Beam Science Directorate,  
Japan Atomic Energy Agency

A high power free-electron laser (FEL) driven by an energy recovery linac (ERL) has been developed in JAEA. The FEL with an average power of 0.7 kW is used for non-thermal laser ablation as a prevention technique of stress corrosion cracking of reactor components, frequency resolved optical gating experiment aiming at polyatomic molecular dissociation and so on. An intense coherent synchrotron radiation is also produced in JAEA ERL as an intense mm wavelength light source.

**Keywords: FEL, High power, Laser Research**

#### 1. はじめに

原子力機構自由電子レーザー(JAEA FEL)では、2000年に波長  $22\mu\text{m}$  において平均出力 2kW の発振を記録し[1]、その後エネルギー回収リニアック(ERL)に改造し開発を行ってきた[2]。2005年11月に、従来の2倍となる平均電子ビーム電流 10mA での運転を開始し、12月に 10mA 運転としては最初の FEL 発振を実現、平均出力 0.7kW の FEL を使って実験を開始している。この運転モードでは、ビーム加速に使われる電力が主加速器部での RF 供給パワーを越えるため、エネルギー回収が常時必要となる点が従来の 5mA 運転と異なる。FEL の最大発振効率が 2%程度と期待以上に高く、発振後の電子ビームのエネルギー広がり (10%) が周回軌道のエネルギーアクセプタンスを上回った。そのため、高出力 FEL 発振状態では、周回軌道での電子ビーム損失が発生するという問題が現状残されている。アクセプタンスの大きな周回軌道を準備中であり、これを用いて高出力 FEL 発振と電子ビーム 100%回収の同時実現を目指している。

JAEA ERL は共用化施設であるため、この高出力 FEL の実験室への供給は重要なテーマである。そこで、ビーム輸送システムの整備を行い[3]、波長分布等の FEL ビーム特性の測定を既に開始している。FEL を用いた量子制御による多原子分子の解離の実証実験が応用実験の柱の一つであり、それを最終目標として、Frequency Resolved Optical Gating (FROG)による FEL チャープ測定を企画している[3]。原子力への応用例としては、FEL を用いた原子力施設の廃止措置を目的とした、FEL による金属表面剥離及び切断実験を予定している[4]。FEL による金属ワイヤーの切断等の予備実験を既に開始した。FEL を用いない JAEA ERL の応用例であり、かつ本施設共用化実験の現状の

柱として、電子バンチ長程度の波長を持つコヒーレントシンクロトロン放射光を用いた高強度ミリ波励起光源の開発を大阪府立大、京大原子炉と共同で企画している[5]。本発表では、JAEA ERL FEL 加速器施設の現状とその応用例を紹介する。

## 2. JAEA ERL FEL 加速器施設

ERL では、通常の電子リニアックと同様、電子銃などの入射器で生成する電子ビームを超伝導加速器に打ち込み加速し、FEL 等に利用する。FEL として利用されるのは、電子ビームエネルギーのごく一部（数%）であるので、ERL では使用済みの電子ビームを加速器に再入射して減速し、残ったエネルギーを RF に変換し、次にやってくる電子ビームの加速に再利用する。ERL は、SPRING8 等の第 3 世代光源よりも高い輝度を持つ、第 4 世代光源の有力候補として世界的に注目されている[6]。また、エネルギーを落としてビームを捨てることで、中性子などの有害な放射線の発生を抑制できる長所も備えている。

JAEA ERL 加速器の鳥瞰図を図 1 に示す。熱カソード電子銃で生成した電子バンチをバンチャーで圧縮し、2 台の前段加速器で 2 MeV まで加速し周回軌道に打ち込む。主加速器で 17MeV まで加速し、1st arc を使って電子ビームの軌道を 180 度反転し、アンジュレーターに導く。アンジュレーターの前には光共振器ミラーが設置してあり、FEL 発振を行う。発振に利用した電子バンチのビーム軌道を 2nd arc を使って再び反転し、主加速器に減速位相で打ち込み、2MeV まで減速してビームダンプに捨てる。超伝導加速器を使った ERL FEL は米国ジェファーソン研究所[7]などいくつかあるが、JAEA の特徴は電子バンチの電荷が大きくゲインが高いこと、入射エネルギー（ビームダンプでのエネルギー）が低くビームダンプでの放射線発生量が少ないが、エネルギー回収の難易度が高いことが挙げられる。

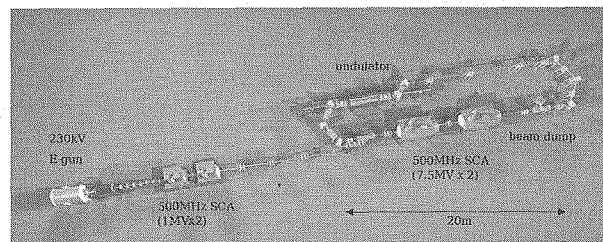
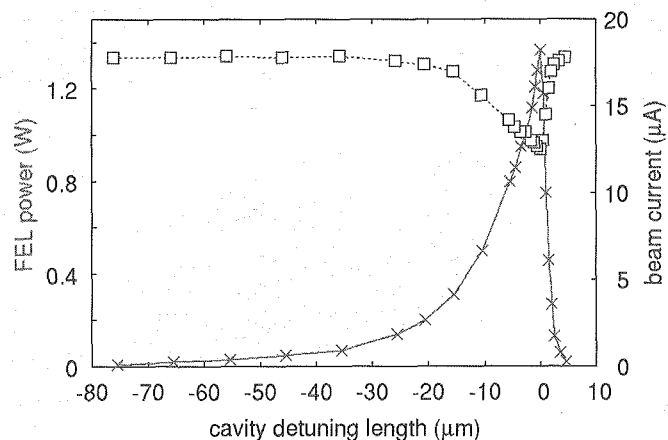


Fig.1 JAEA ERL FEL accelerator facility

典型的な FEL 発振パワーを図 2 に×印で示す。横軸は光共振器長を表し、発振パワーが最大の位置を便宜上 0 としている。電子ビームのマクロパルス長が 230  $\mu$ s、10Hz 繰り返しの時の典型的な最大発振パワーは 1.4 W であり、これは平均出力でおよそ 0.7kW に相当する。電子ビームのエネルギーロスから FEL の発振効率を測定したところ、2%が最大値であった。アンジュレーター中心でストリークカメラを使って測定した電子バンチ幅は 15ps FWHM であった。これは、ピーク電流 30A に相当する。このように、FEL、電子ビーム性能は満足の行く結果が得られているものの、発振させると回



収できる電流量が減ってしまうという問題が残っている。図2の□印はビームダンプでの電流値を表し、発振パワーが弱いときには発振しないときと同じ電流量になるが、発振パワーの増加と共に電流量が減ることを示している。FEL 発振を起こすと、電子バンチのエネルギーは全体として2%程度しか減らないが、電子バンチのエネルギー広がりはその5倍の10%程度となる。このようにエネルギーの広がった電子バンチが2nd arcの偏向電磁石を通る際に、エネルギー分散によりビームが広がるため、ビームダクトのサイズ次第では、エネルギーの大きく広がった電子が切り捨てられてしまう。これは加速器の回収RFパワーにはそれほど、大きな影響を及ぼさないが、不要な放射線が発生し、加速器室に設置したカメラ等精密電子機器の故障の原因となることが最大の問題である。この問題を解決するため、口径サイズが従来の2倍で15%のエネルギー広がりを持つビームを輸送可能な2nd arc用のビームダクトとそれにあった電磁石を準備し、従来のものと置き換える予定である。これにより、放射線の発生を抑制し、長マクロパルスや高バンチ電荷での運転が可能となり、FELパワーのさらなる増加に繋がると期待できる。

### 3. JAEA ERL FEL の応用研究

FEL の利用研究には、加速器室から利用実験室に運ぶ光輸送システムの整備が肝要となる。全長24mの光輸送系に対するFELの輸送効率は現状で30-40%程度である。FEL光共振器直後の収束光学系を改良することにより、50%以上まで増やす予定である[3]。この光輸送システムの整備にはJAEA ERL 施設共用化のための予算が使われている。

応用実験の柱の一つは、 $20\mu\text{m}$  波長領域のFELを用いたハロゲン化合物等の化学物質の分解である。効率的な光分解を行うには、レーザー光のエネルギーを励起エネルギーにぴたりと合わせて、光エネルギーが解離振動励起以外の分子内振動励起モード等に移行してしまうのを防ぐことが重要である。解離振動励起状態間のエネルギーは一般にその振動準位と共に徐々に下がって行く。そこで、最初に周波数の高い光を照射し、次に周波数の低い光を照射するというように、時間の関数として周波数を変化させた（チャープした）FEL光を利用することにより、利用しない時に比べて $10^9$ 倍の効率での解離が期待されている。オートコリレーションを用いて測定したFELの時間波形のすその形から、JAEA FELが14%チャープしていることが実験的に既に求められている[8]。このFELのチャープをより直接的に測定するために、FROG実験装置の整備を飯島が中心となり進めている。FELパルスの時間情報をオートコリレーションで測定しつつ、その周波数成分の情報を分光器で測定するシステムであり、FELの時間周波数相関を得ることができる。

近年問題になっている原子炉の応力腐食割れ（stress corrosion cracking: SCC）防止にFEL等の極短パルスレーザーによる比熱アブレーション加工を用いようという計画がある[4]。SCCの要因は金属をグラインダなどで削った時に表面が高温になるためにより生じる金属表面の残留引っ張り応力、金属表面のSCCに対する感受性、そして腐食環境の3つがあげられる。原子炉に通常使われるステンレスはこれらの全ての要因を満たすので、何らかの方法で要因を一つ以上除く必要がある。グラインダ等を用いて削ったステンレス表面は、加工時に発生する熱により金属表面に比べて表面が硬くなる。極短パルスレーザーを用いた非熱レーザーアブレーションで金属表面を削ってやることで、内部と同じ硬さにし、残留引っ張り応力及び、SCC感受性を小さくしてやるのが可能になる。チタンサファイアレーザーを用いた原理実証実験は既に行われており、

レーザーで削った表面は、同じ深さのものと同じ軟らかさを持つことを示すことに成功している[4]。残留引っ張り応力及び、SCC に対する感受性が小さくなっていると期待される。削る深さはそれほど必要ではなく、50  $\mu\text{m}$  程度で十分に SCC 対策となることが期待される。この非熱レーザーアブレーションに適したレーザーパルス長は 3ps 以下、パワー密度は 0.1~1J/cm<sup>2</sup> であり、FEL で充分その要求を満たすことができる。ERL FEL の場合、高出力化が比較的容易であることから、応力腐食割れ対策の実用機となり得る可能性がある。

チタンサファイアレーザーによる比熱アブレーションと同様の原理実証実験を FEL で行うことを目的とし、その前段階として、FEL によるステンレスワイヤーの切断実験を峰原を中心に行った。この際に実験室で利用した FEL パワーは 0.3W 程度であった。FEL ビームは 230  $\mu\text{s}$  の幅を持ったマクロパルスとして 1 秒間に 10 個生成され、各マクロパルスには 50ns 毎にマイクロパルスが存在する。最初の 30  $\mu\text{s}$  は発振パワーが小さいので、残りの 200  $\mu\text{s}$  が実効的なマクロパルス幅となる。各マクロパルスにはおよそ 4000 個のマイクロパルスが存在し、1 秒間に 40,000 個のマイクロパルスを照射していることになる。従って、各マイクロパルスのエネルギーは 7  $\mu\text{J}$  であった。前節で述べたレーザーアブレーションに適したパワー密度を容易に満たすことができる。この実験条件下で、およそ 10 分間 FEL を照射し、直径 0.3mm のステンレスワイヤーの切断に成功した。FEL のアップグレードに伴う実験室への光輸送効率の向上及びマクロパルス幅の増加達成後、FEL を用いたステンレス表面加工の原理実証実験を行う予定にしている。

FEL 以外では、テラヘルツ周波数領域の高輝度コヒーレント放射光源開発を目的として、大阪府立大奥田教授、京大高橋博士らを中心として、JAEA ERL 加速器施設の共用化実験を行っている。相対論的なエネルギーまで加速された電子の塊（電子バンチ）が偏向電磁石中を曲がったときに生成する放射光の中でも、電子バンチの長さ程度以上の波長の光は、各電子の生成する放射光の位相がコヒーレントになり、電子数の 2 乗に比例する高い強度を持つ。JAEA ERL の場合、超伝導加速器を使っておりマクロパルス幅を長くできることから、高強度テラヘルツ光源としての利用の可能性がある。（ただし、現状の電子バンチ長は 3mm 程度であるため、0.1 テラヘルツの光源である。）そこで、CSR 取り出し用の真空ポートを準備し、取り出した CSR を Martin-Pupplet 干渉計を使って測定し、そのスペクトルを求める実験を行っている。この手法を使って、試料に CSR を照射しミリ波領域の吸収分光実験を行うことが可能である。

#### 参考文献

- [1] N. Nishimori et al., NIM A475, 266 (2001).
- [2] R. Hajima et al., Proc. of the 26th international FEL conference (FEL2004), 301 (2004).
- [3] H. Iijima et al., Proc. of the 2nd annual meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 793 (2005).
- [4] E. Minehara et al., Proc. of 2006 annual meeting of the Atomic Energy Society of Japan, 122 (2006).
- [5] T. Takahashi et al., Proc. of the 2nd annual meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 498 (2005).
- [6] 羽島良一, 放射光 14, 323 (2001).
- [7] G.R. Neil et al., NIM A 557, 9 (2006).
- [8] R. Hajima and R. Nagai, PRL 91, 024801 (2003).



## 4.7 Laser-acceleration of high energy protons: study of acceleration mechanisms and beam handling

J. Fuchs, P. Antici, L. Romagnani, E. Brambrink, P. Audebert

Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, UMR 7605 CNRS-CEA-Ecole Polytechnique-Univ. Paris VI,  
91128 Palaiseau, France

M. Borghesi, C. Cecchetti

School of Mathematics and Physics, The Queen's University of Belfast, Belfast BT7 1NN, UK

O. Willi, T. Toncian, A. Pipahl

Institut für Laser und Plasma Physik, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, Universitätsstrasse 1, D-40225  
Düsseldorf, Germany

P. Mora, T. Grismayer

Centre de Physique Théorique, UMR 7644 CNRS-Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

E. d'Humieres, E. Lefebvre

DPTA, CEA-DIF, Bruyères Le Chatel, France

H. Pepin

INRS-EMT, 1650 bd. L. Boulet, J3X1S2 Varennes, Quebec, Canada

In the last few years, intense research has been conducted on laser-accelerated ion sources and their applications. These sources have exceptional properties, i.e. high brightness and high spectral cut-off, high directionality and laminarity, short burst duration. We have shown [T. Cowan et al., Phys. Rev. Lett. **92** 204801 (2004)] that for proton energies  $>10$  MeV, the transverse and longitudinal emittance are respectively  $<0.004$  mm-mrad and  $<10^{-4}$  eV-s, i.e. at least 100-fold and may be as much as  $10^4$ -fold better than conventional accelerators beams. Thanks to these properties, these sources allow for example point-projection radiography with unprecedented resolution. They also open new opportunities for ion beam generation and control, and could stimulate development of compact ion accelerators for many applications. Energy increase and beam handling are now major challenges that these ion source face. We have been studying scaling laws for the maximum energy of laser-accelerated protons. This has allowed us to show that there is an optimum in the laser pulse duration of  $\sim 200$  fs-1 ps, with a needed laser energy level of 30 to 100 J, in order to achieve e.g. 200 MeV energy protons. We have also performed first experiments exploring the interaction of ultra-high contrast laser pulses with ultra-thin targets (10s of nm thick) and observed a significant energy increase of the ions in this regime as compared to using thicker foils ( $>a$  few  $\mu$ m thick) interacting with a laser having standard ASE. Finally, as for such applications beam control is an essential requirement, we have developed an ultra-fast laser-triggered micro-lens that allows tuneable control of the beam divergence as well as energy selection.

**Keywords:** Laser, ultrashort pulse, high-intensity laser-matter interaction, ion acceleration, low emittance beams, pulsed source of ions

### 1. Introduction

Laser-acceleration of intense, collimated beams of multi-MeV protons [1] is a fast growing area of high-field science that is very promising for a number of applications. The generation of such beams has been only recently achieved since it requires extremely high laser intensities that have been made available in recent years thanks to the fast progress of short-pulse lasers [2]. The first observations of such proton beams were independently published in 2000 by three research groups [3,4,5]. In each of these experiments a well-defined proton beam was observed in the forward direction (with respect to the laser pulse) with a roughly exponential spectrum and mean energy in the MeV range and a high-energy cut off in the 10-55 MeV range. The beam was



generally emitted with a low divergence angle (max.  $\sim 20^\circ$ ), with the most energetic protons having the lowest divergence angle, along the normal to the rear target surface. The accelerated beam is composed mostly of protons originating primarily from contaminant layers of water vapor and hydrocarbons on the target surface. The mechanism accelerating the highest energy ions is as follows [6]: first, electrons are accelerated at the front side by the laser pulse and penetrate the target. Leaving the target at the rear side, they set up a huge electric field which, in essence, is pointed normal to the target rear surface. By this field surface atoms are field ionized and accelerated.

Due to its pulsed nature (the duration at the source is of the order of  $\sim$ ps), its extremely high beam quality [7,8], the high number of protons ( $10^{11}$ - $10^{13}$  ions in a single bunch) that can be produced and the possibility to tailor the spectrum [9,10,11] and the beam divergence [11,12], the laser-proton source could prove useful for applications. Energetic proton beams are already applied for high-resolution charged-particle radiography [13]. A potential application could be to use the proton beam to ignite [14] pre-compressed capsules in the “Fast Ignitor” (FI) [15,16] scenario of inertial confinement fusion or, in a broader perspective, to produce warm-dense matter [12]. Indeed, thanks to their narrow energy deposition range (the so-called “Bragg peak”), protons are well-suited to deposit their energy in a small volume before any expansion of the heated material takes place. Other perspectives include high-brightness injectors for accelerators [8], and sources for proton therapy [17,18,19] or radioisotope production [20].

Since the first observations reported in 2000, particular attention has been devoted to the exceptional accelerator-like spatial quality of the beams, and current research focuses on their optimisation (energy, divergence, spectrum) for use in a number of groundbreaking applications. In this paper, we will first present the work we have been performing in determining simple scaling laws for the maximum energy of protons accelerated from thin metal foils by ultra-intense lasers [21]. Scaling laws are necessary to guide technological development of lasers in the right direction if one wants to go towards energy increase of the ions. Such energy increase is a major challenge for laser-acceleration; aside from applications like ICF studies, the very high ion energy beam generation with compact lasers could indeed offer prospects in medical applications like hadron therapy. Then, we will present experimental results testing a scheme for energy increase of the protons by using ultra-thin targets interacting with ultra-high contrast pulses. Finally, we will present a micro device able to focus and energy select protons out of the broad-band and divergent beam produced at the source [11].

## 2. Scaling laws governing the maximum energy of laser-accelerated protons

The determination of scaling laws is a necessary step to determine which laser or target parameters are the most important or optimum in order to go towards a significant energy increase of the accelerated protons. We have therefore conducted a series of experiments, measuring the proton beam maximum energy and energy conversion efficiency as a function of varying laser and target parameters (including pulse duration and intensity, and target thickness) [21].

The experiments were performed using the 100 TW laser at the Laboratoire pour l’Utilisation des Lasers Intenses (LULI) working at  $1.057\ \mu\text{m}$ , and the Atlas laser at the Max-Planck Institut für Quantenoptik working at  $0.8\ \mu\text{m}$ . Both lasers operate in the chirped pulse amplification (CPA) mode [22] where an initial short pulse of low energy is chirped temporally to allow amplification while minimizing spectral phase distortions to be recompressed in the end. On both facilities, dynamic wave front correction is applied to ensure optimum and reproducible focusability at every shot [23]. Having a constant laser focus is crucial in order to have a good reproducibility of the proton beam. The focal spots full widths at half maximum (FWHM) are close on both facilities:  $6\ \mu\text{m}$  (LULI) and  $5\ \mu\text{m}$  (Atlas) as measured directly by imaging diagnostics collecting light after focusing, as illustrated in Figure 1. Overall, we varied the laser energy ( $E$ ) from 0.2 to 60 J, the laser pulse duration ( $\tau$ ) from 150 fs to 10 ps, and the on-target intensity ( $I$ ) from  $10^{18}$  to  $6 \times 10^{19}\ \text{W.cm}^{-2}$ . The laser energy was varied by using calibrated attenuators positioned before compression, i.e. to attenuate the chirped pulse. The pulse duration was varied by changing the distance between the gratings in the compressor chamber, and was measured by second-order autocorrelation. On both facilities, the energy that precedes the main pulse is controllable within some limits by the use of fast switching Pockels cells. For this study, we kept the conditions constant and similar between the two lasers, i.e. a maximum ASE (laser amplified spontaneous emission) level of  $\sim 1\text{-}5 \times 10^{12}\ \text{W.cm}^{-2}$ , for a duration of 1.5-2 ns

as measured by a fast photodiode, with the main pulse rising from -20 ps, as measured by third-order autocorrelation (see Figure 1). The measurement of the proton beam is performed using radiochromic film (RCF) dosimetry media [24] directly exposed to the beam, as shown in Figure 1.a, and Thomson parabola equipped with CR-39 [25].

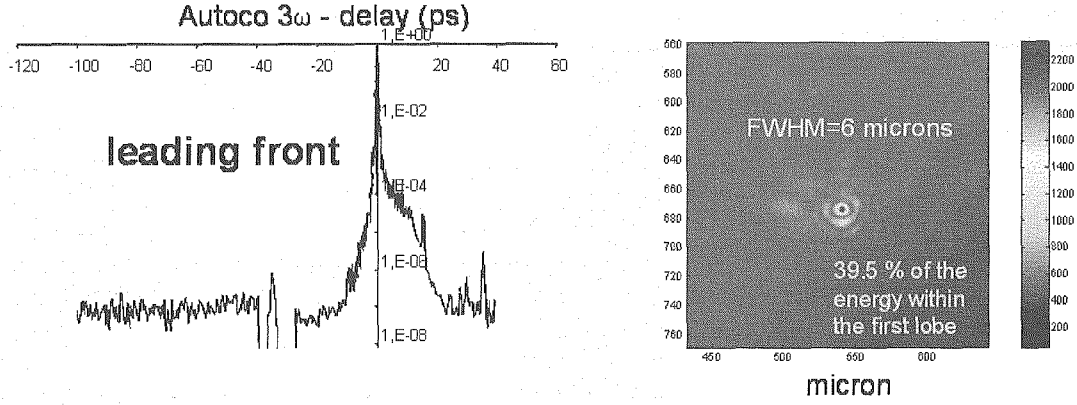


Figure 1: (left) high-dynamic range temporal profile of the LULI laser pulse as measured at 10 Hz/1 mJ level in the output of the regenerative amplifier (note that the ASE level is not significantly modified by amplification). (right) focal spot as measured through focus at full power with adaptive optics correcting the wave front.

The data sets were compared with a simple estimate of the maximum energy that can be gained by the accelerated ions based on a self-similar, isothermal, fluid model, e.g. Eq. 10 of Ref. [26]:

$$E_{\max} = 2 \times T_{\text{hot}} \times [\ln(t_p + (t_p^2 + 1)^{1/2})]^2 \quad (1)$$

where  $t_p = \omega_{pi} \times t_{\text{acc}} / (2 \times \exp(1))^{1/2}$  and  $\omega_{pi} = [(e^2 \times n_{e0}) / (m_i \times \epsilon_0)]^{1/2}$  with  $e$  the electron charge,  $t_{\text{acc}}$  the acceleration time, and  $T_{\text{hot}}$  and  $n_{e0}$  the temperature and density of the hot electrons that drive the rear-surface expansion. This model modifies previous models of freely expanding plasmas [27] to the case of a sudden burst of energetic electrons coming from the target inside. As the model cannot take into account the progressive transfer of energy from the fast electrons to the ions and the decrease of the accelerating charge separation field, we use a crude approximation, i.e. we fix the acceleration time. Using PIC simulations we have observed that, although not physically accurate, this approximation is reasonable. As in most of the experiments, we have a preplasma in front of the target due to laser energy impinging on the target before the main pulse. In this case, the electron temperature  $T_{\text{hot}}$  is found numerically and experimentally to be given by the ponderomotive potential ( $T_p = m_e c^2 ([1 + I \lambda_{\mu m}^2 / 1.37 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2} \mu m^2]^{1/2} - 1)$  where  $m_e$  is the electron mass,  $I$  is the laser power density (“intensity”) in  $\text{W cm}^{-2}$  and  $\lambda_{\mu m}$  is the laser wavelength in microns) of the laser [28,29]. We now assume that  $n_{e0}$  corresponds to a number of accelerated electrons at the target front surface,  $N_e$ , that are ballistically sprayed in the target. We can express  $N_e = fE/T_p$  where  $f$  is the fraction of laser light that is absorbed into the electrons. This fraction  $f$  depends on the laser incident intensity as follows:  $f = 1.2 \times 10^{-15} I^{0.74} [\text{W cm}^{-2}]$  with a maximum of 0.5 [30,31]. Since the  $N_e$  electrons are accelerated over the laser pulse duration and spread over the surface of the sheath  $S_{\text{sheath}}$ , we have  $n_{e0} = N_e / (c \tau S_{\text{sheath}})$  with  $S_{\text{sheath}} = \pi(r_0 + d \times \tan \theta)^2$ . The latter depends on  $\theta \sim 25^\circ$ , the half-angle of the hot electron inside the target [32],  $d$  the target thickness, and  $r_0$  the initial radius of the zone over which the electron are accelerated at the target front-surface, i.e. the laser spot. Finally, an effective “acceleration time”,  $t_{\text{acc}}$ , has to be defined. Otherwise, because of its isothermal hypothesis, the fluid model of Ref. [26] would predict endless proton acceleration.

Comparing the simple scaling laws to all our data sets, we have found they compare favourably when using an effective acceleration time of  $\sim 1.3$  times the laser pulse duration. This finding is supported by two dimensional PIC simulations [21]. To extend further the use of the scaling laws, when comparing it to experimental data obtained for very short pulse durations (shorter than the 150 fs minimum duration we could

explore in our experiments), we postulate [33] that the acceleration time is no longer proportional to the laser pulse duration but tends towards a constant value. This is justified as, even for very short pulses, there is a minimal time for the energy transfer from the electrons to the ions that needs to be taken into account. Also, for low laser intensities, this acceleration time has to be increased since the expansion is slower. In summary, we use  $t_{\text{acc}} = \alpha \times (\tau_L + t_{\text{min}})$  where  $t_{\text{min}} = 60$  fs,  $\tau_L$  is the laser pulse duration, and  $\alpha$  varies linearly from 3 at the intensity  $2 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> to 1.3 at  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> and stays constant at 3 for higher intensities.

An example of the good match between the simple model and the experimental data is shown in Figure 2 where the measurement and the model are represented for the evolution of the maximum proton energy with target thickness. As shown in Figure 2, the thinner the target, the higher the maximum proton energy. If the target is too thin ( $\leq 8$   $\mu\text{m}$  for the parameters of Figure 2), the high-energy proton beam disappears, i.e. its energy falls abruptly. This is consistent with the fact that for too thin targets, the rear-surface is perturbed by the shock wave launched  $\sim 1$  ns before the main pulse by the ASE [34]. For thicker targets, this slow shock wave preheating does not have the time to reach the rear surface before the sheath formation. Going to thinner targets requires to reduce the ASE level, however this can also be detrimental because the absorption in hot electrons is less efficient in sharp gradients than in long gradients.

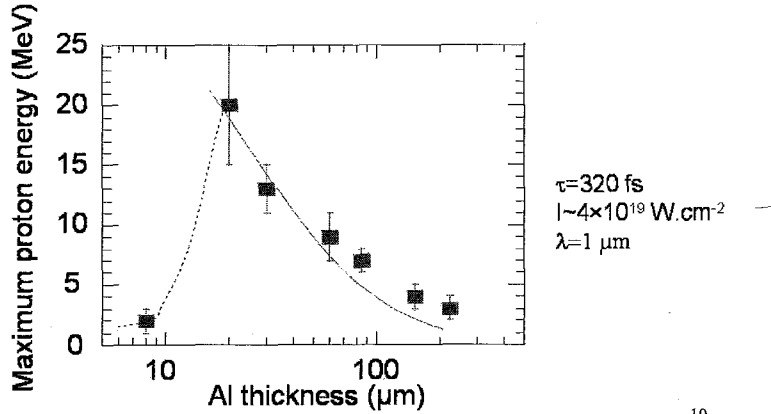


Figure 2: Maximum proton energy for similar laser conditions ( $\tau=320$  fs and  $I=4 \times 10^{19}$  W.cm<sup>-2</sup>) and various Al foil thicknesses. Dots represent experimental data and the solid line calculations using the fluid model with the laser same laser parameters. Error bars on the proton energy represent the shot to shot fluctuation cumulated with the simulated measurement uncertainty in the detector.

We have also found a good agreement between the isothermal fluid model and the measurements when studying the dependence of the proton beam on laser energy (keeping the pulse duration constant) or laser pulse duration (keeping the laser intensity or laser energy constant) [21].

For laser or target conditions other than the ones we did explore experimentally, we still find a good agreement between the model and published results from other groups. Table 1 shows a comparison of calculations of the maximum proton energies as computed from the simple fluid model (i.e. for protons accelerated from the target rear side) compared to experiments performed in a wide range of laser and target conditions (in particular for short pulse durations and/or low irradiances). In addition, we have also computed the maximum proton energy that would be produced for the protons accelerated at the laser-irradiated target front surface. For these, their maximum velocity is given by twice the recession speed of the plasma surface [35,36]. In the case of total back reflection of the laser beam (i.e. when the efficiency of the laser piston is maximum), this recession speed is expressed as [37]:

$$\frac{u_s}{c} = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{n_c}{n_e} \frac{Z m_e}{M_i} a_0^2} \quad (2)$$

where  $n_e$  is the electron density at the reflection point, i.e.  $n_e = \gamma n_c$  [38] where  $\gamma$  is the Lorentz factor of an

oscillating electron in the laser field, i.e.  $\gamma = (1 + a_0^2)^{1/2}$ , with  $a_0^2 = (p_{osc}/mc)^2 = I \lambda_\mu^2 / (1.37 \cdot 10^{18})$  where  $I$  is the laser intensity in  $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$  and  $\lambda_\mu$  is the laser wavelength in microns. Therefore  $E_{\text{max/front}} = 2 \times M_i \times u_s^2 = Z m_e c^2 a_0^2 / \gamma$ .

In summary, Table 1 shows that rear-surface acceleration of protons is predominant in producing the highest energy protons, and that the simple fluid model fits quite well the measurements in a wide range of parameters.

Reference	Intensity ( $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ )	Target thickness ( $\mu\text{m}$ )	$\tau_{\text{laser}}$ (fs)	Focal spot FWHM ( $\mu\text{m}$ )	$E_{\text{max}}$ model (MeV)	$E_{\text{max/front}}$ (MeV)	Measured $E_{\text{max}}$ (MeV)
[39]	$2 \cdot 10^{19}$	10	40	10	2.7	1	3
[40]	$6 \cdot 10^{19}$	6	40	4	9.2	2.5	10
[41]	$2 \cdot 10^{18}$	5	55	7	0.47	0	0.5
[41]	$6 \cdot 10^{18}$	5	55	7	1.47	0.4	1.2
[42]	$7 \cdot 10^{18}$	5	60	5.2	1.4	0.5	1.3
[43]	$2.7 \cdot 10^{18}$	3	70	7.5	1	0.17	0.88
[41]	$2 \cdot 10^{18}$	5	170	7	1.15	0	1.15
[21]	$4 \cdot 10^{19}$	20	320	6	19	2.2	20
[4]	$3 \cdot 10^{20}$	100	500	9	46	6.3	56
[44]	$2 \cdot 10^{20}$	100	700	7	46	4.7	42
[21]	$10^{19}$	25	800	6	8	0	10.2
[21]	$2 \cdot 10^{18}$	25	10000	6	9	0	9.5

Table 1: comparison of maximum proton energy as reported from various experiments and computed by the simple model. To compute the front side-accelerated proton energy, the slowing down in the target of the protons is taken into account. Note that in these estimates of front-side accelerated protons we do not take into account a boosting that could take place at the rear surface due to the sheath fields. For laser pulse durations up to 170 fs, the laser wavelength of the reported experiments is 0.8  $\mu\text{m}$ . Otherwise, it is 1  $\mu\text{m}$ . For each calculation, we use the laser focal spot size as given in each reference.

The validated model is then applied to extrapolate the laser conditions necessary to increase significantly the proton beam energy, in particular to  $\sim 200$  MeV, as required by proton therapy. Indeed, before being able to envision such an application using laser-accelerated beams, these have to reach the necessary energy to penetrate in several cm of tissue (25 cm at maximum which corresponds to 200 MeV protons). Results of this extrapolation are shown in Figure 3. There is indication of an optimum for the pulse duration in the range  $\sim 200$  fs- 1 ps in order to take full advantage of the proton acceleration time. These extrapolation should be taken with caution as purely based on the rear-surface acceleration mechanism, while other mechanisms, such as ion shock acceleration [45,46], may produce equal or higher energy ions as the intensity of the laser pulse increases above  $10^{21} \text{ W}/\text{cm}^2$ . According to simulations, for intensities ranging from  $10^{21}$  to  $10^{23} \text{ W}/\text{cm}^2$ , the interaction exhibits a continuous transition from the rear-surface acceleration/shock acceleration regimes to another regime where the radiation pressure of the electromagnetic wave is directly converted into ion energy via the space-charge force related to the displacement of the electrons in a thin foil [47]. In this regime the accelerated ions form a nearly flat thin plate with high density and energies in the GeV region.

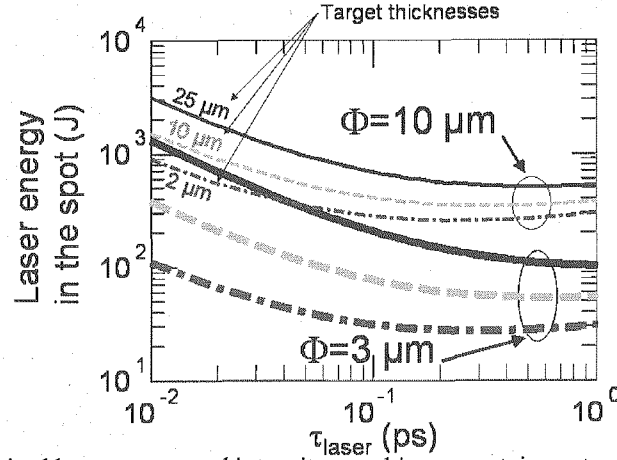


Figure 3: Projections of required laser energy and intensity to achieve a certain proton maximum energy using the adjusted fluid model: required laser energy in the focal spot to achieve 200 MeV as maximum proton energy for various laser pulse durations and target thicknesses (solid line: 25  $\mu\text{m}$ , dashed line: 10  $\mu\text{m}$ , dotted line: 2  $\mu\text{m}$ ). The thinner lines are for a 10  $\mu\text{m}$  focal spot, the thicker for a 3  $\mu\text{m}$  focal spot.

### 3. Proton acceleration from ultra-thin targets

Another path for energy increase of the protons may be provided by the relativistically transparency regime where simulations predict extremely efficient proton acceleration [46,48]. In this scheme, the laser pulse interacts with the whole volume of a very thin, dense target and this can accelerate the whole electron population efficiently. This however requires ultra thin targets and therefore ultrahigh contrast pulses, so that the peak of the pulse interacts with an unperturbed target. Preliminary experiments, performed at the 100 TW LULI facility, accessing such interaction regime were carried out using laser pulses with contrast improved by the use of two consecutive plasma mirrors, as shown in Figure 4. The laser pulse was irradiating at 45° the plasma mirrors, i.e. anti-reflection coated glass slabs, in an intermediate field position before focus at a peak irradiance of  $\sim 90 \text{ J/cm}^2$ . All energy preceding the main pulse was transmitted through the slabs while only the high-intensity main peak, ionizing the surface of the slabs, could be reflected towards the target [49].

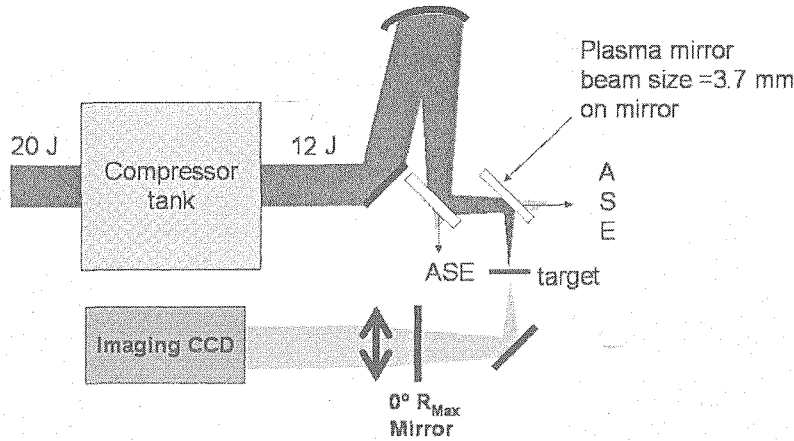


Figure 4: Experimental set-up for the acceleration of protons from ultra-thin targets using contrast enhanced laser pulses.

As shown in Figure 5 (right), the focal spot FWHM as focused by the off-axis parabola without plasma mirrors was 8  $\mu\text{m}$ . The measurement was done at full laser energy, using a 0°, 99.9 % reflectivity mirror positioned in front of the collecting lens with a larger aperture than that of the beam. This way, only

less than 10 mJ went through the lens, ensuring that no non-linear spurious effect occurs in the imaging optics. Figure 5 (left) shows that the quality of the focal spot measured at full energy is worse when plasma mirrors are used, which suggests, because the fluence was too high on one or both of them, that they were triggered too early. When this happens, their surface motion before the arrival of the main pulse may induce distortions of the laser beam wave front leading to imperfect focusing. The same problem would also lead to a too high absorption of the laser in the plasma streaming from the mirrors. And indeed, calorimetry measurements showed that there was only  $\sim 1$  J of energy at focus after the two plasma mirrors for  $\sim 10$  J incident on the plasma mirrors. As a consequence, the loss of laser energy associated with the use of the mirrors and the worsened focal spot both reduced the peak laser intensity to  $10^{18} \text{ W.cm}^{-2} \cdot \mu\text{m}^2$  when using the plasma mirrors.

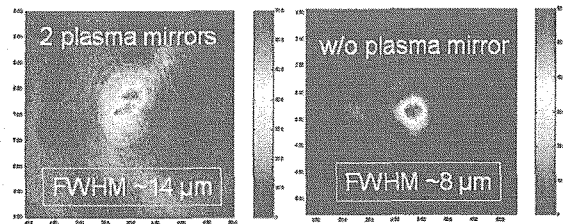


Figure 5: images of the focal spot on target measured at full laser energy with (left) and without (right) two plasma mirrors before focus.

However maximum proton energies  $\sim 8$  MeV could still be obtained using 30 to 100 nm thick targets, as shown in Figure 6. This is to be compared to  $<1$  MeV energy achieved for the same pulse duration and intensity in the standard regime of rear-surface acceleration, i.e. using thicker targets ( $5 \mu\text{m}$ ). This result shows the potential of such interaction regime to increase the maximum proton energy.

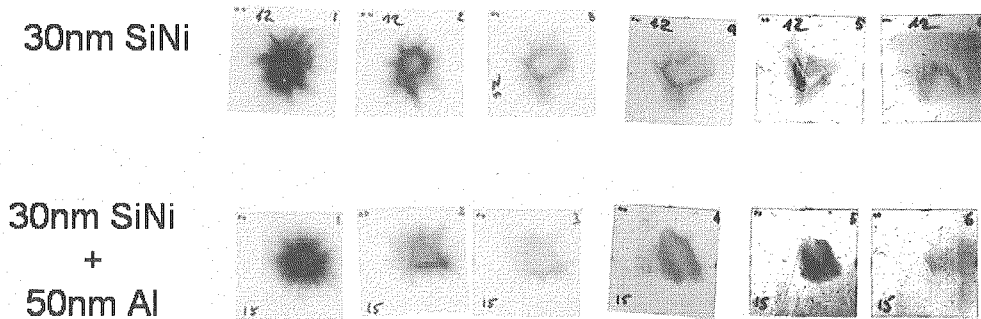


Figure 6: Stack of RCF showing the 2D angular distribution of the proton beam accelerated from a 30 nm Si target (top) and a 30 nm Si coated with 50 nm of Al.

#### 4. Beam handling

An important requirement for many applications is to be able (i) to refocus the beam on a target or to collimate it to transport it over large distances, and (ii) to select a sufficiently small energy spread  $\Delta E/E \ll 1$  out of the energy spectrum of the beam.

Focusing at short distances (a few 100s of microns) has been achieved by curving the target surface in order to focus down the protons to a tight spot [12]. For energy selection, there are already several options. First, it has been proposed to use combinations of conventional deflecting magnets with selecting apertures to pick only a fraction of the broad initial energy distribution that is subsequently refocused for dose delivering [50]. Research at JAEA-KPSI (Japan) is exploring phase-space rotation. Alternatively, it is also possible to achieve energy selection by using double layer targets with a heavy ion layer followed by a thin proton layer. In this case, simulations [51] have shown that a small energy spread can be achieved if the

proton layer is thin enough so that it is depleted before the accelerating field decreases. This scheme, recently demonstrated using micro-structured targets [9,10], however requires complex target engineering.

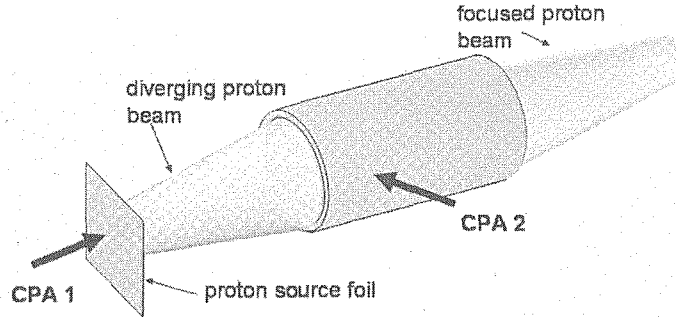


Figure 7: schematic of the proton micro-lens able to collimate and energy focus a fraction of a broadband proton beam emitted from a source foil.

A different and interesting option to solve the two issues mentioned above simultaneously is to use an ultrafast laser-triggered micro-lens [11]. This device provides tuneable, simultaneous focusing and energy selection of MeV proton beams. The principle of operation, as illustrated in Figure 7, is rather simple: the micro-lens is a hollow cylinder that is irradiated by an auxiliary laser pulse (CPA2). This pulse injects relativistic electrons through the cylinder's wall. These electrons spread evenly on the cylinder's inner walls and initiate hot plasma expansion. The radially symmetric transient electric fields associated with the expansion can act to focus a fraction of the broadband proton beam (the fraction that transit at the time the device is switched) along the axis of the cylinder. This broadband beam is the one accelerated by CPA1 from the source foil.

Its operation was demonstrated in an experiment also carried out at LULI, still employing the 100 TW laser providing two independently compressed CPA pulses. One of the two pulses (irradiance  $I = 4 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$ ) was used to accelerate a high-current, diverging beam of up to 15 MeV protons from a  $10 \mu\text{m}$  thick Au foil target. The other pulse ( $I = 3 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$ ) was focused onto the side of a hollow cylinder. The proton beam from the first foil was directed through the cylinder and was then diagnosed with a stack of Radiochromic Films (providing a profile of the energy resolved beam cross section) or with a magnetic spectrometer (providing a high resolution energy spectrum).

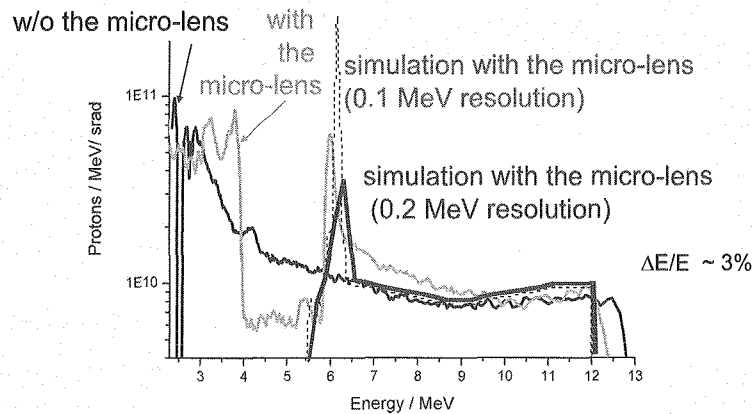


Figure 8: Proton spectra showing the energy selection capability of a plasma-based, laser-triggered proton micro-lens [11].

This device that can selectively focus a part of the proton beam allows for tunable energy selection of the energy spectrum by positioning appropriate apertures downstream in the beam, as demonstrated in Figure 8. Depending on the transit time of the protons through the cylinder, energy components of the beam can be collimated or strongly focused, as illustrated in Figure 9. The data of Figure 8 shows clearly the energy selection capability of the micro-lens: due to selective collimation of the 6.25 MeV protons, these could be transmitted efficiently through the spectrometer slit (acting as an angular filter), and their density after the slit in the spectrally dispersed plane is enhanced as compared to the free-space expansion case. For this shot, the 6.25 MeV protons experienced the focusing fields for  $\sim 5$  ps before exiting the cylinder. Note that the energy spread is 0.2 MeV -limited by the spectrometer energy resolution- for the peak located at 6.25 MeV. By varying the optical delay between the laser beams, the location of this peak on the energy axis can be tuned selectively, while the width of the peak can be adjusted by modifying the source-to-cylinder distance.

Such relativistic laser-plasma device appear very suitable to achieve the required angular and spectral control of laser-accelerated ion beams since it can withstand large ion beam currents, can be switched over ps time scales, and can support large deflecting fields on micro-scales. It is therefore of interest not only for many of the proposed applications of laser-driven proton beams, but also for application as an ultrafast focusing/switching device for ion beams from conventional accelerators.

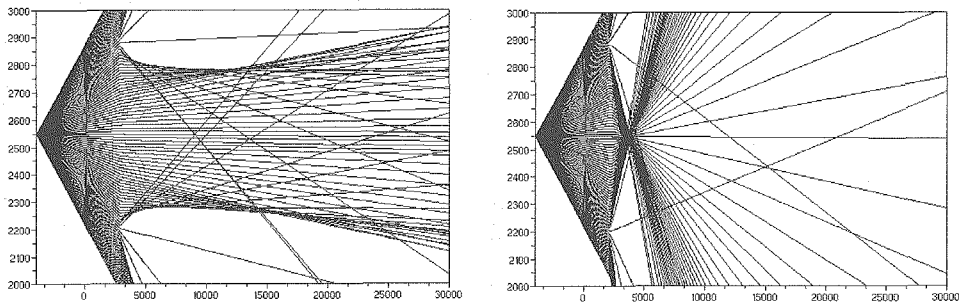


Figure 9: (left) Trajectories for 100 protons at 6.25 MeV propagated in a cylinder in conditions similar as those of Figure 8. The protons enter the cylinder 83 ps before it is triggered (i.e. they are still in the cylinder when it is triggered, although close to its end). These protons are clearly collimated and therefore induce a strong peak in the spectrum after having passed through the spectrometer slit. (right) same for 100 protons at 4.9 MeV. The protons enter the cylinder 64 ps before it is triggered (i.e. they are closer to the middle of the cylinder when it is triggered, so they see a stronger field than the 6 MeV protons along their path in the cylinder). As a consequence, these protons are actually focused tightly at a very short distance from the micro-lens exit plane and diverge also strongly after this focusing point. This explains why there is a dip in the spectrum at this energy and below (see Figure 8). Note that for both graphs the two axes (in units of microns) are not scaled similarly for clarity.

## 6. Conclusions

Research on laser-driven ion sources has grown at a phenomenal pace since the first experiments reporting multi-MeV proton acceleration from laser-irradiated foils. It is motivated by the exceptional spatial and temporal qualities of the beams, the high-energy and high particle numbers achievable. Work is undergoing worldwide aimed at the optimization and control of the acceleration mechanism and of the beam properties. Aims of particular interest are the increase of the energy of laser-driven protons and the achievement of beams with narrow energy band. We have shown here recent developments and perspectives in these areas.

## Acknowledgements

The authors thank M. Kaluza, J. Schreiber, V. Malka, M. Manclossi, and S. Meyroneinc for their participation in part of their experiments. They also acknowledge support by grant E1127 from Region Ile-de-France, EU program HPRI CT 1999-0052, UNR grant DE-FC08-01NV14050, DFG TR18 and GK1203,



the QUB-IRCEP scheme and DAAD.

## References

- [1] M. Borghesi et al., *Fusion Science and Technology* **49**, 412 (2006).
- [2] G. Mourou, T. Tajima, and S. Bulanov, *Rev. Modern Phys.* **78**, 309 (2006).
- [3] E. Clark et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 670 (2000).
- [4] R. Snavely et al., *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2945 (2000).
- [5] A. Maksimchuk et al., *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4108 (2000).
- [6] S. Hatchett et al., *Phys. Plasmas* **7**, 2076 (2000); M. Allen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 265004 (2004); J. Fuchs *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 045004 (2005).
- [7] M. Borghesi et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 055003 (2004).
- [8] T. Cowan et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 204801 (2004).
- [9] B. M. Hegelich et al., *Nature* **439**, 441 (2006).
- [10] H. Schwoerer et al., *Nature* **439**, 445 (2006).
- [11] T. Toncian et al., *Science* **312** (21 April 2006) 410.
- [12] P. Patel et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 125004 (2003); R. Sonobe et al., *Phys. Plasmas* **12**, 073104 (2005); R. Snavely et al., *Proc. of the IFSA 2003 conference*, American Nuc. Soc., p. 349, ISBN 0-89448-686-1.
- [13] A. Mackinnon et al., *Rev. Sci. Instr.* **75**, 3531 (2004).
- [14] M. Roth et al., *Phys. Rev. Lett.* **86**, 436 (2001).
- [15] M. Tabak et al., *Phys. Plasmas* **1**, 1626 (1994).
- [16] M. Temporal, J. Honrubia, and S. Atzeni, *Phys. Plasmas* **9**, 3098 (2002).
- [17] A. Boyer, M. Goitein, T. Lomax, and E. Pedroni, *Physics Today* (Sept. 02 issue) 34.
- [18] S.V. Bulanov et al., *Physics Letters A* **299**, 240 (2002).
- [19] E. Fourkal et al., *Med. Phys.* **29**, 2788 (2002).
- [20] M. Santala et al., *Appl. Phys. Lett.* **78**, 19 (2001).
- [21] J. Fuchs *et al.*, *Nature Physics*, **2**, 48 (2006).
- [22] D. Strickland, and G. Mourou, *Opt. Commun.* **56**, 219 (1985).
- [23] B. Wattellier, et al., *Opt. Lett.* **29**, 2494 (2004); H. Baumhacker, et al., *Opt. Lett.* **27**, 1570 (2002).
- [24] N. V. Klassen, et al., *Med. Phys.* **24**, 1924 (1997).
- [25] H.W. Lefevre, R.M. Sealock, and R.C. Connolly, *Rev. Sci. Instr.* **53**, 1221 (1982).
- [26] P. Mora, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 185002 (2003).
- [27] A.V. Gurevich, L.V. Pariiskaya, and L.P. Pitaevskii, *Sov. Phys. JETP* **22**, 449 (1966).
- [28] S. Wilks, et al., *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1383 (1992).
- [29] G. Malka, and J.L. Miquel, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 75 (1996).
- [30] M. Key, et al., *Phys. Plasmas* **5**, 1966 (1998).
- [31] T. Feurer, et al., *Phys. Rev. E* **56**, 4608 (1997).
- [32] J. Fuchs, et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 255002 (2003).
- [33] E. d'Humieres et al., in preparation.
- [34] A.J. Mackinnon, et al., *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1769 (2001).
- [35] J. Denavit, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3052 (1992).
- [36] A. Pukhov, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3562 (2001).
- [37] S. C. Wilks, W. L. Kruer, M. Tabak, and A. B. Langdon, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1383 (1992).
- [38] J. Fuchs et al., *Phys. Plasmas* **6**, 2569 (1999) and references therein.
- [39] J. Schreiber et al., *Phys. Plasmas* **13**, 033111 (2006).
- [40] S. Fritzler et al., *App. Phys. Lett.* **83**, 3039 (2003).
- [41] Y. Oishi et al. *Phys. Plasmas* **12**, 073102 (2005).
- [42] T. Fujii et al. *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1524 (2003).
- [43] A. Fukumi et al., *Phys. Plasmas* **12**, 100701 (2005).
- [44] P. McKenna et al., *Phys. Rev. E* **70**, 036405 (2004).

- [45] L. Silva et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 015002 (2004).
- [46] E. d'Humieres et al., Phys. Plasmas **12**, 062704 (2005).
- [47] T. Esirkepov et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 175003 (2004).
- [48] E. Fourkal et al., Med. Phys. **29**, 2788 (2002); Q. Dong et al., Phys. Rev. E **68**, 026408 (2003); T. Esirkepov, M. Yamagiwa, and T. Tajima, Phys. Rev. Lett. **96**, 105001 (2006); L. Yin et al., Laser and Particle Beams **24**, 291 (2006).
- [49] P. Monot et al., Opt. Lett. **29**, 893 (2004).
- [50] E. Fourkal et al., Med. Phys. **30**, 1660 (2003).
- [51] T. Esirkepov et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 175003 (2002).



#### 4.8 Proposed Development of Novel Diagnostics for Intense, Ultrafast Laser-Plasma Experiments at JAEA-KPSI

*Paul R. Bolton and Roman Tatchyn,  
Stanford Linear Accelerator Center, Stanford University, California  
and*

*Yuji Fukuda, Masaki Kando, Izuru Daito, Jinglong Ma, Liming Chen,  
Alexander Pirozhkov and Toshiki Tajima,  
Kansai Photon Science Institute,  
Japan Atomic Energy Agency, Japan*

##### 1. Introduction:

Development of new diagnostics is critical for future laser-plasma accelerators, laser-driven light sources and for xray FELs. Recent laser wakefield electron acceleration developments and novel beam-based light source schemes (such as free electron lasers) obviate the need for next generation ultrafast diagnostics, capable of temporal resolution of a few femtoseconds (and in some cases attoseconds) for laser pulses (high order harmonics), x-ray pulses and electron bunches. Single shot detection capability in noninvasive and parasitic modes is also important.

Alterations of laser pulse spectra and the associated dynamics can be informative diagnostics. The portion of a high intensity laser pulse that is transmitted through a self-induced underdense plasma (such as in laser wakefield acceleration, LWFA schemes) carries the effects of plasma processes it has experienced. A distinction between the self-modulated laser wakefield (SMLWF) acceleration regime and the forced laser wakefield (FLWF) acceleration regime is in the spectral signature of the transmitted ir laser pulse. The former regime generates sidebands from stimulated Raman forward scattering (SRS-F) and the latter exhibits general spectral broadening that evidences ir laser pulse compression. Transmitted spectral effects can diagnose these acceleration regimes.

Existing noninvasive electro-optic (EO) schemes for detection of ultrashort electron bunches are limited by material properties to temporal resolution at the 50-100 femtosecond level. While timing jitter at conventional accelerators is of this order (or greater), single bunch longitudinal profile measurements can require improvement of at least an order of magnitude. A new EO technique is described here which monitors enhancement and associated dynamics of spectral components in a probe pulse.

Three correlation schemes for detecting ultrashort xray pulses are described. Two-photon absorption in tailored ion targets is proposed for scanning auto-correlation detection of coherent xray pulses where the ion species can be adjusted according to the xray photon energy. The well established xray/ir cross-correlation obtained with Auger and photoelectron energy spectra that are modulated by coincident ir laser pulses is summarized briefly. Finally, a novel single shot, xray/ir cross-correlation scheme based on ir group velocity dispersion in a plasma column is described.

## 2. Transmitted Laser Spectral Diagnostics:

Intense laser-plasma interactions rapidly establish strong wakefields for acceleration of plasma electrons[1]. Incident laser intensities are typically in the relativistic self-focusing regime (which requires only 10's mJ of pulse energy with target densities used at the KPSI-APRC facility). Significantly improved diagnostics are needed to understand, characterize, and possibly control the laser-induced plasmas and the accelerated electron bunches. For ultrashort electron bunch generation a good example concerns the distinction between the forced laser wakefield (FLWF) acceleration (short pulse) regime for which  $c\tau_{laser} < \lambda_p$  and the self-modulated laser wakefield (SMLWF) acceleration (longer pulse) regime for which  $c\tau_{laser} > \lambda_p$ . High brightness, high charge, low emittance, electron microbunches with significantly reduced energy spread (quasimonoenergetic) have been generated in both regimes using relatively compact experimental configurations [2]. A transition from one regime to the other can be affected by increasing the laser pulse duration and/or the plasma density.

Stimulated Raman Forward scattering (SRS-F) is a plasma instability in which spectral sidebands typical of the SMLWF regime evolve rapidly within the laser pulse duration with asymptotic gain [3]:

$$Gain \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi G}} \exp\{G\}; G \equiv \sqrt{8 \frac{P}{P_c} \frac{L}{L_R} \frac{\omega_p}{\omega_o}} (\omega_p \tau) \quad (1)$$

where  $\frac{P}{P_c}$  is the ratio of the peak laser power to the self-focusing power threshold,  $\frac{L}{L_R}$  is

the ratio of the plasma length to Rayleigh range, and  $\frac{\omega_p}{\omega_o}$  is the ratio of the plasma

frequency to the optical (ir) frequency. It is important to monitor the temporal growth of SRS-F satellites for a single laser pulse. Equally important is resolving the spectral dynamics of the transmitted laser pulse in the FLWF regime where Raman sidebands are suppressed and the overall laser pulse spectrum is simply broadened by the plasma on the ultrashort time scale as a consequence of ponderomotive electron 'blowout' driven by the laser intensity gradient. Shot-to-shot instabilities are typical of these new sources at this development stage and so, it is essential that these ultrafast diagnostics apply to single pulses.

In transmission, optical field ionization (OFI) induces 'blue' biased complex spectral structure that scales with the free electron growth rate according to [4]:

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx \frac{-1}{2cn_{crit}} \int_0^L \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{crit}}}} \left( \frac{dn_e}{dt} \right) dz < 0 \quad (2)$$

where  $\frac{n_e}{n_{crit}}$  is the ratio of the electron density to the critical plasma density and  $c$  is the vacuum light speed. Stimulated Raman forward scattering (SRS-F) can induce both 'red'

(Stokes) and ‘blue’ (anti-Stokes) spectral sidebands which appear as satellites spaced approximately by the plasma frequency. Rapid reduction in pulse duration is revealed as a general spectral broadening on both sides of the central frequency.

Examination of Stokes sidebands then mitigates some complexity introduced by the OFI-induced ‘blue’ structure. Satellites beyond a 10 % incident laser bandwidth are anticipated for plasma densities at least of order  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Under the KPSI-APRC conditions, the SRS-F growth can be a few efoldings (gain coefficient,  $G \sim \text{few}$ ). Intense, high density laser-plasma interactions can nonetheless also add considerable complexity to ‘red’ side of the laser central frequency [5]. In the short pulse (high plasma density) FLWF regime we expect to see the dynamics of SRS-F satellites replaced by those of overall spectral broadening.

In addition to the rapid onset of complex spectral structure, transmitted laser pulses can reveal reduced energy, enhanced divergence, degraded transverse profile uniformity and temporal profile modulations. With adequate transmitted laser pulse energy, frequency-resolved optical gating (FROG) can in principle resolve single pulse ultrafast spectral dynamics. The spotsize,  $w_o$  over which transmitted light must be collected depends on the transmitted fluence,  $J_{tran}$  and the single pulse energy requirement,  $\varepsilon_{frog}$  (for obtaining a single pulse FROG trace) according to:

$$w_o \geq \sqrt{\frac{2\varepsilon_{frog}}{\pi J_{tran}}} \quad (3)$$

$$\varepsilon_{frog}(\mu J) \approx \frac{(\Delta t \Delta \lambda)}{2^{n-5}}$$

Here,  $\Delta t$  is the pulse duration (FWHM) in femtoseconds,  $\Delta \lambda$  is the spectral bandwidth (FWHM) in nanometers and  $n$  is the camera resolution (number of bits). FROG provides the amplitude and phase history of single pulse spectra through the acquisition of a 2D FROG trace displaying the temporal dependence of spectral content [6]. We therefore measure the time-dependent optical field or ‘waveform’ of an optical pulse. This is equivalent to an oscilloscope operating at optical frequencies. By its design, FROG measures spectral dynamics. The 2D information is intuitively complete since it provides correlated resolution of conjugate variables, time and frequency.

Therefore transmitted laser spectral diagnostics can be considered in two phases; time-integrated observations followed by time-resolved observations. Time-integrated data can include transmitted pulse energy, spectra, divergence, transverse profile uniformity and polarization. The feasibility and appropriate setup for acquiring time-resolved data would be based on time-integrated results which are easier to acquire. For both phases, there is no need for a separate probe pulse. Addressing the broad bandwidths can be a significant experimental challenge.

### 3.0 Electron Bunch Diagnostic Development:

Bright electron bunches generated by wakefield acceleration in laser-induced plasmas can be of duration near 10 fsec. THz interferometry and electro-optic (EO) methods and have not yet achieved this level of temporal resolution. More specifically,

even with the thinnest possible crystals, EO methods do not exhibit resolution better than about 50-100 fsec due to frequency-dependent material constraints [7]. This includes the spectral-temporal [8], spatial-temporal (not discussed here) [9] and direct-temporal transcription EO schemes such as cross-correlation and FROGEO [10]. No techniques have yet been developed that are capable of electron bunch longitudinal profile measurement with temporal resolution at the few femtosecond level. In what follows, a generic description EO electron bunch detection using spectral observations is described and a new spectral technique is proposed.

In the Pockels electro-optic regime, the electron bunch field induces a linear birefringence in an anisotropic crystal. The Coulomb field,  $E_{bunch}$  of a single electron bunch is predominantly directed orthogonal to its momentum and given as:

$$E_{bunch}(s) \equiv E_z = \frac{\gamma Q e^{-\frac{s^2}{2\sigma^2}}}{\sqrt{2\pi} (4\pi\epsilon_0 r^2)} \equiv E_{bo} e^{-\frac{s^2}{2\sigma^2}}; \frac{r}{\sigma\gamma} \gg 1 \quad (4)$$

where the longitudinal space variable along the bunch is  $s$  ( $s = 0$  at the central peak),  $\sigma$  is the bunch extent,  $r$  is the perpendicular distance separating the EO interaction site and the electron beamline, and  $\gamma$  is the electron energy.  $E_{bunch}$  can typically be at the MV/m level for nanoCoulomb charge and  $r$  values of a few mm. Figure 1 illustrates a typical EO configuration in which transmitted probe spectra are monitored according to the spectral-temporal transcription scheme. The ir probe is focused in an anisotropic EO crystal between two crossed polarizers. One can select an optical bias (phase) such that in the absence of an electron beam, the probe energy is balanced between the ‘S’ and ‘P’ channels and the spectrometer provides time-integrated spectra. On arrival of an electron bunch (coincident with the ir probe) the bunch field,  $E_{bunch}$  induces a dynamic birefringence (via the Pockels effect) in the EO crystal (ZnTe for example) that alters the balance between ‘S’ and ‘P’ channels. In this standard case the ir probe bandwidth exceeds that of the bunch field and due to its chirp, establishes the necessary time-frequency correlation for the ‘transcription’ of spectral observation to temporal behaviour of the bunch. Limits for this will be addressed.

In the Pockels (linear) regime, the  $E_{bunch} \equiv E_{bunch}(ct \equiv s)$  dependence of the transmitted intensity signal,  $S_{Pockels}$  can then be written as:

$$S_{Pockels} \approx \left| 1 - \frac{\sin^2\left(\frac{\phi_o}{2} - \frac{\pi E_{bunch}}{2 E_\pi}\right)}{\sin^2\left(\frac{\phi_o}{2}\right)} \right| \approx \pi \left( \frac{E_{bunch}}{E_\pi} \right) \frac{\sin \phi_o}{1 - \cos \phi_o} \quad (5)$$

where  $E_\pi$  is the field level required to induce a  $\pi$  phase shift in the EO crystal and  $\phi_o$  is the optical bias. If  $\frac{E_{bunch}}{E_\pi} \approx 10\%$ , then  $S_{Pockels} \approx 30\%$ . Note that for electro-optic methods based on the Kerr Effect (i.e. birefringence scales nonlinearly with the bunch field) a

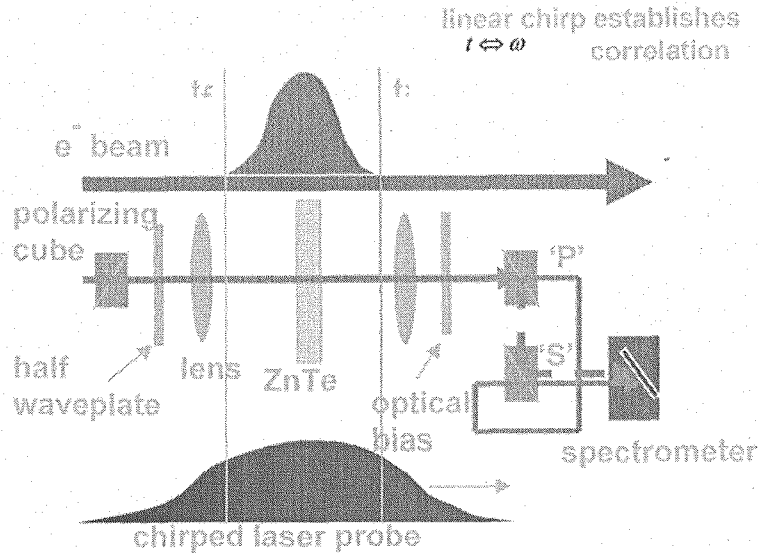


Figure 1. Typical EO configuration for spectral-temporal transcription.

similarly defined signal,  $S_{Kerr}$  scales with  $\left(\frac{E_{bunch}}{E_{\pi}}\right)^2$  and we therefore require  $\frac{E_{bunch}}{E_{\pi}}$  to be much higher.

Transcribing time-integrated spectral observations to temporal behaviour using the frequency-temporal correlation established by the probe chirp contains ambiguity because the required convolution has not been done [11]. This spectral-temporal

transcription is limited by the Fourier transform to a resolution,  $\delta t_{transform} \equiv \tau_o \sqrt{\frac{\tau_{probe}}{\tau_o}}$

which typically can be hundreds of femtoseconds. Improved temporal resolution is obtained (thus avoiding this Fourier transform limit) by going to direct-temporal transcription schemes in which the transmitted EO signal is observed with an ultrafast diagnostic such as cross-correlation or FROG and spectral-temporal correlation is ignored. Improved temporal resolution has been obtained using the cross-correlation detection of the transmitted EO by Berden and co-workers [10]. Although it has not yet been demonstrated largely due to pulse energy requirements, direct transcription with FROG (FROGEO) represents a more complete EO signal diagnostic that combines spectral and temporal resolution. FROGEO is robust and can improve overall polarization extinction when integrated with an EO setup. Narrower bandwidth probes (that are more easily transported to the EO site) can be used and the spectral dynamics of such probes can be revealed with potential for the distinction of wakefield dynamics.

Even with transmitted EO signal diagnostics of high temporal resolution (i.e. much smaller than probe or bunch durations) integrated EO effects within the EO crystal cannot be resolved. This is ultimately attributed to how well the ir probe and bunch fields are phase matched as they propagate across the crystal. The phase matching limit to temporal resolution,  $\delta t_{phasematch}$  is typically the largest one (hundreds of femtoseconds)

and includes both velocity-induced slippage and dielectronic resonance effects inside the crystal which are frequency dependent [12]. Other frequency-dependent material constraints on resolution are the variation of electro-optic coefficients and the Fresnel reflection and transmission coefficients at the surfaces. Also, resolution can be improved if the geometrical limitation,  $\delta t_{geom} \equiv \frac{2r}{\gamma c}$  is minimized to the few femtosecond level ( $r$  is

the perpendicular distance from the EO site to the electron beamline,  $\gamma$  is the beam energy, and  $c$  is the vacuum light speed). Best case EO temporal resolution for diagnosing single electron bunches is still in the 50-100 fsec range and significant improvement (by at least an order of magnitude) is needed.

We propose here a new technique that uses spectral bandwidth enhancement of the ir probe. This is an extreme case for which the electron bunch duration is significantly shorter than that of the ir probe pulse and has a significantly greater bandwidth. This situation can be common for future accelerators that can produce femtosecond electron bunches yet where the use of narrower band ir probes facilitates transport to the EO site. Spectral enhancement is anticipated to be well beyond the incident probe bandwidth. It can be monitored in time integration and time resolution phases. Time resolved spectral enhancement reveals the spectral dynamics of the electron bunch field's electro-optic effect on the ir laser probe. The paradigm shift here is the intuitive exploration of spectral dynamics, for which the signal amplitude can increase with decreasing bunch duration. Using the EO setting is convenient because it affords observation of THz frequencies as sidebands superimposed on an ir central (carrier) frequency.

This technique is considered for narrower band ir probe pulses for which the Fourier transform-limited duration can be several times greater than 10 fsec (i.e. narrower bandwidth than currently used with existing EO techniques). Low level chirp on the ir probe (for example that attributed to GVD in transport) a not problem. However, shortest possible probe durations are still preferable because the EO signal level (energy) scales with the coincident time interval between the electron bunch and the probe. A more detailed description of the spectral enhancement scheme follows.

In the Pockels EO regime, the bunch field,  $E_{bunch}(ct \equiv s)$  linearly modulates the ir probe field,  $E_{probe}(t)$  to generate a transmitted field spectrum,  $\bar{E}_{signal}(\omega)$  and a transmitted spectral intensity,  $I_{signal}(\omega)$  according to:

$$\begin{aligned} E_{signal}(t) &= E_{probe}(t) \{ \alpha + \beta E_{bunch}(t) \}; \bar{E}_{signal}(\omega) = \alpha \bar{E}_{probe}(\omega) + \beta \bar{E}_{probe}(\omega) \otimes \bar{E}_{bunch}(\omega); \\ I_{signal}(\omega) &= \alpha^2 |\bar{E}_{probe}(\omega)|^2 + \\ &\quad \alpha \beta \left[ \bar{E}_{probe}(\omega) \{ \bar{E}_{probe}(\omega) \otimes \bar{E}_{bunch}(\omega) \}^* + \bar{E}_{probe}^*(\omega) \{ \bar{E}_{probe}(\omega) \otimes \bar{E}_{bunch}(\omega) \} \right] + \\ &\quad \beta^2 \left[ \bar{E}_{probe}(\omega) \otimes \bar{E}_{bunch}(\omega) \{ \bar{E}_{probe}(\omega) \otimes \bar{E}_{bunch}(\omega) \}^* \right] \end{aligned} \quad (6)$$

where the symbol,  $\otimes$  represents the convolution operation. Assume for simplicity that the longitudinal (temporal) profiles of the probe and bunch fields are Gaussian with



bandwidths,  $\Gamma$  and  $\gamma$  respectively. The spectral intensity can then be expressed in terms of the probe bandwidth,  $\Gamma$  and bunch bandwidth,  $\gamma$  as:

$$I_{\text{signal}}(\omega) = \alpha^2 |\bar{E}_{\text{probe}}(\omega)|^2 + 2\alpha\beta\Gamma E_{po}^2 E_{bo} \sqrt{\frac{\pi}{1 + \left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right)^2}} \exp\left\{-\left(\frac{\Delta\omega}{\Gamma}\right)^2 \frac{2 + \left(\frac{\gamma}{\Gamma}\right)^2}{1 + \left(\frac{\gamma}{\Gamma}\right)^2}\right\} +$$

$$(\beta\Gamma E_{po} E_{bo})^2 \left(\frac{\pi}{1 + \left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right)^2}\right) \exp\left\{-\left(\frac{\Delta\omega}{\frac{\gamma}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right)^2}}\right)^2\right\} \quad (7)$$

where  $E_{po}$  and  $E_{bo}$  are the ir probe and bunch field amplitudes respectively and  $\Delta\omega \equiv \omega - \omega_o$ . Within an ultrashort timescale that is determined by the electron bunch duration, significant bandwidth is added to the probe pulse. This is revealed in the third term of equation (3) that is determined mainly by the bandwidth of the bunch field. For example, for a 10 femtosecond bunch and a transformed limited 40 fsec ir probe, significant probe bandwidth enhancement can be observed for  $\Delta\omega \geq 4\Gamma$ . Note that both time-integrated and time-resolved data provide bunch duration information. Figure 2 illustrates a typical experimental configuration for monitoring time-integrated transmitted 'S' and 'P' spectra. Time-integrated data can include signal pulse energy, spectra, and transverse profile uniformity. As with the transmitted laser spectral diagnostic, FROG technology (described above) can be considered for time-resolved measurements that reveal the dynamics of spectral enhancement. A noninvasive EO diagnostic that determines the longitudinal profile of a single ultrashort electron bunch is much needed for future FEL development. This also constitutes an initial development of THz diagnostics which are likely to have other diverse applications.

#### 4. Xray Diagnostic Development:

High intensity laser-plasma sources and new XFEL developments place similar demands on next generation, ultrafast, xray diagnostics. Currently, such xray pulse diagnostics typically utilize some type of correlation scheme where the correlation signal can be obtained from photons, ions or electrons. The following schemes are briefly described here: scanning xray autocorrelation with ion signals generated by two-photon absorption, scanning xray/ir cross-correlation generated by ir modulation of photoelectron or Auger electron energy spectra, and single pulse xray/ir cross-correlation induced by group velocity dispersion in a plasma column. In these schemes, timing jitter between xray and ir laser pulse must be minimized and is assumed to be zero for present purposes.

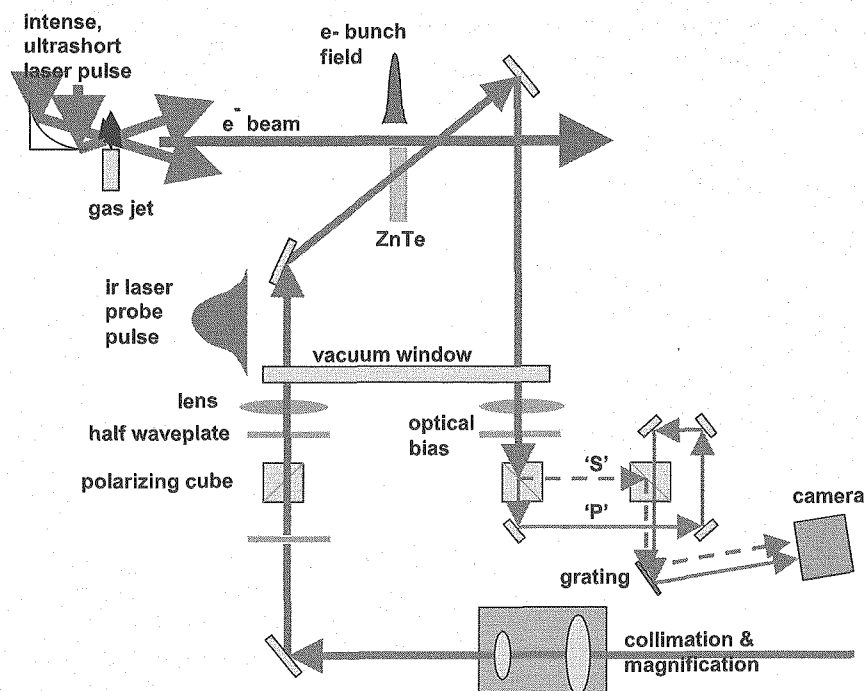


Figure 2. Configuration for measuring time-integrated spectral bandwidth enhancement.

#### 4.1 Scanning Autocorrelation Using Two-Photon Absorption:

Two-photon absorption (TPA) in helium has been used to detect 8 femtosecond soft xray pulses (27<sup>th</sup> harmonic of 800 nm) with scanning autocorrelation [13]. Soft xray pulses generated via high harmonic generation (HHG) were split and the variable time delay between them was scanned. Autocorrelation was obtained from the enhanced  $\text{He}^{+2}$  ion signal generated during coincidence of the two pulses which scales quadratically with xray pulse intensity. The coherence of the HHG process affords use of the TPA method.

We propose extending this methodology to higher photon energies and to 'tailored' ion targets. Target ions can be selected according to the xray photon energy in order to simplify interpretation of ion signals for autocorrelation. Figure 3 shows the variation of the half ionization potential (from the outermost electron) for Kr ions. For example, 'valence' TPA (with the outermost electron) of  $\text{Kr}^{+8}$  to form  $\text{Kr}^{+9}$  requires photon energies that exceed about 115.5 eV and 'valence' TPA of  $\text{Kr}^{+19}$  to form  $\text{Kr}^{+20}$  requires photon energies that exceed about 416.5 eV. It is well established that, prior to arrival of the xray pulse pair, initial optical field ionization (OFI) of a gas can generate high charge states where the ionization levels are well predicted by the incident laser intensity [14]. Spatially filtered ion detection can be used to further select desired charge states [15]. For example, threshold production of  $\text{Kr}^{+8}$  requires ir laser intensities of order  $10^{17} \text{ W/cm}^2$  and for  $\text{Kr}^{+19}$  production, intensities of order  $10^{19} \text{ W/cm}^2$  are needed. This technique then uses three pulses (ir pulse followed by a pair of xray pulses) in a co-propagation scheme where the xray pulse pair can follow the intense ir laser pulse by 100 picoseconds or more. If the main ir laser pulse is also driving the production of the xray

pulse (via HHG, XFEL or XRL interaction) we can anticipate minimal timing jitter in these measurements.

While ‘valence’ TPA of arbitrary ion,  $B^{+n}$  generates  $B^{n+1}$ , ‘core’ TPA results in ‘hollow’ ions and can generate charge states higher than  $B^{n+1}$  that evidence Auger decay processes. The ensuing charge balance is then determined by the cross-sections for valence and core TPA in addition to those for the appropriate Auger decay channels. These cross-sections are critical for predicting ion signal levels that follow TPA with a specified ion target. Any charge state that scales quadratically with xray intensity is a candidate for the autocorrelation. For example, target ion charge states can be selected to optimize valence TPA. The charge state upper limit is determined by

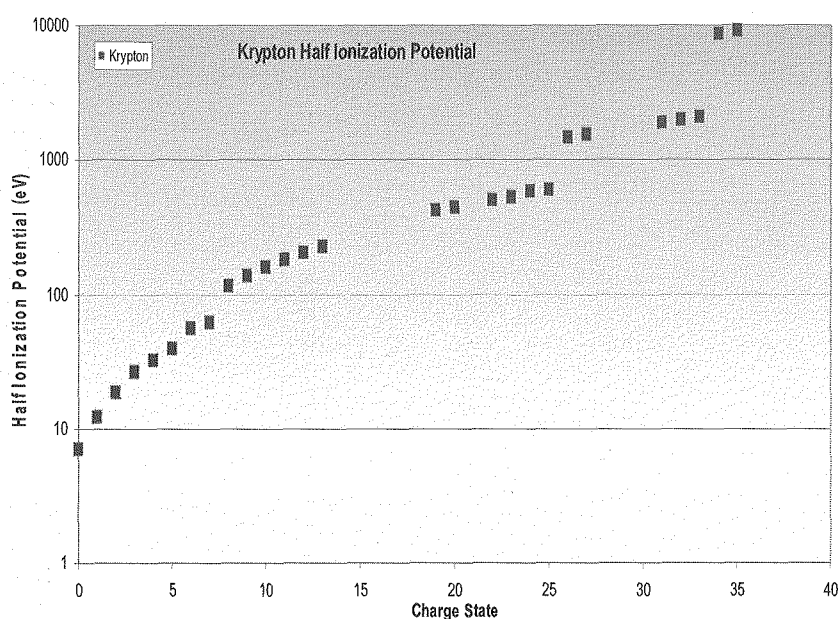


Figure 3. Half ionization potentials for krypton ions

the laser intensity available and by ion detection resolution (the latter is typically the limiting constraint for laser intensities above the  $10^{19} \text{ W/cm}^2$  level).

This TPA application with procured ions illustrates the intimate connection between diagnostics, nonlinear xray optics and xray gating. These are pump/probe ion absorption experiments in which the time delay between pump and probe is varied. For example, the generation of ‘hollow’ ions by core TPA is of great interest for xray laser developments that might benefit from such transient population inversion. Furthermore, xray second harmonic generation (SHG), analogous to that in the visible regime, as well as ultrafast xray gating for pulse shaping and transport control can be explored in these pump/probe settings. Coherent xray pulses can be produced synchronously with ir pulses from high harmonic generation (HHG), tabletop xray lasers (XRL) or xray free-electron lasers (XFEL).

#### 4.2 Scanning Cross-correlation Using Electron Signals:

Energy spectra of photoelectrons or Auger electrons liberated by xrays can be modulated by coincident ir laser photons. That is, the electron energy can be accelerated or decelerated by the absorption or emission of coincident ir photons respectively and the modulated energy spectra reveal sidebands about some central energy value which are spaced by the ir photon energy. Figure 4 contains a sketch of the general layout used. The sideband amplitudes vary according to the time delay between the xray and ir pulses and can be used as cross-correlation signals in the scanning detection of ultrashort xrays where the ir laser pulse is well-known. Because photoionization and Auger decay rates are adequately rapid, such electron spectrometry can be implemented as an ultrafast xray diagnostic and has been demonstrated during the past decade or more [16,17]. The Auger electron version was referred to as laser-assisted Auger decay (LAAD) and the photoelectron version was referred to as laser-assisted photoelectron emission

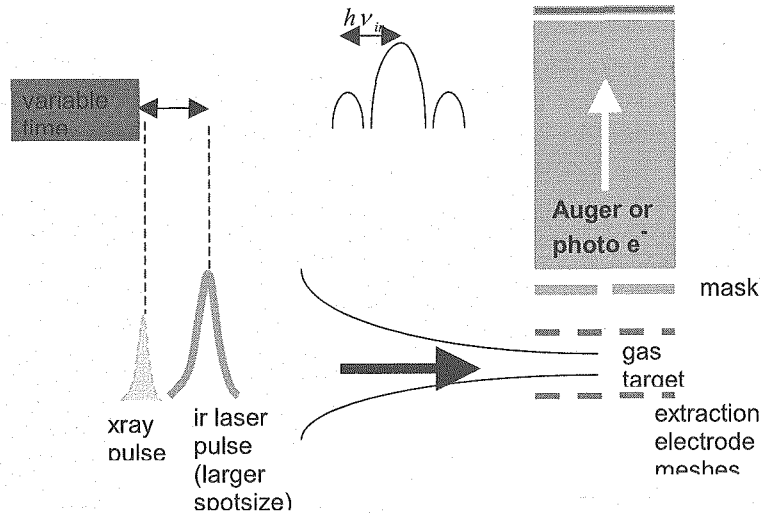


Figure 4. Configuration for synchronous ir modulation of electron spectra.

(LAPE). As is typical of these correlation techniques, it is essential to have excellent relative timing stability between xray and ir pulses.

According to the simple classical picture of LAAD, the final energy of the Auger electron,  $\varepsilon_{e^-}$  is expressed in terms of the Auger energy at birth,  $\varepsilon_{Auger}$  and the maximum number of sidebands,  $N_{sidebands}$  then depends on the ir laser intensity,  $I_{ir}$  according to:

$$\varepsilon_{e^-} = \varepsilon_{Auger} - \sqrt{8\varepsilon_{Auger}\varepsilon_{quiver}} \sin \phi \cos \vartheta + \varepsilon_{quiver} (1 + 2 \sin^2 \phi)$$

$$N_{sidebands} \approx \frac{2\sqrt{8\varepsilon_{Auger}\varepsilon_{quiver}}}{h\nu_{ir}} \approx 1.3 \times 10^{-5} \sqrt{I_{ir}}; \text{ for } \varepsilon_{Auger} \approx 203 \text{ eV} \quad (8)$$

ionization phase,  $\phi$

laser polarization –  $e^-$  momentum angle,  $\vartheta \approx 0^\circ$

where  $\varepsilon_{quiver}$  is the electron quiver energy,  $h\nu_{ir}$  is the laser photon energy,  $\phi$  is the ir waveform phase at which ionization occurs (driven by the xrays and not via OFI), and  $\theta$  is the angle between the electron emission and the orientation of linear ir polarization which is preferably zero.  $N_{sidebands}$  is then determined by the laser intensity which is constrained to be below ionization (OFI) threshold values. With LAAD a wide variety of channels exist with different excitation and Auger electron energies for a given gas type.

In the context of HHG studies, the LAPE approach has become much more sophisticated in the recent past. The XFROG version of this method examines both sideband amplitude and actual electron energy shift versus time delay between the soft xray pulse (from HHG) and the ir pulse [18]. This has enabled determination of the intrinsic chirp in high order harmonic pulses. The RABITT version (reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions) has XFROG capability but also determines the modulation of the sideband modulation itself that originates from the interference in LAPE between two consecutive high order harmonics [19]. This has enabled determination of the spectral phase delay between harmonic pairs. These methods are mentioned due to their promise for coherent soft xray detection in general.

#### 4.3 GVD-induced Single-Pulse Xray/ir Cross-correlation:

A novel xray/ir cross-correlation technique capable of ultrafast measurement of xray pulse longitudinal profiles with single pulse capability has been proposed by Tatchyn [20]. As illustrated in figure 5, it is a three pulse co-propagation scheme in which the first ir pulse (linearly polarized) is the ionizer pulse that produces a fully ionized plasma column of subcritical density. A second ir pulse (circularly polarized) closely follows the first one (by a time delay much less than the effective recombination time of the plasma) and heats the plasma electrons. The xray pulse is launched slightly after this second ir pulse at the plasma column entrance such that ir GVD along the column allows the xray pulse to pass (sweep through) it within the column. In the pump/probe jargon, the second ir pulse represents the pump and the xray pulse is the probe pulse. Optical field ionization (OFI), driven by the first ir pulse, typically generates 'cold' electrons. At intensities required to fully ionize helium, the maximum electron energy is estimated classically to be:

$$\varepsilon_{\max} \approx 3.17U_p; U_p \equiv m \left( \frac{eE_{ir}}{2m\omega_{ir}} \right)^2 \approx 3KeV \quad (9)$$

where  $U_p$  is the ponderomotive (oscillatory) energy,  $e$  is the electron charge,  $m$  is the electron mass,  $\omega_{ir}$  is the central angular optical (ir) frequency, and  $E_{ir}$  is the ionizing ir laser field magnitude. Xray/ir cross-correlation is obtained via reduced scattering of the xray light by heated electrons as plasma GVD causes the xray probe pulse to sweep through the ir pump pulse. The number of scattered xray photons,  $N_{xray}$  can be estimated from the xray pulse energy,  $\varepsilon_{xray}$  and relativistic  $\gamma$  factor to be:

$$N_{xray} \approx 3 \times 10^{14} \tau_{xray} \left( \frac{n_e}{\omega_{xray}} \right) \left( \frac{\varepsilon_{xray}}{\gamma^2} \right) \& \gamma^2 \equiv 1 + \left( \frac{e}{mc} \right)^2 \left( \frac{E_{ir-pump}}{\omega_{ir}} \right)^2 \approx 1 + 6 \times 10^{-26} E_{ir-pump}^2 \quad (10)$$

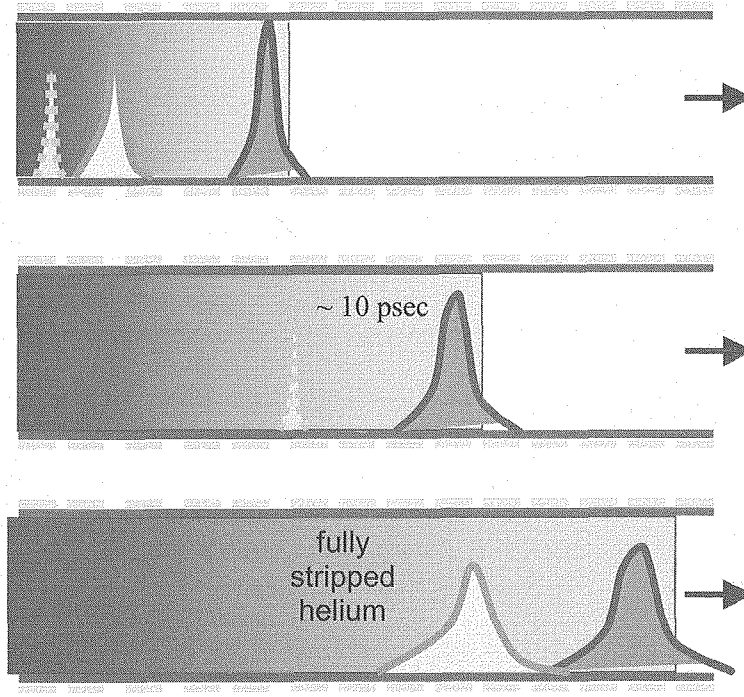


Figure 5. Three-pulse concept for GVD-induced xray/ir cross-correlation.

where  $n_e$  is the plasma density,  $\omega_{xray}$  is the central angular xray frequency,  $\tau_{xray}$  is the xray pulse duration,  $c$  is the vacuum light speed, and  $E_{ir-pump}$  is the field magnitude of the ir pump laser. The ir heater on/off signal level can be expressed with the contrast function,  $\eta$  given as:

$$\eta \equiv \frac{N_{xray}(E_{ir-pump} = 0) - N_{xray}(E_{ir-pump})}{N_{xray}(E_{ir-pump} = 0)} = 1 - \left( \frac{\gamma(E_{ir-pump} = 0)}{\gamma(E_{ir-pump})} \right)^2 \quad (11)$$

For example, for  $\epsilon_{xray}$  of 100 microjoules, plasma density of  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , and  $E_{ir-pump}$  of  $10^{12} \text{ V/m}$ ,  $\eta$  is near 10% and  $N_{xray}$  is reduced to about 100.

Electrons are heated by the circularly polarized ir pump light only within the duration of the pump pulse. An array of xray detectors is placed along the plasma column. Because there are no bound states involved (xray-plasma scattering is in the continuum) this method has potential for single pulse, attosecond temporal resolution. For plasma densities of order  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , the xray pulse sweeps through the ir pump at a rate near 1 mm/fsec. It can easily be shown that GVD at this density also longitudinally disperses the ir pulses themselves by about 10 fsec for each 10 cm of plasma column length (where a 5% ir bandwidth has been assumed). In addition to testing an xray detector array with sub mm spatial resolution, development of this diagnostic requires establishing 'extended' plasma columns (lengths of many Rayleigh ranges) that can result from guiding relativistic ir laser intensities in a plasma environment.

## 5. Conclusion:

New discoveries and ensuing technologies can inspire novel diagnostics. Next generation accelerator, laser and light source technology will require next generation diagnostics for advancing experimental science and for detailed machine control. New free-electron laser facilities and other electron beam-based light sources will mandate electron, laser and xray diagnostics with similar temporal resolution capabilities. Mindful of the imminent nature of new applications and discovery that come from studies of ultrafast, high intensity laser-plasma interaction, it is essential to identify and develop companion diagnostics in an integrated way. Development of novel techniques should be integrated with the vision and proposal of new facilities. For example, tabletop sources of GeV electron beams generated in laser-plasma interactions have recently been demonstrated. One can visualize in subsequent phases multi-staged configurations in which each stage requires state-of-the-art laser, plasma, electron bunch, THz and x-ray single shot diagnostics for table top FEL and other light scattering applications.

The laser-plasma diagnostic suite is needed to characterize fundamental laser-plasma interactions. For example, this can be a basis for better understanding and controlling both optical emission (from THz emission to xray generation) and quasimonoenergetic (QME) electron bunch generation. Well-established, ultrafast optical techniques such as FROG can be used to probe spectral dynamics, the value of which can be enhanced in the future by increasingly rapid dynamics.

Novel laser-based electron microbunch diagnostics may best be developed in settings where the timing jitter between the laser probe pulse and the electron microbunch is negligible, where appropriate synchronous probe pulses are readily available, where wakefield effects are minimal, and where there is good access to regions in close proximity to the electron beamline. Laser facilities, where high field laser-plasma interaction studies include laser wakefield generation of ultrashort electron microbunches, can potentially provide this setting. In particular, examination of spectral dynamics for electron bunch detection in an electro-optic environment is well-suited to these facilities. There is also general interest in THz science and technology that is closely related to this work. Ultimately, attosecond temporal resolution is needed. The full broadband characterization that FROG techniques can provide for optical pulses is also being explored in the FEL community. FROG devices have been applied (and proposed) for ultrafast observations of FEL emission.

Also intrinsic to laser facilities is advancing the development of single pulse, ultrafast xray detection for laser-plasma sources such as table top xray lasers (XRL's) and other plasma sources, for high order harmonic generation (HHG), and for xray free electron lasers (XFEL's). For example, both ion-based and electron-based correlation schemes need to be exploited with xray and timing jitter diagnostics in mind. In recent years, HHG studies have ushered in attosecond science and technology. Similar methodologies can be considered for XFELs where coherence is a major issue. For years free electron laser development has relied on lasers for driving electron emission from RF photocathodes, for diverse noninvasive electron bunch diagnostics, and for other (more invasive) laser-electron beam interactions such as Compton scattering. Conceptual designs for new free electron laser facilities are increasingly incorporating laser-atom and

laser-plasma technology for FEL seeding and the generation quasi monoenergetic electron bunches of ultrashort duration (i.e. laser-plasma guns).

High intensity laser facilities are favourable settings for these developments. Historical broadband experience, potentially improved access to ultrashort electron bunches, the availability of relatively jitterless probe pulses, and the increasing technical relevance of laser-atom and laser-plasma interactions to free electron laser developments can make intense laser facilities ideal environments for developing novel, ultrafast diagnostics for future accelerators and light sources in general. Coordinated development is needed and should be encouraged as conventional and free electron laser technologies become more combined and therefore more critically dependent one each other.

## References:

1. T. Tajima and J.M.Dawson, Phys.Rev.Lett. 43[4], 267 (07'79).  
E. Esarey and C.B. Schroeder, LBNL Report, LBNL-53510 (06'03).
2. S.P.D. Mangles et al., Nature 431, 535 (09'04).  
C.G.R. Geddes et al., Nature 431, 538 (09'04).  
J. Faure et al., Nature 431, 541 (09'04).
3. C.A. Coverdale et al., Phys.Rev.Lett. 74[23], 4659 (06'95).  
C. Joshi et al., Phys.Rev.Lett. 47[18], 1285 (11'81).
4. P.R.Bolton et al., J.O.S.A B13[2], 336 (02'96).  
W.M.Wood et al., Phys.Rev.Lett. 67, 3523 (1991).
5. B. Hidding et al., Phys.Rev.Lett. 96, 105004 (03'06).  
K. Koyama et al., Laser and Particle Beams 24, 95 (2006).
6. D.J.Kane and R.Trebino, Opt.Lett. 18[10], 823 (05'93).
7. J. van Tilborg et al., Phys.Rev.Lett. 96, 014801 (01'06).  
A.L.Cavaliere et al., Phys. Rev.Lett. 94, 114801 (2005).
8. I.Wilke et al., Phys.Rev.Lett. 88[12], 124801 (03'02).
9. J. Shan et al., Opt.Lett. 25[6], 426 (2000).
10. G. Berden et al., Phys.Rev.Lett. 93[11], 114802 (09'04).  
P.R. Bolton et al., Nucl.Inst.and Meth.in Phys.Res.(NIM) A507, 220 (2003).
11. F.G. Sun et al., Appl.Phys.Lett. 73[16], 2233 (10'98).  
S.P. Jamison et al., Opt.Lett. 28[18], 1710 (09'03).
12. G. Gallot et al., Appl.Phys.Lett. 74[23], 3450 (06'99).
13. Y. Nabekawa et al., Phys.Rev.Lett. 94[4], 043001 (02'05).
14. B. Chang et al., Phys.Rev.A47[5], 4193 (05'03).
15. P. Hansch et al., Phys.Rev.A54, 2559(R) (1996).
16. J.M.Schins et al., J.O.S.A. B13[1], 197 (01'96).  
J.M.Schins et al., Phys.Rev.Lett. 73[16], 2180 (10'94).
17. T.E.Glover et al., Phys.Rev.Lett. 76[14], 2468 (04'96).
18. J.Norin et al., Phys.Rev.Lett. 88, 193901 (05'02).  
J.Mauritsson et al., Phys.Rev.A70, 021801(R) (2004).
19. P.M.Paul et al., Science 292, 1689 (06'01).  
R.Lopez-Martens et al., Phys.Rev.Lett. 94, 033001 (01'05).
20. R. Tatchyn, Proceedings of the 27th International Free Electron Laser Conference (FEL2005), TUPP028, page 282, held August 21-26, 2005 at Stanford, California



## 4.9 テラワット・フェムト秒レーザーによる高強度テラヘルツ波の発生

### Generation of high-power terahertz radiation by femtosecond-terawatt lasers

菜嶋 茂喜<sup>1)</sup>, 大道 博行<sup>2)</sup>, 細田 誠<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>大阪市立大学工学部応用物理学科

<sup>2)</sup>日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所

Shigeki NASHIMA<sup>1)</sup>, Hiroyuki DAIDO<sup>2)</sup>, and Makoto HOSODA<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>Department of Applied Physics, Graduate School and Faculty of Engineering,  
Osaka City University

<sup>2)</sup>Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency

We observed electromagnetic waves in the terahertz (THz) frequency range from a Ti foil excited by tabletop terawatt (T-cube) laser pulses. The radiation power was increased drastically with increasing its laser power. We also investigated the polarization characteristics of the sub-terahertz wave. It is found that the polarization of the radiated sub-terahertz waves was parallel to the incident beam plane, which is independent on the pump laser polarization. These results indicate transient electric field to the incident plane is generated by laser-plasma interaction, i.e., laser wake field and coherent plasma wave.

**Keywords : T-cube laser, terahertz (THz) radiation, ponderomotive force, laser wake field**

#### 1. はじめに

高強度フェムト秒光パルス励起により生じたプラズマと光の相互作用によって、高ピーク強度のテラヘルツ波パルス(以後、THz 波と記す)が放射されることが報告されており[1]-[4]、分光計測や生体イメージングの高速化やこの領域の非線形ダイナミクスの研究などへの応用が期待されている[5, 6]. Hamster らは、固体ターゲットプラズマから放射された THz 波強度が電子ビーム量や X 線強度と相関があることを発見している. この実験結果から、レーザー航跡場の存在を指摘し、それによって電子が加速する際に THz 波が発生すると考えている[1]. 一方、Leemans らは、ガス(ジェット)プラズマからの THz 波放射実験の結果から、相対論的なエネルギーを有した電子バンチが、プラズマ領域から飛び出る際に境界領域で生じる分極の高速な変化により THz 波が放射(遷移放射)されることを指摘している[2]. その他にも、Cook らは、レーザープラズマの非線形光学効果(四波混合)による THz 波の発生も確認している[4]. これらの報告から、高強度な光-プラズマ相互作用による THz 波放射の発生機構は単純ではなく、様々な放射機構が存在している事が予想される. この THz 波放射特性を詳細に調べていくことにより、更なる放射機構の解明にも繋がる一方、THz 波放射の高効率化や放射強度の増大も期待できる. また、THz 波放射機構には、レーザー-プラズマ相互作用の超高速なダイナミクスが関係することが大いに予想され

ることから、レーザープラズマ中の電子やイオンなどの超高速なダイナミクスについて、新たな知見が得られる事も期待できる。そこで我々は、T キューブレーザーを用いて Ti 箔からの THz 波放射の計測を行い、レーザープラズマからの THz 波放射における励起光強度や偏光などの励起光条件について調べることにした。

## 2. 実験方法

図1に実験配置図を示す。励起光源に用いた T キューブレーザーのパルスエネルギー、および、パルス幅は、それぞれ、108 mJ、および、100 fs である。P 偏光または S 偏光のレーザー光を軸外し放物面鏡 ( $f \sim 640$  mm) を用いて、入射角 45 度から 5  $\mu\text{m}$  厚の Ti 箔に集光した。この時の集光密度は、約  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> である。このとき、主パルスの 1～3 ナノ秒前後する時間帯には、主パルスに対して約  $10^{-6} \sim 10^{-3}$  の強度の ASE やプリパルスが存在する。また、主パルスの 12.5 ナノ秒前にも主パルスに対して  $10^{-5}$  程の強度のプリパルスが存在している。我々は、励起光の反射方向に放射された THz 波をポリプロピレン製の平凸レンズ ( $f$ : 50 mm、および、10 cm) を用いて真空容器外に設置したシリコンボロメーター (インフラレッド社製: QSIB/2F) へ導波した。このため、採光した立体角は 0.15 sr である。シリコンボロメーターはマイクロ波から赤外領域まで一定の感度を持つため、我々はテラヘルツ波領域における幾種類かのカラーフィルターを伝搬経路に挿入した。図2は、本実験で使用した各種フィルターの透過スペクトルである。THz 波を取り出す為の真空容器の窓には、THz 波を透過し、中赤外光を遮断するサファイアを用いた。また、伝搬経路には、高抵抗シリコンウエハや発泡スチロールを挿入し、赤外光から可視光の波長領域を遮光した。さらに、ITO ガラス挿入後の信号強度の減衰量を測り、検出した THz 波の周波数領域を検討した。また、検出した電磁波の偏波特性の計測にはワイヤーグリッドを用いた。

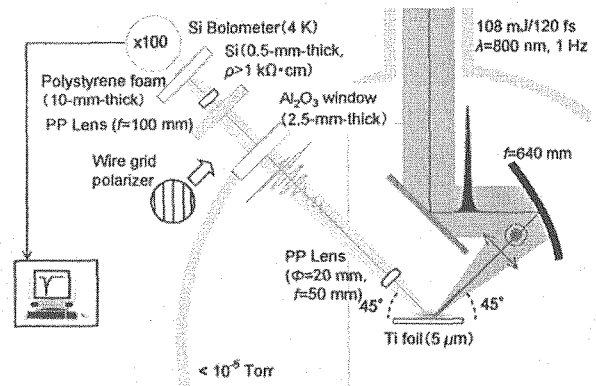


図1. 実験配置図。

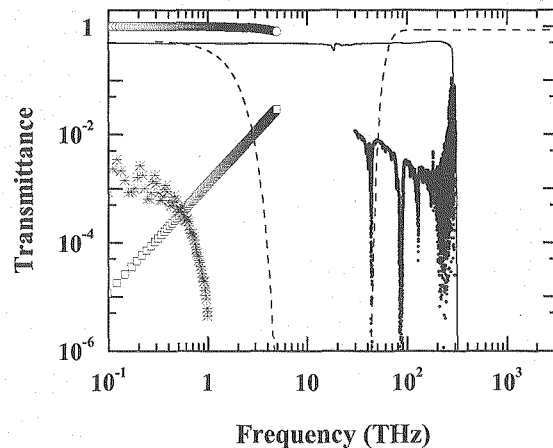


図2. 各種フィルターの透過特性. ○: TE 波におけるワイヤーグリッドの透過特性 (計算値). □: TM 波におけるワイヤーグリッドの透過特性 (計算値). 実線: 高抵抗シリコンウエハ (比抵抗率: 1 kΩ·cm, 厚さ: 0.53 mm) の透過スペクトル (計算値). 破線: サファイア窓 (C 面カット, 直径: 50 mm, 厚さ: 2.5 mm) の透過スペクトル (計算値). ●: 発泡スチロール板 (厚さ: 10 mm) の透過スペクトル (実測値).

## 3. 結果および考察

ボロメーターで検出された信号は、いずれもレーザー光が試料に照射されるタイミングに同期していた。その信号は、伝搬経路中のサファイア窓をアルミ箔 (厚さ: 約 10  $\mu\text{m}$ ) で覆った場合には検

出されなかったことから、レーザー照射された試料からの電磁波である事が確かめられた。ボロメータで検出された信号強度は、ITO ガラスを挿入した後では約 0.1 %まで減衰した。この結果から、検出された電磁波の周波数領域は、0.1 THz 付近の周波数領域である可能性が高いと思われる。図 3 は各励起光条件において検出された信号強度であり、レーザー光強度や偏光方向に強く依存していることがわかる。図から、励起光強度が 5.1 mJ の時の信号強度は、励起光強度が 108 mJ の時の信号強度に比べ、信号強度が  $10^{-4}$  ほど減少している。図 4 は、P 偏光および S 偏光の励起光入射時における THz 波の偏波特性の結果である。横軸に記す角度とは、挿入図で定めた通り、入射面とワイヤーとの傾き角である。図 4 より、検出された THz 波は、入射面に平行な方向に強い偏波特性を有していることがわかる。この偏波特性の結果は、Hamster らの実験結果とも一致している[7]。さらに、検出された電磁波の偏波特性は、励起光の偏光方向に依らず、ほぼ入射面と平行である。実線は、入射面上の電磁波強度とそれに垂直な方向の電磁波強度をパラメータに用いてフィッティングしたものである。フィッティングの結果から、入射面上の成分と垂直成分の比率は、P 偏光入射時では 19:1 であり、S 偏光入射時では 20:1 であった。

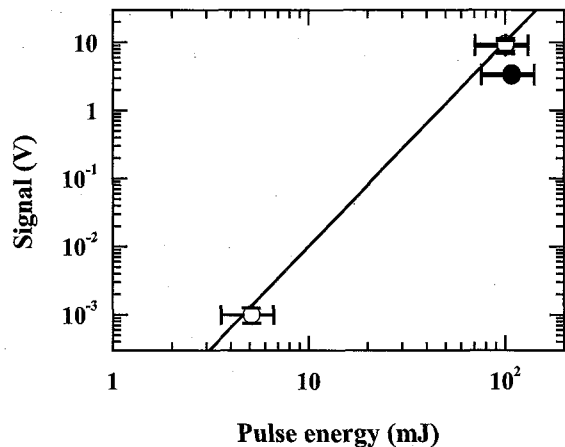


図 3. THz 波放射強度の励起光強度依存性。○:P 偏光入射時, ●:S 偏光入射時。

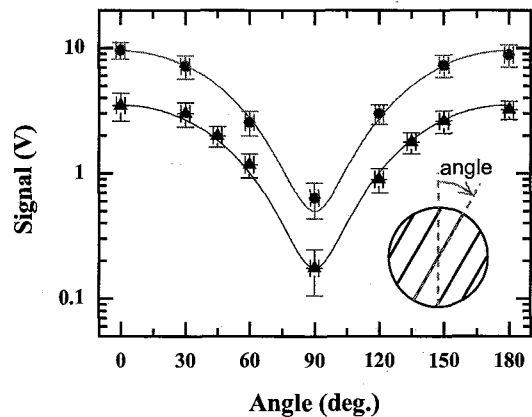


図 4. P 偏光(●印)および S 偏光(▲印)の励起光照射時における THz 波の偏波特性。

本実験結果と同条件下で行われた電子ビーム、イオンビーム計測、および、X 線計測の結果を基に THz 波放射機構について考える。励起光強度が 108 mJ の時では、主パルスの 12.5 ns 前に存在するプレパルスの集光密度は約  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> であるため、金属ターゲット表面にはプレプラズマが発生している。光干渉計測の結果から、P 偏光入射時において試料表面に発生したプラズマ密度は  $10^{18\sim 20}$  cm<sup>-3</sup> の分布を有していることを確認している。これに対して、励起光強度が 5 mJ の時では、プレパルスの集光密度が臨界強度前後にあるため、プレプラズマが発生していない、または、108 mJ の励起光強度の時に比べ数桁低い密度のプレプラズマであることが予想される。本実験で得られた励起光強度依存性の結果には、プレプラズマが大きく関係する事が予想される。一方、励起光の偏光依存性の実験結果から、検出された THz 波には偏波特性があり、励起光の偏光に依らず常に入射面に平行な成分であることがわかった。また、これまでの実験から、高エネルギーの電子ビームが励起光の偏光状態に関わらず常に入射面上に瞬時的に発生する事が確認されている[8]。本実験で得られた THz 波放射の結果は、レーザー入射

面上に双極子モーメントが発生している事を意味しており、双極子モーメントの発生に起因する縦電場がレーザー-プラズマ相互作用により発生していることが示唆される。

### 3. まとめ

本研究では、Tキューブレーザーを用いて固体ターゲットのTi箔からのTHz波放射の計測を行い、励起光強度や偏光などの励起条件によるTHz波放射特性を調べた。その結果、幾種かの透過フィルターによる減衰があったにもかかわらず、シングルショット検出が十分可能な程の高強度なTHz波が放射されていることが明らかになった。その電磁波の偏波特性は、レーザーの偏光には依存せず、入射面上に強く偏波している事が明らかになった。これらの結果から、TiプラズマからのTHz波放射は、レーザー-プラズマ相互作用によってレーザーの伝搬方向に引き起こされた分極の発生によるものであり、レーザー航跡場やプラズマ波に起因する高エネルギー電子ビームとの関係が示唆された。

### 謝辞

本研究を遂行するに辺り、各種光学フィルターの赤外透過測定において、フーリエ分光器の使用を快く承諾して下さい長島健先生(大阪大学レーザーエネルギー学研究センター, 助手), 谷正彦先生(大阪大学レーザーエネルギー学研究センター, 助教授), ならびに、萩行正憲先生(大阪大学レーザーエネルギー学研究センター, 教授)に心より感謝致します。

### 参考文献

- [1]. H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 2725-2728.
- [2]. W. P. Leemans, C. G. R. Geddes, J. Faure, Cs. Tóth, J. van Tilborg, C. B. Schroeder, E. Esarey, G. Fubiani, D. Auerbach, B. Marcelis, M. A. Carnahan, R. A. Kaendl, J. Byrd, and M. C. Martin, Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 74802-74804.
- [3]. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, Appl. Phys. Lett. 77 (2000) 453-455.
- [4]. D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, Opt. Lett. 25 (2000) 1210-1212.
- [5]. M. van Exter, Ch. Fattinger and D. Grischkowsky, Opt. Lett. 14 (1989) 1128-1130.
- [6]. B. B. Hu and M. C. Nuss, Opt. Lett. 20 (1995) 1716-1718.
- [7]. H. Hamster, Ph. D. thesis, University of California at Berkeley, (1993).
- [8]. Z. Li, H. Daido, A. Fukumi, A. Sagisaka, K. Ogura, M. Nishiuchi, S. Orimo, Y. Hayashi, M. Mori, M. Kado, S. V. Bulanov, T. Zh. Esirkepov, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, S. Nakamura and A. Noda, Phys. Plasmas 13 (2006) 043104-43109.



## 4.10 EUV 光源のシミュレーションモデル構築

### Modeling of the plasma EUV source

佐々木明

原子力機構・量子ビーム応用研究部門・量子ビーム利用研究ユニット

Akira Sasaki

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

The simulation code for the atomic process of the EUV sources is discussed with respect to the information processing methods. Advantages of modeling using data structures such as structure variables and associative arrays for developing a large scale collisional radiative model are discussed.

Keywords: laser produced plasma, EUV source, simulation, plasma atomic process

#### 1. はじめに

次世代半導体リソグラフィ用 EUV 光源の研究開発においては、高精度の原子過程、輻射力学モデルを構築し、発光機構の適切な理解に基づいて、プラズマ条件を最適化することが重要である。本研究では、HULLAC コード[1]によって求めた原子素過程データを元に衝突輻射モデルを構築し、Sn、Xe プラズマの輻射放出、吸収係数 (emissivity、opacity) の計算を行ない[2]、実験との比較を通して原子データを改良した。その結果、輻射流体シミュレーションの精度が向上し、変換効率や発光スペクトルの実験結果が再現されるようになった。本報告では、精度の高い原子過程シミュレーションコードにおける、原子モデルを表すデータおよびプログラム構造の重要性について議論する。

#### 2. 原子過程モデリング

Sn、Xe プラズマにおける衝突輻射モデルの基本方程式は、イオンの  $i$  状態のポピュレーション  $N_i$  [cm<sup>3</sup>] の変化を、 $j$  状態からの生成と  $k$  状態への緩和 (消滅) 過程とで表すレート方程式、

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_j R_{ji} N_j - \sum_k R_{ik} N_i, \quad (1)$$

である。 $R_{ij}$  は  $i$  状態から  $j$  状態への反応速度 (レート) [cm<sup>3</sup>/s] である。

状態  $\phi_i$  は、イオンの電子配置やスペクトル項などから決まり、

$$\phi_i = \phi(E, g, N | ((n_1 l_1 j_1)^{p_1}, (n_2 l_2 j_2)^{p_2}, \dots) J), \quad (2)$$

のように表される。 $nl$  は軌道電子の主量子数と方位量子数、 $p$  は占有電子数、 $j$  および  $J$  は角運動

量であり、各々の状態が固有のエネルギー、ポピュレーションなどの物理量を持つ。

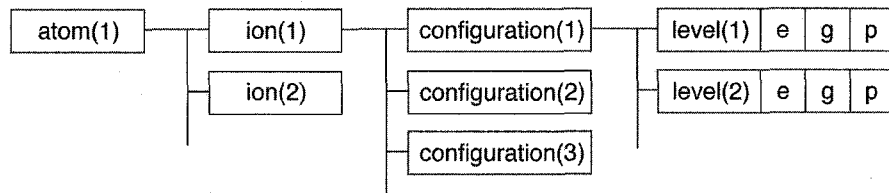
反応速度  $R$  は、それぞれ始状態と終状態の間に起こる電子衝突や輻射による種々の素過程の寄与からなり、温度、密度の関数として、

$$R_{ij} = R(n_e, T_e, \Delta E_{ij}, g_i, g_j, \dots) = R(n_e, T_e, \phi_i, \phi_j), \quad (3)$$

と書くことができる。Sn、Xe のような複雑なイオンでは、 $10^{3-5}$  個の状態を含む連立方程式を解くことによってポピュレーションを決定する。

このようなプラズマ原子過程モデルの実際の計算では、原子状態を適切に取り扱うことが重要と考えられる。シミュレーションで扱うデータとしてみた場合、(2)式の原子状態は、それ自身が原子・イオン種・電子配置・スペクトル項からなる階層構造の一部をなすことと、エネルギー、統計重率、ポピュレーションなどの特性値（属性値）を持つことを特徴とすると考えられる。

本研究では、原子状態を扱うデータ構造について検討を行って、(図1)のように構造体型変数で表現することにし、エネルギー、統計重率、ポピュレーションなどをメンバ変数として持つ level 型変数を定義した。構造体型変数とは、複数の変数をまとめてユーザーがプログラム中で新しく定義する変数のことである。



(図1) 原子状態を保持するデータ構造体

構造体を使うと、例えば原子からスペクトル項までが各一番目の原子状態のエネルギーは、

$$\text{atom}[1].\text{ion}[1].\text{configuration}[1].\text{level}[1].e \quad (3)$$

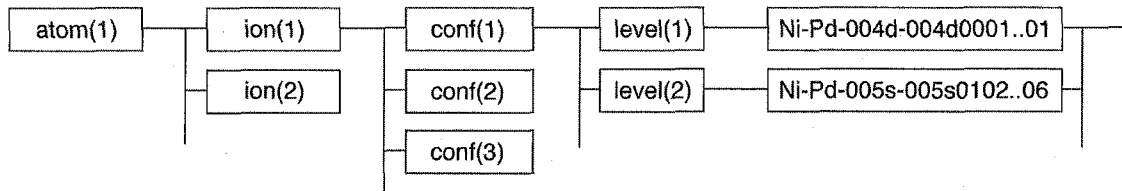
のように表され、原子構造がデータ上で明らかになるとともに、原子状態とその属性値との関係も明瞭になる利点がある。

(図1) は各変数がそれぞれ下位の構造を含む構造体であることを示すが、level 型変数と異なり、例えばイオン種毎に複数の電子配置が含まれるとともに、どのような状態を考慮する必要があるかがイオンによって異なり、各変数が含む下位の変数の数は原子モデルによって不定である。そこで本研究では、各変数は下位の構造を表すメンバ変数を動的配列として持つようにした。動的配列とは、プログラム実行中にメモリを新たに取得して確保する配列のことで、C 言語では malloc 関数を使って作成し、FORTRAN 9x 言語でも同様の方法で使用できるが、本研究では、JAVA 言語を使用し、要素が一つ追加される毎に新たにメモリを取得するリスト型変数を用いる

ようにした。

原子モデルでは、原子状態はしばしばその番号で指定され、上のようにモデルの階層構造を考慮する場合には、イオン種や電子配置も番号で指定されるが、この番号にはほとんどの場合物理的意味がない。そして、ある決まった原子状態に対応する番号がモデル毎に異なることは、結果の比較をするために非常に不便であった。

原子、イオン種などはしばしば名前と呼ばれるので、各変数の属性値として文字のラベルを与えることはこれまでも行われている。本研究では、C++言語や JAVA 言語で使えるようになった連想配列を使用して原子状態を扱うようにした。連想配列 (associative array) とは、ハッシュテーブルなどのデータをユニークなキー値と値の組として保存し、文字列を使って内容を参照することができるデータ構造である。本研究では (図2) のように原子、イオン名と電子配置、スペクトル項に対応するラベルからユニークなキー値を生成し、



(図2) 連想配列による原子状態の参照

これによって、原子状態を、

$$\text{level}(\text{"Ni-Pd-004d-004d0001..01"}) \quad (4)$$

のような形式で参照できるようにした。そして、原子状態をオブジェクトのポインタとして定義することで、原子構造をたどって参照することも、名前から参照することもできるようにした。

多くの原子モデルでは、各階層毎の要素数が異なるだけでなく、ある電子配置についてのみスペクトル項を考慮したり、複数の電子配置を平均化して扱うことがある。原子状態をその名前によって抽象化することはそのような場合に取扱いを簡単にする利点があると考えられる。

### 3. 考察

(4)式における名前 (004d など) は原子データ計算コード (HULLAC) に由来するのに対して [1]、"1s 2 2s 2 2p 6"のような電子配置やスペクトル項を具体的に表すキー値を使用することも可能であり、より物理的な意味が明確にすることができる。著者は文献[3]において電子文書中の原子分子の状態の表現を計算機により認識、処理する可能性を示したが、この結果をシミュレーションにも利用し、スペクトル項の  $1S_0$  を表す  $\langle \sup 1 \rangle S \langle \sub 0 \rangle$  のような文字列をキー値として使用することも考えられる。人間が使用するこれらの表現は、しばしば冗長性や曖昧性を持つが、原子分子の状態は基本的にユニークに表現することができ、正規表現のような標準的

な手法を使って解釈することができる。このように原子状態やその組で定義される反応過程を、研究者が使う名前を使用して直感的に扱えるようになれば、原子モデル相互の比較や検証も容易になると考えられる。

構造体変数は現在ほとんどプログラミング言語で使用でき、FORTRAN 77 言語でもたいい拡張機能として使用できるようになっている。動的配列、リストやハッシュテーブルなどの高度なデータ構造も古くから知られている。従来は高度なデータ構造を扱うためにはメモリを多く必要とし、処理時間も多くなることが問題であったが、計算機の性能の向上によって、それらの本来持つ利点を活用することが現実的になってきた。本研究ではこれらを実際に使用するに当たり、処理系による違いがあることに注目し、どのような言語を用いるのが良いのか検討し、JAVA 言語を採用した。

FORTRAN や C 言語で高度なデータ構造を利用するには、外部のライブラリを使用する必要があるのに対して、JAVA 言語ではオブジェクト指向の概念によって遥かに多くの機能が処理系に取り込まれ、多様なデータ構造が組み込まれ、どの機種、オペレーティングシステムでも使用できるようになった[4]。オブジェクト指向言語では、プログラムがアクセスできるデータの範囲がオブジェクト単位で厳密に決められるために、ライブラリプログラムの信頼性が高まった。

FORTRAN や C 言語で動的にデータを取得した時は、データの境界をプログラマが管理する必要があり、領域外参照によるエラーが起こりがちであった。オブジェクト指向言語では、それぞれのデータ構造がそれに付随する機能を持つようになり、領域外参照は例外を発生し確実に検出できるようになっているだけでなく、検索、ソート、集合の積や和の演算などの機能も利用できる。

今後の計算機シミュレーションは今後さらに大規模化、複雑化し、複数の研究者が開発したコードの統合が必要となる場合も多くなると考えられる。このようなコードの信頼性を高めるためには、高度なデータ構造を利用する機会が増すと考えられ、その手段としてオブジェクト指向によるコード開発の手法を充実させてゆくことが今後重要になると考えられる。そして大規模計算においては計算コストの評価と最適化が重要になると考えられる。

謝辞 本研究は文部科学省リーディングプロジェクト「極端紫外 (EUV) 光源開発等の先進半導体製造技術の実用化」の支援を受けて行われた。

---

#### 参考文献

- [1] A. Bar-Shalom et al., Phys Rev. E56, R70 (1997).
- [2] A. Sasaki et al, Appl. Phys. Lett., 85, 5857 (2004).
- [3] 佐々木明他, プラズマ・核融合研究, 81, 717-722 (2005).
- [4] <http://sun.java.com/>を参照.



#### 4.11 エネルギー回収型リニアックによる次世代光量子源 Energy-Recovery Linac for Future Light Sources

羽島良一、沢村勝、永井良治、菊澤信宏、西森信行、飯島北斗、西谷智博、峰原英介  
日本原子力研究開発機構、量子ビーム応用研究部門、ERL 光量子源開発研究グループ  
319-0091 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-22

R. Hajima, M. Sawamura, R. Nagai, N. Kikuzawa,  
N. Nishimori, H. Iijima, T. Nishitani, E.J. Minehara  
ERL Development Group, Quantum Beam Science Directorate, JAEA  
Tokai-mura, Ibaraki 319-0091 Japan

An energy-recovery linac (ERL), which produces an electron beam of high-brightness and ultra-short pulse, is expected to be a promising driver of future light sources such as next-generation X-ray light sources and high-flux gamma-ray sources. We have started research activity on a high-brightness high-current electron source, which is a key component of future light sources based on the ERL technology.

**Keywords :** energy-recovery linac, light source, coherent X-ray, high-flux gamma ray

##### 1 はじめに

高エネルギーに加速した電子ビームを用いた光の発生には、シンクロトロン放射光、自由電子レーザー、レーザーコンプトン散乱ガンマ線などがある。これらの光源は電子のエネルギーを選ぶことで光の波長（エネルギー）を自在に変えられるという利点を持ち、これまでに多くの学術および産業分野に利用されてきた。近年、ナノテクノロジー、バイオテクノロジーに代表される先端科学では、さらに高性能の光源を求める声が高まっており、これに応えるべく光源用加速器の研究開発が進められている。

われわれ研究グループは、これらの高性能光源を実現するための加速器として、エネルギー回収型リニアック (Energy-Recovery Linac; ERL) の開発を進めるべく、昨年 10 月に新たにスタートした。現在は、ERL 光量子源のキー技術である高輝度大電流電子銃の開発を進めている。また、大電流加速が可能な超伝導空洞や高精度の電子ビーム制御を含めた ERL 固有技術を確立するために、KEK と共同で ERL 実証機 (ERL test facility) の建設に着手した。さらに、ERL が実現する大強度ガンマ線源の原子力利用についても検討を始めている。

##### 2 エネルギー回収型リニアック

加速器による光の発生 (シンクロトロン放射光、自由電子レーザー、レーザーコンプトン散乱ガンマ線など) では、電子エネルギーの一部が光に変換されるのみであり、電子は大部分のエネルギーを持ったまま役目を終えることになる。残されたエネルギーを回収・再利用できれば、光源加速器の性能を高めることが可能になる。エネルギー回収型加速器 (ERL) は、このための装置である。

ERL では、光を生成し終わった電子を高周波加速器に減速位相で再入射し、電子エネルギーを高周波 (RF) エネルギーに変換、後続電子の加速に再利用する仕組みである。超伝導加速器と組み合わせることにより、電力から電子ビームへの高い効率でのエネルギー変換を実現すると同時

に、毎回新しい電子が入射・加速されることから光の発生に適した高品質の電子ビーム（時間空間波形を最適に制御した電子ビーム）が得られる特徴を持つ。

ERLは、高出力FEL用として研究開発が始まったもので、米国 Jefferson 研究所 [1]、原子力機構 [2]、ロシア Budker 研究所 [3] で装置が稼働している他、英国 Daresbury 研究所 [4] でも建設が進んでいる。

### 3 次世代 X 線放射光源

シンクロトロン放射光は、VUV から硬 X 線までの高輝度光源として広く利用に供されている。これまでに、放射光の輝度を高めるための工夫が様々なされており、現在では、第 3 世代放射光源と呼ばれる一連の施設が最高輝度を誇っている。国内の第 3 世代放射光源としては SPring-8 がある。さらなる高輝度化を実現するには、電子蓄積リングの低エミッタンス化が必要であるが、すでに蓄積リングの原理的な限界まで達しており、これ以上の低エミッタンス化は困難な状況にある。

蓄積リングの限界を超える X 線放射光源が、次世代 X 線放射光源である [5]。次世代放射光源は、第 3 世代光源では発生が困難な干渉性 X 線（コヒーレント X 線）、超短パルス X 線（フェムト秒 X 線）を発生し、物質構造変化・化学反応のミクロな解明、単分子イメージング、励起状態の分子内移動の観察などの新しい科学の展開を担うものとして期待されている。このような干渉性 X 線、超短パルス X 線の発生が可能な装置としては、X 線自由電子レーザーとエネルギー回収型リニアックがあり、それぞれ研究開発が進められている。

蓄積リングの低エミッタンス化、超短パルス化が困難な理由は、電子が多数回にわたり軌道を周回する間にエミッタンス（パンチ長）が大きくなってしまふことにある。周回毎に新しい電子パンチが入射される ERL では、このようなエミッタンス（パンチ長）の増大がないために、蓄積リングの限界を超える次世代放射光源を実現することができる。

ERL 型次世代 X 線放射光源では、電子ビームのエミッタンスが入射器で決まるために、低エミッタンス電子源の開発が鍵となる。10 keV 領域の硬 X 線で十分な干渉性（数十%のコヒーレンス）を得るには、規格化エミッタンスで 0.1 mm-mrad が求められる。これは、XFEL の電子源よりも 1 桁小さい値であり、大きな開発課題である。また、第 3 世代光源と同様の X 線フラックスを確保するには、100 mA の電子ビームを連続的に加速する必要がある。このための、電子源の大電流化、大電流加速が可能な超伝導空洞の開発も大きな挑戦である。

ERL 型次世代 X 線放射光源の提案は、Cornell 大学（米国）、Daresbury 研究所（英国）が行っている。国内では、原子力機構と高エネ機構が独立して提案を行っていたが、2006 年 3 月に研究協力協定を締結し、共同で研究開発を行うこととなった。ERL 型次世代 X 線放射光源を目指した R&D を行うための共同チームが組織され、要素技術の開発が始まった [6]。共同チームでは、原子力機構が高輝度大電流電子銃の開発を、高エネ機構が大電流加速空洞の開発を分担している。また、低エミッタンスビームの生成と輸送のためのビームダイナミクス解析、入射器と周回軌道の設計も進めている。これらの技術開発を完了した後に、実証機を建設し総合試験を行うことを予定している。最終目標である X 線放射光源は 5-6 GeV の ERL となる予定で、2010 年代前半に建設を行いたいと考えている。図 1 に 6GeV ERL の平均輝度とピーク輝度の計算例を示す。

### 4 大強度ガンマ線源

ガンマ線による核反応（光核反応）を用いて放射性廃棄物中の核種の非破壊測定を行う試みが提案されている [7][8]。また、ガンマ線を用いて貨物中の核分裂物質を非破壊で検出する研究も始まっている [9]。これらの非破壊測定を産業規模で行うためには、大強度のガンマ線源が必要である。

電子加速器とレーザー技術を組み合わせることで、レーザーコンプトン散乱を用いた準単色ガ

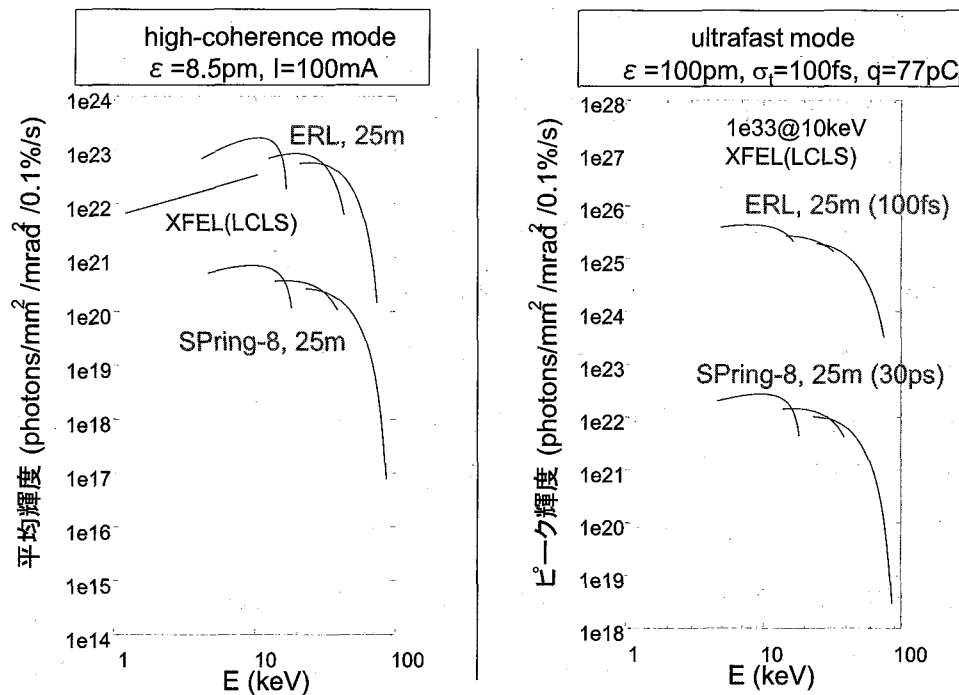


図 1: 6GeV-ERL の放射光輝度：(左)hi-coherence mode の平均輝度 (エミッタンス 8.5pm、平均電流 100mA)。(右)ultrafast mode のピーク輝度 (エミッタンス 100pm、バンチ電荷 77pC)

ンマ線を生成することができる。このような装置は、従来、蓄積リングを用いて行われてきたが、ガンマ線のフラックスは  $\sim 10^4/\text{MeV}/\text{sec}$  にとどまっている [10]。ERL では、蓄積リングに比べてエミッタンスが小さくできること、蓄積電流の寿命を考慮しなくて済むことが利点であり、さらに、光蓄積共振器 (supercavity) [11] と組み合わせることで、 $\sim 10^{12}/\text{MeV}/\text{sec}$  のガンマ線フラックスが得られる。このような大強度ガンマ線が実現すれば、産業規模の光核反応利用が可能になり、核燃料サイクル、放射性廃棄物の処理処分に貢献できると考える。

## 5 次世代光量子源のための要素技術開発

ERL は電子銃 (入射器) で生成した電子の品質を維持したまま光の発生位置まで電子を輸送できることが利点であり、これにより、従来の光源を超える性能 (X 線輝度、ガンマ線強度) を得ることが可能になる。したがって、ERL 光量子源では、電子銃 (入射器) が最も重要な構成要素である。われわれは、ERL 光量子源のための電子銃 (入射器) の開発をグループの主要なミッションに据えて研究活動を行っている。低エミッタンスと大電流を両立する超格子半導体を用いた光陰極 [12]、十分な陰極寿命を確保するための極高真空電子銃の開発 [13] [14] をグループの発足に合わせて開始した。

光陰極の開発では、GaAs に Al を混晶してバンドギャップを大きくすることで、従来の光陰極 (bulk GaAs) に比べて約 2 倍高い量子効率を得ることに成功している。電子銃の設計・製作も順調に進んでおり、今年度中に 250kV 電子銃の組み立てを完了する予定である。

## 6 まとめ

エネルギー回収型リニアック (ERL) を用いることで、従来光源を上回る性能を持った次世代光量子源が実現する。次世代 X 線放射光源、大強度ガンマ線源がその代表例である。次世代 X 線放射光源は、コヒーレント X 線の発生が可能な装置であり、放射光利用の質的变化をもたらし、X

線科学の到達範囲を大きく広げると期待されている。また、大強度ガンマ線は、放射性核種の非破壊測定など、原子力分野における光核反応の利用を可能にする装置である。ERL グループでは、これらの次世代光量子源を目指して、要素技術の開発を進めている。

#### 参考文献

- [1] G.R. Neil et al., Nucl. Instr. Meth. A557 (2006) 9–15.
- [2] R. Hajima, et al., Nucl. Instrum. Meth. A507 (2003) 115–119.
- [3] V.P. Bolotin et al., Nucl. Instr. Meth. A557 (2006) 23–27.
- [4] S.L. Smith, “A Review of ERL Prototype Experience and Light Source Design Challenges”, Proc. European Particle Accelerator Conf. 2006.
- [5] 羽島, 放射光, Vol.14 (2001) 323–330.
- [6] 河田 他, “ERL 放射光源計画と R&D の現状”, 加速器学会年会論文集 (2006).
- [7] 日本原子力研究所, ウラン濃縮施設廃棄物の光核分裂検出法による非破壊測定技術の開発 成果報告書 (平成 15 年度).
- [8] 九州大学 他, 汎用電子線加速器による難測定核種の非破壊測定に関する技術開発 (平成 17 年 5 月).
- [9] J. Pruet et al., J. App. Phys. 99, 123102 (2006).
- [10] H. Ohgaki et al., Nucl. Instr. Meth. A445 (2000) 54–59.
- [11] J. Urakawa, “Laser super cavity”, Proc. 21st ICFA Beam Dynamics Workshop on Laser-Beam Interactions (2001).
- [12] 西谷 他, “高輝度 NEA-AlGaAs フォトカソード電子源の開発”, 加速器学会年会論文集 (2006).
- [13] 飯島 他, “ERL 光量子源のためのフォトカソード DC 電子銃開発の現状”, 加速器学会年会論文集 (2006).
- [14] 永井 他, “ERL 放射光源のためのロードロック型電子銃の設計”, 加速器学会年会論文集 (2006).

5. 第7回光量子科学研究シンポジウム

平成16、17年度協力・共同研究ポスター発表

JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research

- Cooperative Researches and Joint Researches

Poster Presentations

This is a blank page.



## 5.1 半導体レーザー励起超高ピークレーザーの研究開発

### Development of Diode-Pumped Ultrahigh-Peak-Power Lasers

西岡 一

電気通信大学レーザー新世代研究センター

Hajime NISHIOKA

Institute for Laser Science, University of Electro-Communications

河仲 準二

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

Junji KAWANAKA

Institute of Laser Engineering, Osaka University

山川 考一

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

Kouichi YAMAKAWA

Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment, JAERI

We have developed an all-solid-state fs-regenerative amplifier producing 60 mJ-pulse energy with a stage gain of  $10^9$ . The high stage gain was produced by a cooled Yb-doped YLF crystal pumped by a fiber coupled CW-LD. The gain bandwidth has been extended by the cooling because of the gain and absorption overlapping at the room temperature.

**Keywords:** ultrashort pulse laser, high light field, all solid-state laser

#### 1. はじめに

超短パルス光増幅にとってチタンサファイヤ結晶は理想に近い性質を持っているが、その上準位寿命  $3.2\mu\text{s}$  は他の赤外固体レーザー材料の  $1/100$  程度に短い。さらに、励起に緑の光が必要である。半導体レーザー(Laser Diode 以下 LD)を用いて励起しようとするとき一旦 Nd:YAG、あるいは Nd:YVO<sub>4</sub> 固体レーザーを LD 励起し、これを Q-スイッチし、さらに2倍高調波を発生させる必要があり、励起装置の大きさ、コストが全レーザーシステムの半分を占めている。

対して Yb 添加レーザー材料は Fig.1 に示すような一見2準位にも見える単純なエネルギー構造を持っている。Stark 分岐により上準位は3つ、基底準位は4つに分裂しており、レーザー動作はこのエネルギーの違いを利用して4準位動作を行う。赤外で励起し、赤外で発振するシステムであり、光子エネルギーの利用効率の良いエネルギー構造であることが分かる。さらに、エネルギー準位が簡単のためにレーザー上準位からの再吸収(Excited state absorption : ESA)が生ずることもない。

一方、分裂によるエネルギー差は数  $100\text{ cm}^{-1}$  で、常温においてレーザー下準位は熱的に励起されている。レーザー発振には基底準位の吸収飽和が要求される3準位レーザーの性質もある。このため、Yb 系レーザーは準3準位、あるいは準4準位動作と呼ばれている。基底準位の吸収飽和には強励起が必要で、高出力 LD が実用になって初めてレーザー材料として注目されるようになった。利得大域は 980-1100 nm におよび、数 10 fs の超短パルス光を増幅できる能力がある。

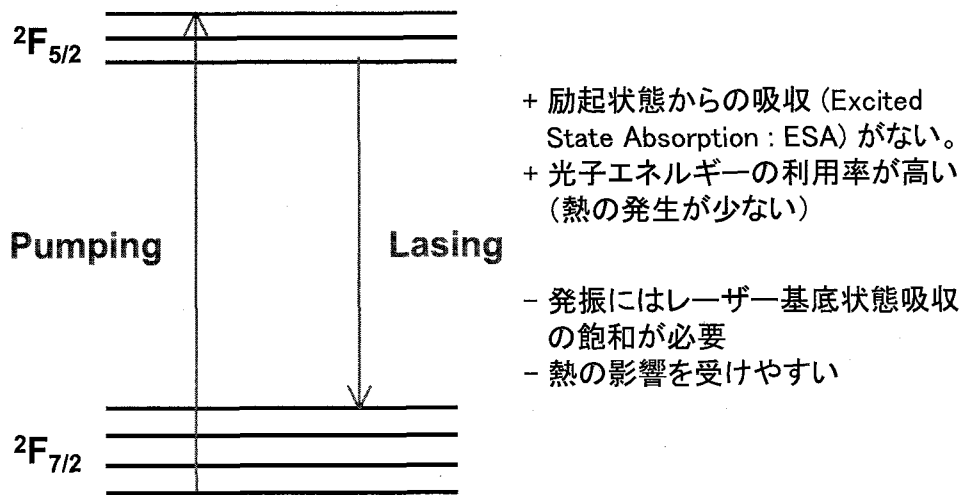


Fig.1 Quasi-three level system in a Yb-doped laser crystal.

## 2. Yb-YLF レーザーの低温動作<sup>1</sup>

固体材料を冷却すると熱振動によるエネルギー広がりが増加するため、一般に、利得帯域は狭くなる。しかし、Yb:YLF では吸収・放出のエネルギー差が室温に比べても小さいため、前述のように利得スペクトルには吸収スペクトルの大幅な重なりがある。結晶を冷却すると利得スペクトルは狭くなるが同時に吸収スペクトル幅も減少し、利得と吸収スペクトルが分離されるため実効利得帯域幅を拡げることができる。さらに、誘導放出断面積も増加するため低い光強度でエネルギーを引き出すためにも都合が良い。液体窒素温度における実効利得帯域幅とレーザー出力を Fig.2 に示す。利得帯域幅は2倍に広がり、2桁近いレーザー出力の向上が得られた。

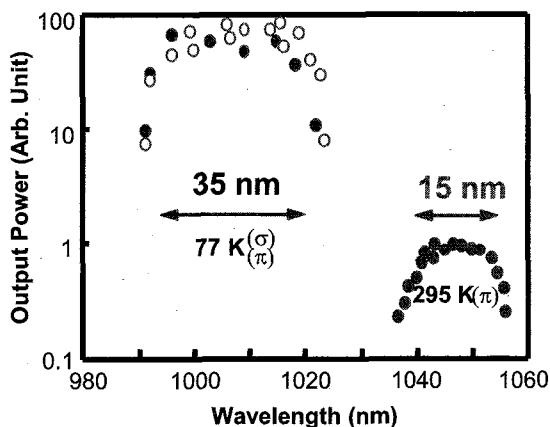


Fig.2 Gain broadening in a LN cooled Yb-YLF.

再生増幅器は一種の注入同期型の発振器であり、光パルスは共振器の中に置かれた増幅器を 10 ns 程度の間隔で何度も通過する。ここで、増幅器の利得を低く設定し増幅に必要な往復回数を増すと、最後の数回は再生増幅器出力に近い光強度で共振器内部を往復する。この条件では、レーザー媒質は繰り返し光と相互作用するため、飽和フルーエンスよりも十分低いパルスエネルギー



で効率良く飽和する。共振器内を往復するパルスは、長い時間間隔を置いて増幅や光学素子を通過するため、光学損傷の点で有利である。このように再生増幅器はパルス幅の実効的広がりをもたらすので仮想のパルス伸長器と見なすこともできる。Fig.3 は構築した液体窒素冷却型の再生増幅器<sup>2</sup>である。

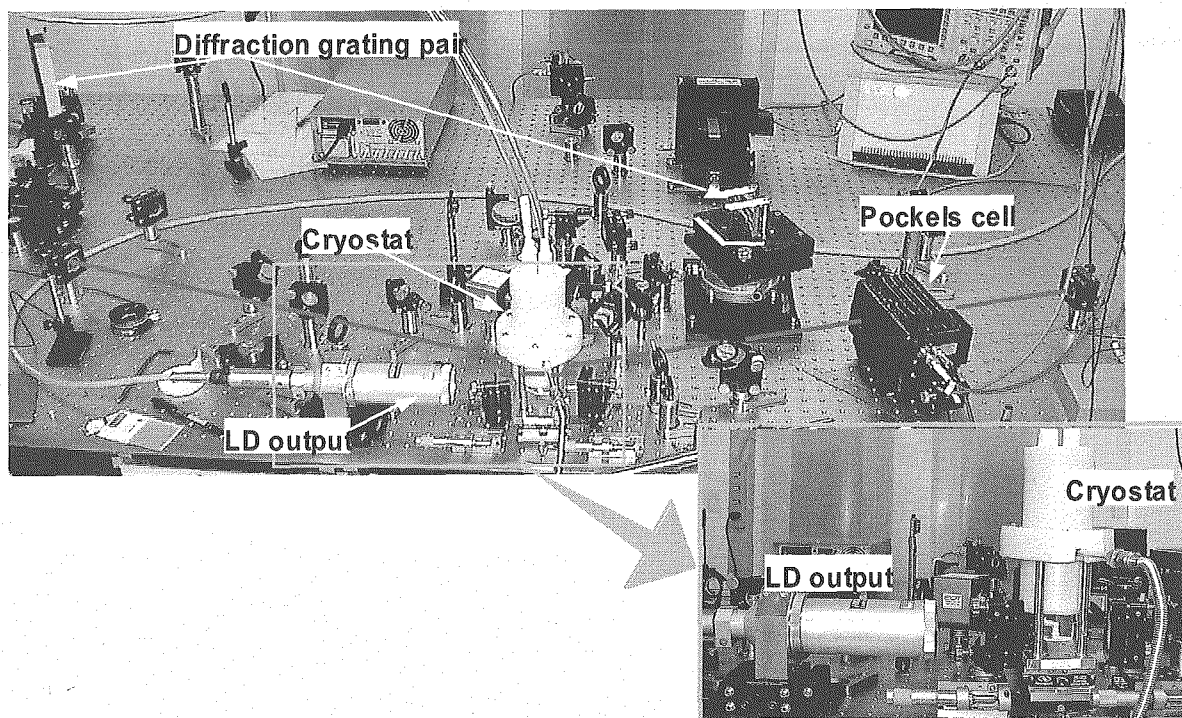


Fig.3 LN-cooled Yb-YLF regenerated amplifier.

冷却することにより、飽和フルーエンスが下がるだけでなく、結晶の熱抵抗を YAG 結晶の半分にまで下げることができるため高平均出力を得ることができる。励起にはファイバー結合型の 100 W 出力 LD を用いている。Fig.4 は再生増幅器の入出力特性である。共振器中を約12往復させることにより、パルスエネルギー60 mJ が  $10^9$  倍の利得と共に得られている。再生増幅器単体としては最高の出力エネルギーである。

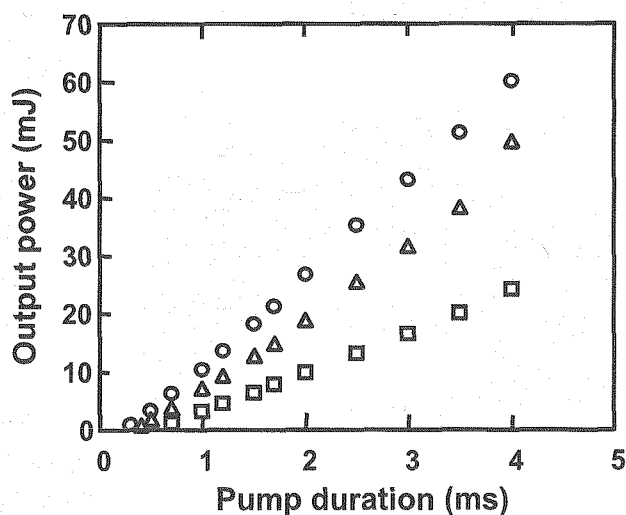


Fig.4 Output laser pulse energy as a function of pump pulse duration with a pump-power of 53 W (□), 73 W (△), and 93 W (○), respectively.

### 3. まとめ

Yb 系レーザーは吸収、放出断面積が小さいため、高エネルギー密度で動作する。上準位寿命が長いいためエネルギー蓄

積能力に優れ、CW-LD 励起で高繰り返しパルス動作に適している。吸収・放出のエネルギー差が小さく熱の発生は小さい。一方、常温では基底状態からの吸収がレーザーの引き出し効率、利得帯域幅を制限する。低温動作により効率・帯域幅の著しい向上が期待できる。

#### 4. 参考文献

- [1] Junji Kawanaka, Koichi Yamakawa, Hajime Nishioka, and Ken-ichi Ueda, "Improved high-fined laser characteristics of a diode-pumped Yb:LiYF<sub>4</sub> crystal at low temperature," Optics. Express Vol.10 pp.920-926(2002).
- [2] J. Kawanaka, K. Yamakawa, H. Nishioka, K. Ueda, "30-mJ, diode-pumped, chirped-pulse Yb:YLF regenerative amplifier," Optics Letters Vol.28 pp.2121-2123(2003).



## 5.2 Target Positioning and Composition in High-Energy Proton Production by the Laser-Solid Interaction

Y. Wada<sup>\*</sup>; A. Ogata<sup>†</sup>

AdSM, Hiroshima University, Kagamiyama, Higashi-Hiroshima 739-8526

S. Nakamura, Y. Iwashita, R. Inoue, T. Kanaya,  
ICR, Kyoto University, Gokasho, Uji Kyoto 6111-0011

H. Daido

KPSI, JAEA, Umemidai, Kizu-cho, Souraku-gun, Kyoto 619-0215

July 28, 2006

**keywords :** proton generation, proton acceleration, laser-matter interaction, deuteron substitution.

**abstract :** This paper reports two findings which enhance the efficiency of the proton generation in the laser-solid interaction. First, the number and maximum energy of protons is enhanced by four orders of magnitude and by a factor of five, respectively, if the target is positioned before the laser waist, and if the laser is accompanied by prepulses. Second, the maximum energy is enhanced by 25%, if the polystyrene target is deuterated. These findings open up the possibility of MeV proton production by a TW-class laser.

### introduction

Laser-driven energetic ion beam generation using a compact table-top laser holds promise

<sup>\*</sup>Present address: Megaopto Co., Ltd., RIKEN, Cooperation center, W414, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0106.

<sup>†</sup>Present address: ISIR, Osaka University, Mihogaoka, Ibaraki 567-0047.

for application to a particle injector or a pre-accelerator for an ion accelerator. This paper reports two findings which enhance the efficiency of the proton generation. First, if the target is positioned before the focal point of the laser accompanied by prepulses, the number and maximum energy of protons is enhanced by four orders of magnitude. Second, the maximum energy is enhanced by 25% when most of hydrogens of a hydrocarbon target is deuterated. These findings open up the possibility of MeV proton production by a TW-class laser.

### target positioning

We used a commercial Ti:Sapphire laser system (B. M. Industries,  $\alpha$ -Line series) based on the chirped pulse amplification technique generating up to 50 mJ, 50 fs (1 TW) pulses. The wavelength of the laser is 800 nm and the repetition rate is 10 Hz. The laser system is not equipped with a pulse cleaner, so each main pulse was accompanied by prepulses. Observations by a photodiode detector told that there is a train of prepulses 5 ns, 8.5 ns, 17 ns, 26 ns, and 34.5 ns before the main pulse and their en-

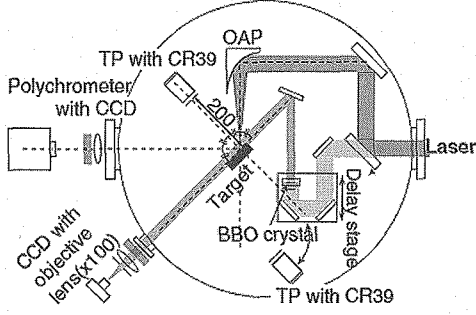


Figure 1: Experimental setup.

ergies are  $10^{-3}$  to  $10^{-4}$  that of the main pulse. All of the prepulses leak from the regenerative amplifier cavity. Although they are compressed, their pulse widths are not the same as that of the main pulse because they do not have the same dispersion in the laser system.

Figure 1 shows our experimental setup. The experiments were carried out in a cylindrical vacuum chamber 400 mm in radius and 200 mm in depth under a typical pressure of  $\sim 5 \times 10^{-3}$  Pa. A p-polarized laser was split into two. The weak branch was used to obtain shadowgrams. An  $f = 300$  mm off-axis parabola mirror (OAP) focused the strong branch on a target in the chamber with an angle of incidence of  $\sim \pi/6$ . The laser intensity on the target was up to  $1.6 \times 10^{17}$  W  $\text{cm}^{-2}$ . The measured spot size ( $w_0$ ) was 11  $\mu\text{m}$  in half width at  $e^{-2}$  of maximum and the Rayleigh length ( $Z_R$ ) was 0.44 mm. We used Al, Polyethylene and Mylar ( $\text{C}_{10}\text{H}_8\text{O}_4$ ) $_n$  as the target foils, but this paper reports only on 2.5  $\mu\text{M}$ -thick

Ions and neutral particles were obtained on both sides of the target foil by the laser irradiation, into the directions normal to the target surfaces. Henceforth, we define “forward” as the laser penetration side, and “backward” as the laser reflection side. It was found that

ion production has an optimum target position when the main laser pulse is accompanied by prepulses that evaporate the target.

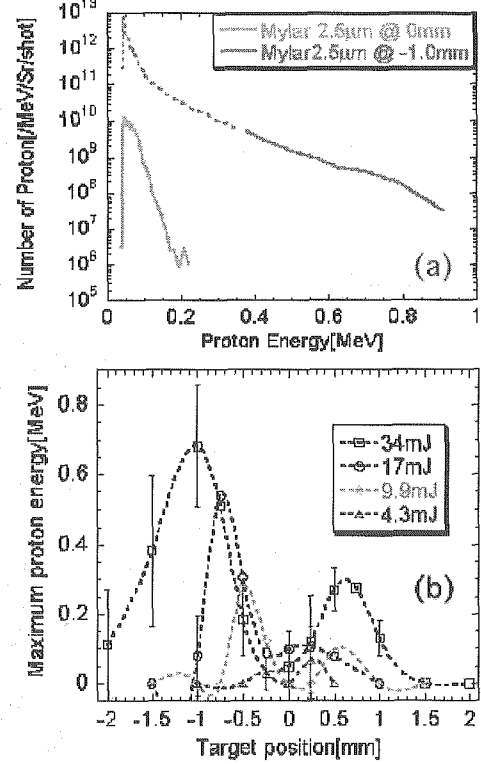


Figure 2: (a) Proton energy spectra obtained at the waist and at the optimum position. (b) Maximum proton energies as a function of target positions observed on forward side with various laser energies.

First, we measured the size of a hole bored by a laser pulse on a foil target, changing the distance between the OAP and the target. We assumed the position of the minimum hole size as the waist.

We varied the distance from the OAP to the target, irradiated the target, and measured the energies of generated particles. Two Thomson parabolas having apertures of 0.5 mm in diameter, each with a CR39 detector, were set in the direction normal to the target in the forward

and backward directions, respectively, 100 mm from the irradiation point. The present paper mainly reports the results obtained on the forward side.

Figure 2(a) compares two typical proton energy spectra generated from 2.5 $\mu$ -thick Mylars, at the laser waist and at the optimum position, 1mm before the waist, on forward side. The maximum proton energy was 900 keV at -1.0 mm, which was about five times as large as that at 0 mm. The number of ions at -1.0 mm was four orders of magnitude larger than that at 0 mm. The maximum proton energies observed on forward side from 2.5 $\mu$ m-thick Mylar foils are shown as a function of the target positions in Fig. 2(b) for various laser energies.

The target positions giving the maximum proton energies did not coincide with the laser waist. Instead, two positions existed that gave the local maxima: one 0.5 to 1.5 mm before the waist, and the other 0 to 1 mm behind the waist. As the laser energy became smaller, the target position giving the maximum proton energy became closer to the laser waist. The positions before the waist gave larger energies to the protons than those behind the waist. The same tendency was obtained in the backward direction.

It was found that the intensity of the prepulses strongly influences the proton energies. A larger prepulse resulted in smaller proton energy. Although we have the lower limit in the realizable prepulse intensity, there should be an optimum intensity. Maksimchuk et al. [1] reported the existence of optimum intensity and timing of the prepulse, although their experimental conditions were different from ours.

We have introduced a model to explain these experimental results that the energy of generated ions is not highest at the beam waist[2]. In our model, a prepulse first evaporates or ablates the surface of the target to create a neutral gas layer in front of the target. The nonlinear refractive index proportional to the

intensity of the main pulse guides the main pulse itself. The main pulse with a smaller radius than in a vacuum thus interacts with the target, enabling more efficient ion generation. If the target position coincides with the waist, the prepulse intensity is, however, too high to create neutral gas. The prepulse creates plasma instead. The plasma density distribution is highest on the laser axis, which diffracts the main pulse.

A blueshift of  $\sim 15$  nm or  $\sim 1.88\%$  in the main pulse was observed in the present experiment. This supports the creation of neutral gas by the prepulses, because the blueshift is caused by the difference of refraction experienced by the main pulse; i.e., the head of the main pulse is refracted by the neutral gas left by the prepulses, while the tail is refracted by the plasma created by its own head [3]. The shadowgrams also showed that the plasmas were created not by the prepulses but the main pulse[2].

The prepulse fluence of  $10^{-3}$  of the main pulse was 0.2 to 9 J cm $^{-2}$  depending on the spot size on the target. We deduce that this value is around the threshold of ablation by femtosecond laser, because the single pulse threshold is 2.6 J cm $^{-2}$  in polymethyl methacrylate and 1.7 J cm $^{-2}$  in polycarbonate for a laser pulse width of 150 fs [4], although that in Mylar has not been reported.

### target composition

It was found that the deuterium substitution for hydrogens in hydrocarbon targets enhances both the number and energies of protons generated at the laser irradiation. The experiments used the same experimental setups, with the laser energy of 40 mJ and the pulse width of 40 fs. The target was polypropylene with deuteration molecular ratios of 98 %, 36 %, 0 %. The Spin coat process fabricated the target films with 2  $\mu$ m thick, which were desic-

cated in vacuum of 2 Pa at 373K for several hours. Deuterons ( $d^+$ ) and full-stripped carbons ( $C^{6+}$ ) have the same traces on Thomson parabola CR39 tracks, but they are distinguishable which have different sizes.

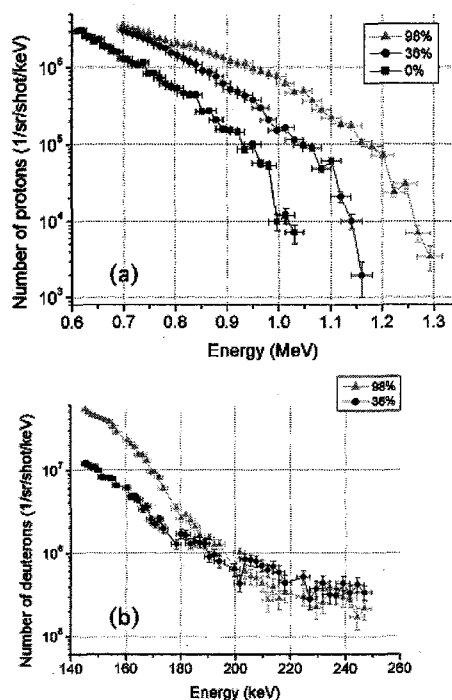


Figure 3: Proton (a) and deuteron (b) energy spectra obtained from deuterated targets.

Figure 3(a) shows proton energy spectra at three ratios of substitution on forward side. Five shots were accumulated in each measurement. The maximum energies of protons were 1.26 MeV, 1.15 MeV and 1.02 MeV at 98 %, 36 % and 0 % substitution ratios, respectively. It was found that both the number and the energies of protons were clearly related to the substitution ratios. The maximum energy is enhanced by 25 % in the 98 %-substituted sample.

Figure 3(b) shows deuteron energy spectra. Comparing two figures (a) and (b), we notice

that the protons are mainly accelerated even in the case of the 98 % substitution ratio, in spite that we had desiccated the target before the irradiation.

We consider that the deuterated targets are more rigid than non-deuterated ones, so that they maintain the acceleration structure longer. Results of simulation studies will be published elsewhere.

## summary

We detected energetic protons in the interaction between a 1 TW, 50 fs, and  $10^{-3}$  contrast laser and thin foils. It was found that of-the-waist positioning of the target enhances the production of energetic protons. It was also found that the deuterated hydrocarbon targets yield more high-energy protons.

A recent study shows that the maximum proton energies should be scaled not by the laser intensities but by the fluences in an ultra-short pulse regime such as several tens of femtoseconds [5]. It tells that the laser fluence of more than  $10^5 \text{ J cm}^{-2}$  is necessary to generate MeV protons. The findings in this paper suggest that the fluence smaller with the order of magnitude could generate the MeV protons.

## References

- [1] A. Maksimchuk, et al., Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 4108.
- [2] Y. Wada, Jpn. J. Appl. Phys. **44** (2005) 3299.
- [3] Wm. M. Wood, et al., Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 3523.
- [4] S. Baudach, et al., Appl. Surface Sci. **154-155** (2000) 555.
- [5] Y. Oishi, et al., Phys. Plasmas **12** (2005) 073102.



### 5.3 エネルギー回収型ライナックを用いた高出力コヒーレント・ テラヘルツ放射光の観測

#### Observation of High-Power Coherent Synchrotron Radiation in the THz Region from the JAEA Energy Recovery Linac

高橋 俊晴<sup>A)</sup>、奥田 修一<sup>B)</sup>、峰原 英介<sup>C)</sup>、羽島 良一<sup>C)</sup>、沢村 勝<sup>C)</sup>、永井 良治<sup>C)</sup>、菊澤 信宏<sup>C)</sup>、  
飯島 北斗<sup>C)</sup>、西谷 智博<sup>C)</sup>、西森 信行<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> 京都大学 原子炉実験所

<sup>B)</sup> 大阪府立大学 産学連携機構

<sup>C)</sup> 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

Toshiharu TAKAHASHI<sup>A)</sup>, Shuichi OKUDA<sup>B)</sup>, Eisuke J. MINEHARA<sup>C)</sup>, Ryoichi HAJIMA<sup>C)</sup>,  
Masaru SAWAMURA<sup>C)</sup>, Ryoji NAGAI<sup>C)</sup>, Nobuhiro KIKUZAWA<sup>C)</sup>, Hokuto IJIMA<sup>C)</sup>,  
Tomohiro NISHITANI<sup>C)</sup>, Nobuyuki NISHIMORI<sup>C)</sup>

<sup>A)</sup> Research Reactor Institute, Kyoto University

<sup>B)</sup> Frontier Science Innovation Center, Osaka Prefecture University

<sup>C)</sup> Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

The energy recovery linac (ERL) is able to generate high-power coherent synchrotron radiation (CSR) in the terahertz and the millimeter-wave regions, because it produces shorter bunches than usual storage rings and a higher current than conventional linacs. The spectrum of CSR has been measured at the JAEA-ERL in the wavenumber range from 0.5 to 15 cm<sup>-1</sup>. The detected power was 2×10<sup>-4</sup> W/cm<sup>-1</sup> at 2.5 cm<sup>-1</sup> for the average beam current of 17.7 μA. When the infrared FEL was operated with the undulator in the ERL, the CSR spectrum was shifted to the longer wavelengths because of the energy broadening of the electron beam.

**Keywords: THz, Coherent, CSR, ERL, High Power**

#### 1. はじめに

コヒーレント放射光(CSR)は1989年に東北大核理研ライナックで初めて観測されて以来[1]、線型加速器でのビーム診断に利用されているほか、ミリ波・サブミリ波領域(最近ではテラヘルツ領域と呼ばれる)の新型光源として分光研究に使われている。最近では蓄積リングにおいてもCSR発生の基礎研究や分光利用を行う施設も増えている。一方、これまでの歴史的な分光法とは一線を画すテラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)を用いた新たな分光研究が急速に拡大することにより、この波長領域への関心が増え、CSRは高輝度のテラヘルツ光源として注目されている。CSRについての解説はいくつかあるが、最近では文献[2]にCSRの歴史的経緯や研究の進展に関するレビュー記事がある。CSRに関する話題で最近特に注目を集めたのが、米Jefferson Lab.のエネルギー回収型ライナック(ERL)における、1 W/cm<sup>-1</sup>にも及ぶ大強度CSRの観測[3]であり、放射光研究者ばかりでなく、テラヘルツ領域の分光研究者にも大きな

インパクトを与えており、ERL における CSR が高輝度テラヘルツ光源として大きな期待を集めている。

ERL は本来、X線自由電子レーザーと共に、X線領域における新世代の放射光源の候補として注目されている。基本コンポーネントは入射器、超伝導ライナック、周回部、ビームダンプから成り、ライナックを出て周回部を一周し再び加速空洞に戻ってきた電子は、減速位相に乗せられエネルギーを失い、そのエネルギーは RF パワーとして加速空洞に戻される。従って、外部からわずかな RF パワーを補給するだけで大電流・高エネルギーの電子ビームを作り出すことができる。その点では蓄積リングと似ているが、ERL では基本装置が線型加速器であり電子は周回部を一周するだけであるから、蓄積リングに比べてバンチ長が短い、ビーム断面が真円に近いなどの特徴がある。Table 1 に三種類の放射光源の特徴を比較して示しているが、赤外放射光のユーザーにとっては、近赤外からミリ波にわたる非常に広帯域で高輝度の光を得られる ERL は非常に魅力的である。

Table. 1. Comparison among three types of IR radiation sources.

	Storage Ring	Linac	ERL
Bunch Length	long	short	short
Repetition Rate	large	small	large
Average Current	large	small	large
Usable Wavelength region in IR	(IRSR) NIR~FIR	(CSR) mm- and sub-mm wave	(IRSR+CSR) NIR~ mm-wave

わが国においては、日本原子力研究開発機構(JAEA)に高出力赤外 FEL のための ERL が設置されている。赤外 FEL だけでなくテラヘルツ CSR も利用に供することを目指し、CSR のスペクトルを観測するとともに、赤外 FEL を発振させた状態で、下流における CSR スペクトルがどう変化するかも併せて測定した。

## 2. 実験方法

実験は、日本原子力研究開発機構エネルギー回収型超伝導ライナック自由電子レーザー施設で行った。この加速器の概略図を Fig. 1 に示す。アンジュレータにおいて赤外 FEL 発振させた時の CSR の変化が観測できるよう、2nd ARC 部の偏向電磁石（軌道半径 20 cm）に CSR 観測用の光学系を設置した。電子ビームのパラメータは、エネルギー 17 MeV、バンチ繰返し 20.8 MHz、マクロパルス幅 230  $\mu$ s、繰返し 10 Hz であり、平均電流は 17.7  $\mu$ A、マクロパルスピーク電流は 7.7 mA であった。設置した分光装置の模式図を Fig. 2 に示す。本来この光学系は 80 mrad の受光角で CSR を集光するよう設計されているが、CSR の強度が非常に大きく検出器が飽和してしまったため、やむを得ずミラーの一部をマスクし、受光角を 37 mrad に制限して測定を行った。合成石英の真空窓 W（厚さ 8.2 mm）から大気中に取り出されたコヒーレント放射光は、焦点距離 1500 mm の球面鏡 M2 で平行光束にされ、光学定盤に設置された Martin-Puplett 型フーリエ干渉分光計に

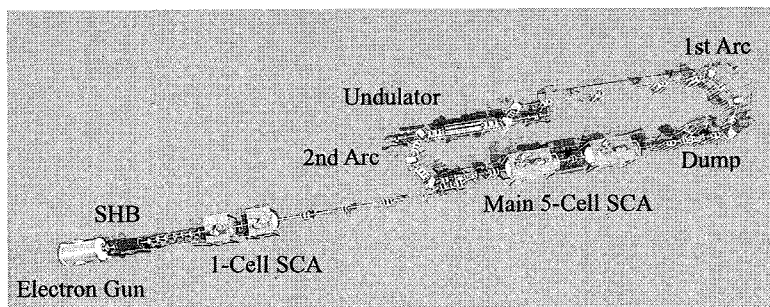


Fig. 1 Layout of JAEA-ERL.

導かれる。この干渉計は、ビームスプリッターとして直径 10  $\mu$ m のタングステンワイヤーを 25  $\mu$ m 間隔に張ったワイヤグリッドを使用した偏光分割方式の干渉計である。最初の偏光子 BS1 で反射と透過の 2 方向に分割し、反射光はビームスプリッ



ターBS2、移動鏡 MM、固定鏡 FM からなる干渉計部へ導かれる。移動鏡により光路差を変化させて重ね合わされた光は検出器Dで検出されインターフェログラムを得る。検出器は液体ヘリウム冷却の Si ボロメータであり、ミリ波検出用に内部のパーツが大きいサイズに変更された特注品を用いている。光強度が十分大きいため検出器付属のプリアンプは使用せず、ロックインアンプを用いてマクロパルスのタイミング信号と同期した信号のみを増幅した。

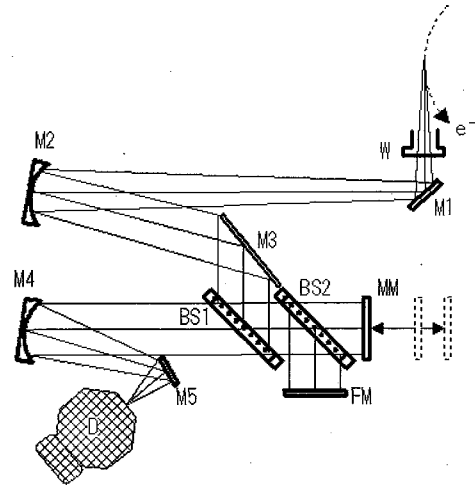


Fig. 2 Schematic diagram of the experiment: W, vacuum window; M1, M3, M5, flat mirrors; M2, M4, Spherical mirrors; FM, fixed mirror; MM, movable mirror; BS1, BS2, beam splitters; D, Si bolometer.

### 3. 実験結果

#### 3.1 コヒーレント放射光のスペクトル

観測されたスペクトルをFig. 3に丸印で示す。横軸は波数（波長の逆数）で表し、縦軸は光の強度を0.1%バンド幅あたりのワット数で表している。このスペクトルは輝度ではなく受光角37 mradで取り込んだフラックスである。また縦軸の強度は、擬似的に4000 Kの黒体放射とみなすことができる高圧水銀灯(100 W)を光源として同一の光学系で測定し校正した。0.5~15 cm<sup>-1</sup>の範囲でスペクトルが得られており、2.5 cm<sup>-1</sup>付近で

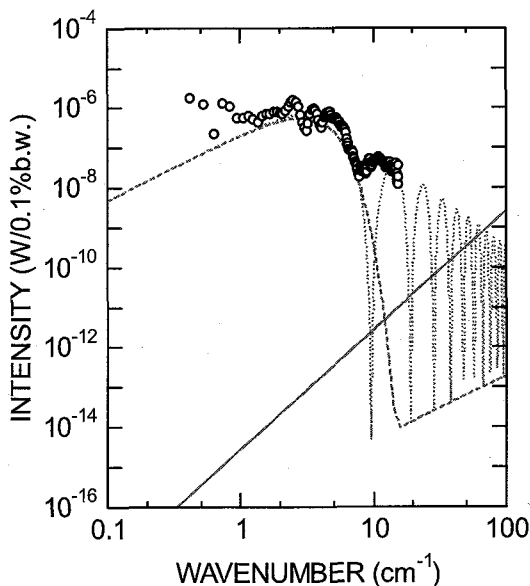


Fig. 3 Observed CSR Spectrum (circles) and the spectrum of a high pressure mercury arc lamp (dotted curve). The dashed curve shows the calculated CSR spectrum of 4ps Gaussian bunch and the dotted curve shows that of 3.5 ps (FWHM) triangular bunch.

1.6×10<sup>-6</sup> W/0.1%b.w. (6.4×10<sup>-4</sup> W/cm<sup>-1</sup>)の強度である。5 cm<sup>-1</sup>付近から短波長に向かって急激に強度が減少しており、10cm<sup>-1</sup>付近に小さな山が見える。実線は古くから光源として使われている高圧水銀灯の強度を表しており、破線は、バンチが半値全幅4 psのガウス分布と仮定したときの計算値である。5 cm<sup>-1</sup>付近の落ちはほぼ測定結果と合っているが、10 cm<sup>-1</sup>付近の構造を説明できない。

つまり、実際のバンチは単純なガウス分布ではないことがわかる。なお、点線は半値全幅3.5 psの三角形分布のバンチを仮定した時の計算値であるが、非ガ

ウス分布の場合には高調波成分のためにスペクトルが短波長に伸びる。なお、今回10 cm<sup>-1</sup>付近に観測されたような小さな構造は、線型加速器を使ったコヒーレント回折放射の観測で同様の報告がある[4]。

#### 3.2 電子バンチの解析

CSRのスペクトル形状は、バンチ形状因子 $f(v)$ を介して、バンチ内電子分布 $S(x)$ を反映する形になる[5]。従って観測されたスペクトルをもとにバンチ形状因子を計算し、そこから次式のようにバンチ内電子分布を求めることができる[6]。

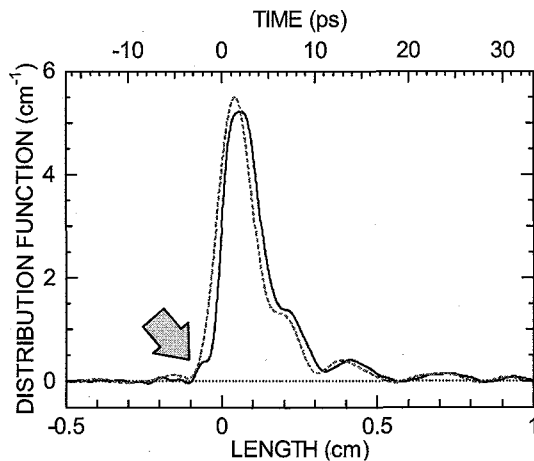


Fig. 4 Electron distribution in a bunch calculated from the observed CSR spectrum (solid curve). The dotted curve shows the distribution by neglecting the structure around  $10 \text{ cm}^{-1}$  on the CSR spectrum.

$$S(x) = 2 \int_0^{\infty} \sqrt{f(\nu)} \cos[2\pi\nu x - \psi(\nu)] d\nu \quad (1)$$

位相成分は、ある程度広い波長領域でスペクトルが得られていれば、Kramers-Kronigの関係を使って(2)式のように計算できる。

$$\psi(\nu_0) = -\frac{\nu_0}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\ln[f(\nu)/f(\nu_0)]}{\nu^2 - \nu_0^2} d\nu \quad (2)$$

この方法で求めたバンチ形状を Fig. 4 に実線で示す。横軸は軌道方向の長さと同時に時間でも示してある。縦軸は規格化されたバンチ内電子分布を表す。

$10 \text{ cm}^{-1}$  付近のスペクトル構造がバンチ形状とどう関連しているのか調べるため、バンチ形状因子でこの構造を無視した場合の計算結果を点線で示した。

両者を比較すると、図中矢印で示した部分の微細構造に現れていることがわかる。

### 3.3 赤外 FEL 発振下での CSR スペクトル

JAEA-ERL には発振波長  $22 \text{ }\mu\text{m}$  の大出力赤外 FEL 装置が挿入されている。これを発振させることによりバンチが密度変調を受けマイクロバンチングが起こり、3.1 節でミリ波領域に観測されていた CSR スペクトル分布が短波長側に伸びることが予想される。結果を Fig. 5 に示すが、予想とは逆にスペクトル分布が長波長側にシフトし、強度も弱くなっている。これはバンチ長が伸びたことを示している。ビームオブティクスから検証した結果、FEL で生じたバンチの密度変調は 2nd Arc 部まで保存されず、さらにエネルギー幅の増大( $\sim 10\%$ )によりバンチ自体が伸びることがわかった。

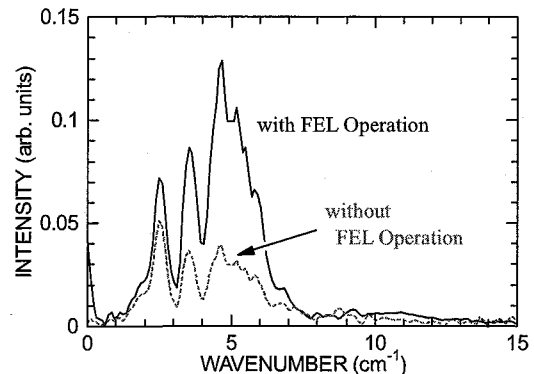


Fig. 5 CSR spectrum under operation of IR-FEL (dotted curve) and the usual CSR spectrum (solid curve).

## 4. おわりに

今回、国内唯一の ERL である JAEA-ERL で CSR の観測を行い、スペクトルなど基礎的性質を調べたが、今後は、CSR の分析光としての利用、あるいは励起光としての利用など高輝度テラヘルツ光源としての利用も進める予定である。

## 参考文献

- [1] T. Nakazato, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **63**, 1245 (1989).
- [2] 高橋俊晴, “コヒーレント放射光”, 加速器 **2**, 11-19 (2005).
- [3] G. L. Carr, *et al.*, Nature **420**, 153 (2002).
- [4] Y. Shibata, *et al.*, Phys. Rev. E **52**, 6787 (1995).
- [5] K. Ishi, *et al.*, Phys. Rev. A **43**, 5597 (1991).
- [6] R. Lai and A. J. Sievers, NIM A **397**, 221 (1997).



## 5.4 X線レーザーにおけるプラズマ媒質の増幅利得に関する

### 数値シミュレーションによる研究

#### Numerical analysis of plasma medium of transient collisional excited x-ray laser

錦野将元<sup>1)</sup>、大西直文<sup>2)</sup>、佐々木明<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 光量子ビーム利用研究ユニット

<sup>2)</sup>東北大学 工学部機械航空工学科

Masaharu NISHIKINO<sup>1)</sup>, Naofumi Ohnishi<sup>2)</sup>, Akira Sasaki<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>Advanced Photon Research Center, Kansai Photon Science Institute,  
Japan Atomic Energy Agency

<sup>2)</sup>Department of Aeronautics and Space Engineering, Tohoku University

Two-dimensional radiation hydrodynamics simulations have been performed to investigate the effects of plasma medium flowfield on the x-ray laser generation. After the main pumping pulse irradiation, a blast wave is created due to local energy deposition and a density dip is formed behind it. Three-dimensional ray-tracing of x-ray laser has been conducted with arranging 2D flowfield along the incident direction. In this calculation, the size and the position of the area, which the non-refracted rays are distributed, are similar to the experimental results

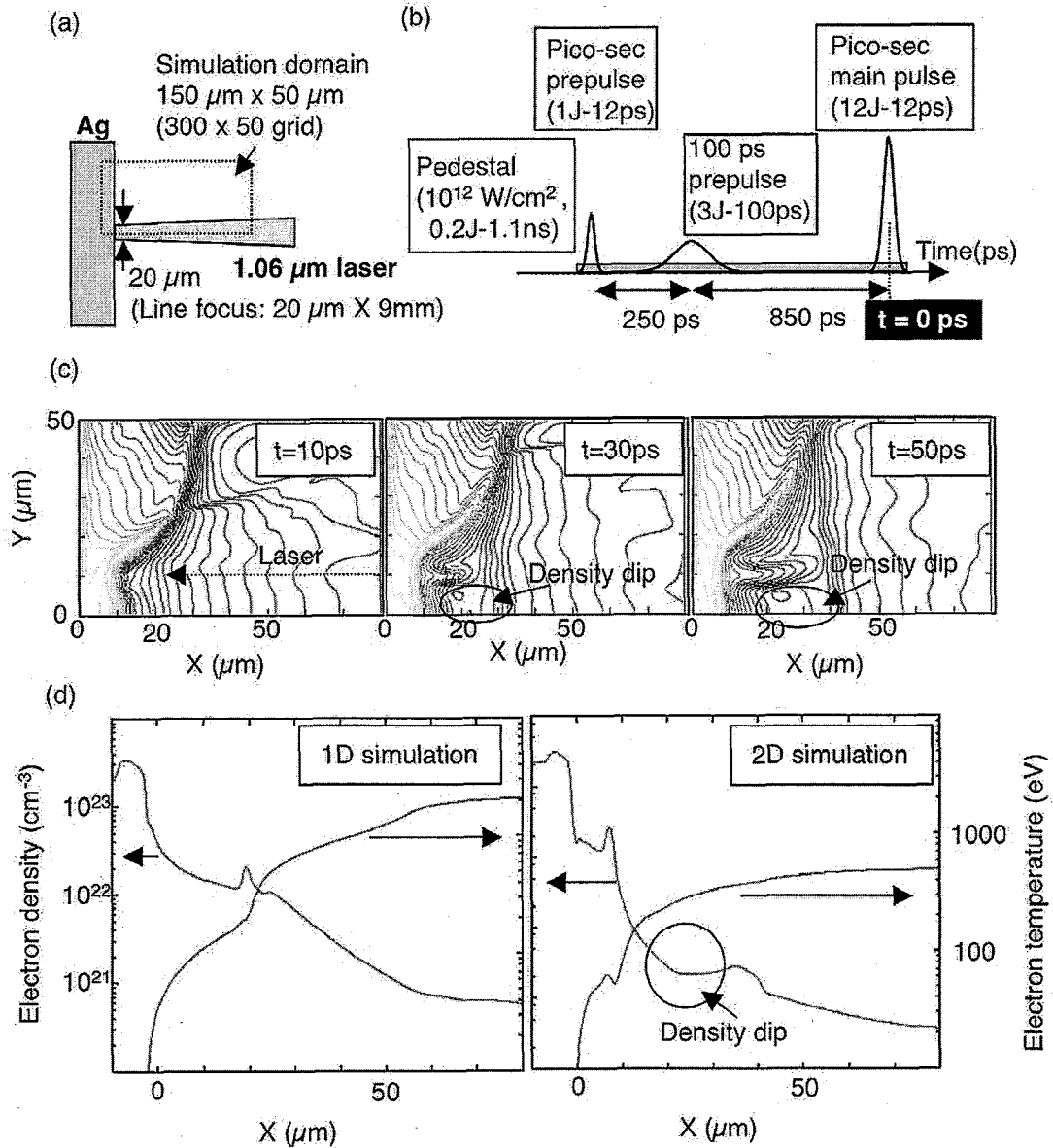
**Keywords: X-ray laser, Blast wave, 2D-simulation, 3D-ray tracing**

### 1. はじめに

X線レーザーの開発は高密度プラズマの計測等の応用を目的として研究がなされ、その中でも近年 2 つの Ag ターゲットを用いたダブルターゲット方式により高い空間コヒーレンスを持った 13.9 nm の X 線レーザーが得られた[1-3]。しかし、この方式で得られる高い空間コヒーレンスを持つ X 線レーザーのプラズマ媒質のゲイン領域生成については未だ十分に理解されていない。X 線レーザーを発生するプラズマ媒質は固体ターゲット等に高強度レーザーを照射することで得られるが、実験で得られている X 線レーザーの近視野像のゲイン領域は単純な半円柱状の分布になっておらず非対称な分布になっている[3]。しかし現状では、実験的にプラズマ媒質の状態を十分に知ることができず、それが解析を困難にしている原因の 1 つである。そこで我々は、2 次元の数値シミュレーションによって固体ターゲット表面に生成されたプラズマ媒質の解析を試み、プラズマ媒質内に生成されたブラスト波が X 線レーザーの伝搬、増幅に影響している可能性があることを示した[4]。本研究ではより現実的なプラズマの流体シミュレーションを行い、さらに X 線レーザーの伝搬に対して光線追跡による計算を行うことでそのようなことが起こる可能性があるかどうかを調べた。

## 2. 計算手法

数値計算法の基本的な部分は以前までの報告[4]と同様であるが、本研究では電子とイオンの熱非平衡性を考慮し、2 温度を仮定した方程式を基礎方程式とした。また、現実的な状態方程式を導入し、固体ターゲットからプラズマ生成の過程をより精密に再現することを可能とした。さらに、照射するレーザーも2次元の光線追跡を行うことで、逆制動放射によるレーザー吸収の電子密度勾配による影響も考慮した。



**FIGURE 1.** (a) Simulation domain of the second target of the double-target x-ray laser. (b) The pulse condition of the simulation. (c) Contour plots of the electron density. (d) The Comparison of the electron density and the electron temperature with 1D simulation and 2D simulation.

### 3. 計算条件

数値シミュレーションはFig. 1(a)に示すようにダブルターゲット方式における第2ターゲットの表面とその付近について行った。図の右側から線集光を模擬して幅  $20\mu\text{m}$  のレーザーを照射する。なお、本計算では発散角を持たせず平行入射させ、入射レーザーの空間強度分布も一様にした。第2ターゲットに照射するレーザーの基本的な条件は、Fig. 1(b) に示すように1J、12ps と3J、100ps の2つのプレパルスと12J、12ps のメインパルスを照射する場合の2通りである。また本研究では、メインパルスに先行する増幅自発放射(ASE)を模擬するため、 $10^{12}\text{ W/cm}^2$  のペDESTALを与えた。これまでの研究において、ペDESTALによりプラズマ媒質におけるゲイン生成への寄与が非常に重要であることが指摘されている[5]。

### 4. 計算結果および考察

Figure 1(c)は、メインパルス照射後50psにおける電子数密度の等高線を示す。プレパルスで予備的にターゲット表面に形成されたプラズマにメインパルスを照射すると、非常に短時間に局所的な加熱が起こるため、ターゲット表面付近にブラスト波が形成される。ブラスト波が半円筒状に広がっていくにつれ、その中心では密度は低下していき、局所的な窪みを形成する。これはFig. 1(d)で見られるように、平板の1次元計算では形成されず、2次元計算によって初めて再現される現象である。後述のように、この密度の窪みが第1ターゲットから入射したシードX線レーザーの伝搬に大きな影響を及ぼす。

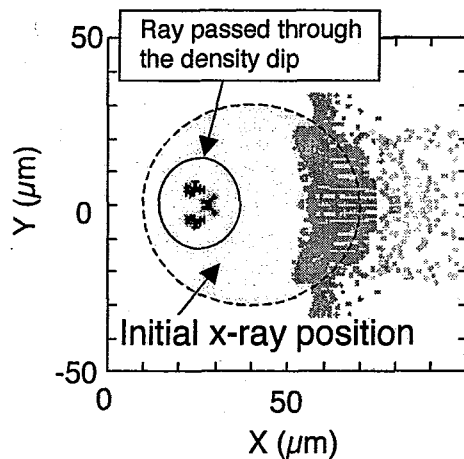


FIGURE 2. The ray positions at the plasma termination of 9 mm.

次に電子数密度分布の計算結果を時系列で並べ、第1ターゲットから入射したシードX線レーザーの伝搬の様子を3次元の光線追跡により調べた。メインパルス照射から25ps後にX線レーザーを入射させ3次元光線追跡を行うと、ブラスト波の後方に形成された密度構造の窪みに入射した光線が、屈折の影響をあまり受けずに閉じ込められたような状態になることが確認できた。また、この窪みの電子数密度は  $10^{20}\sim 10^{21}\text{ W/cm}^3$ 、電子温度は300~500 eVになっており、ちょ

うど以前の研究によって利得領域になると予想されているプラズマ状態[5]に近くなっている。この窪み構造ではX線レーザーが屈折しにくいだけでなく増幅もされる可能性が高いことが考えられ、高コヒーレントレーザーが生成されることを示唆している。ターゲットのプラズマ終端では、Fig. 2 のような光線の分布が得られる。ここで図中の灰色の点は光線の入射位置を表す。この3次元光線追跡の計算結果において、予想されるゲイン領域を通過する光線の長さをゲイン長と考えるとその長さは最大で 8mm 程度になり、実験結果[3]から得られている最大のゲイン長に近いことがわかった。また、実験から得られている近視野像は、ターゲット表面から 20  $\mu\text{m}$  あたりに大きさが 20  $\mu\text{m}$  程度のX線レーザーのゲイン領域が存在している。この計算結果との比較より実験においても密度の窪み構造が生成してその場所で屈折の影響を受けずに伝搬してきたX線レーザーが増幅されたと考えられる。

## 5. まとめ

2次元輻射流体コードを用いてダブルターゲット方式のX線レーザープラズマ媒質について調べた。その結果、メインパルス入射後にターゲット表面付近でブラスト波が形成され、その中心で低密度の領域が形成されることがわかった。3次元光線追跡によって第1ターゲットから入射したX線レーザーがどのように屈折するかを調べたところ、ブラスト波の背後に形成された密度の窪みを通る光線は屈折の影響を受けにくいことがわかった。また、その領域は利得領域になる可能性が高く、高コヒーレントレーザーが増幅されると考えられる。今後は原子過程計算と結合することで利得領域を特定し、実際に密度の窪みでX線レーザーが増幅されるかを調べる予定である。

## 参考文献

- [1] M. Tanaka *et al.*, Opt. Lett. **28**, 1680(2003).
- [2] M. Nishikino *et al.*, Phys. Rev. A **68**, 061802(R) (2003).
- [3] M. Nishikino *et al.*, IEEE Journal of Selected topics in quantum electronics, vol. **10**, November/December 2004, 1382(2004).
- [4] 大西直文, 錦野将元, JAERI-Conf 2005-004, 86.
- [5] T. Kawachi *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 033815(2002).



## 5.5 コヒーレント X 線レーザー照射による Xe クラスターの 光吸収・電離過程の解明

Photoabsorption and ionization processes in Xe cluster plasma produced by coherent X-ray laser

難波慎一<sup>A)</sup>、長谷川登、錦野将治、岸本牧、河内哲哉、田中桃子、山谷寛、  
助川鋼太、越智義浩、永島圭介、多幾山憲<sup>A)</sup>

A) 広島大学大学院工学研究科機械システム工学専攻

日本原子力研究開発機構 光量子ビーム利用研究ユニット X 線レーザー利用研究グループ

Shinichi NAMBA<sup>A)</sup>, Noboru HASEGAWA, Masaharu NISHIKINO, Maki KISHIMOTO,  
Tetsuya KAWACHI, Momoko, TANAKA, Hiroshi YAMATANI, Kouta SUKEGAWA,  
Yoshihiro Ochi, Keisuke NAGASHIMA and Ken TAKIYAMA<sup>A)</sup>

A) Graduate school of Engineering, Hiroshima University

Advanced Photon Research Center, X-ray laser research Group, Japan Atomic Energy Agency

Xe clusters were irradiated with X-ray laser pulse ( $\lambda=13.9$  nm, pulse width  $\sim 7$  ps, intensity  $\leq 2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>). The large Xe clusters with average sizes from  $10^3$  to  $10^6$  atoms/cluster were prepared by adiabatic free expansion of high stagnation gas into vacuum through a supersonic nozzle. The cross section for inner-shell ionization of Xe 4d electron ( $1.6 \times 10^{-17}$  cm<sup>2</sup>) is by ten times larger than photoionization of valence electron. The inner-shell ionization process, therefore, dominates over that of the outermost electron in Xe cluster subjected to high-intensity X-ray laser pulse. In order to investigate the photoionization and inner-shell decay processes in the cluster plasma, Xe<sup>q+</sup> ion yield was measured with a time-of-flight mass spectrometer.

For high intensity pulse and larger cluster, the anomalous enhancement of Xe<sup>3+</sup> ion yield to Xe<sup>2+</sup> ion has been observed. This result indicates that the double Auger decay process dominates the normal Auger process ( $N_{4,5}OO$ ), which has not been observed in the similar experiment with synchrotron radiation.

In this paper, the cluster dynamics associated with the inner-shell ionization and subsequent Auger decay is described in detail.

Keywords: X-ray laser, Cluster plasma, Inner-shell ionization

### 1. はじめに

波長域が赤外から紫外線までのフェムト秒高強度レーザーをキセノンなどの希ガスクラスターに照射すると効率よくレーザーエネルギーの吸収が起こり、高エネルギー粒子の発生や高輝度 X 線源への応用が期待されている。そのため、実験・シミュレーションの両面から精力的な研究が行われている。

では、より短波長レーザーとクラスター相互作用では一体どのような現象が起こるのか、という研究に関しては実験に先行して Saalman らが分子動力学法を用いて数値計算を行った[1]。彼らは X 線領域ではレーザー電場による電子振動の振幅・エネルギーが小さいことから逆制動放射による電子加熱が抑制され、価数の高いイオンや高エネルギーイオンの発生は期待できないこ

とを報告している。

一方、実験的な相互作用の研究は最近の真空紫外自由電子レーザー(VUV-FEL)の出現までは未開の領域であった。Wabnitz らは波長 98 nm, パルス幅 100 fs、強度  $\sim 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> の VUV-FEL をキセノンクラスターに照射する実験を行い、Xe 原子 1 個当たり実に 30 個の光子を吸収し、クーロン爆発が起こることを明らかにした[2]。前述したように、電子加熱機構が抑制されるため、何故このように大量の光子が吸収されるのかとすることに於いて様々な理論的な研究が進められている。例えば、Santra らはクラスタープラズマ中ではデバイ長がクラスターサイズよりも小さくなることに着目し、クーロンポテンシャルとしてこの寄与を考慮することにより、逆制動放射による加熱が可能であることを示した[3]。また、Jungreuthmayer らは VUV レーザーのような高い光子エネルギーの場合、クラスター内部では超強結合プラズマが生成され、“多体再結合”という新しい概念を導入することにより、実験結果を説明することに成功している[4]。

本研究の目的は、VUV-FEL と比較してさらに波長が短い X 線レーザー(13.9 nm)とキセノンクラスター相互作用に伴う内殻電離機構を解明することにある。波長 13.9 nm はクラスターサイズと同程度であり、さらに光吸収により内殻電離を引き起こすことが可能となる。また、紫外・赤外領域のレーザーよりも遙かに電子の振動振幅、及び、ポンデロモータビエエネルギーが小さいため、クラスター内での逆制動放射によるレーザー光の吸収を排除することが可能となる。

今回は特に、X 線レーザーをキセノンクラスターに照射して生成される多価イオンを飛行時間分解分析し、どのような素過程がクラスター中で生じているのかを調べた。X 線レーザーのピーク強度は  $\leq 2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>、パルス幅  $\sim 7$  ps である。キセノンクラスターは高背圧ガスを超音速ノズルから噴射させることにより生成した。

実験の結果、ノズル背圧、及び、レーザー強度を上昇させると Xe<sup>3+</sup>イオン生成量が Xe<sup>+</sup>、Xe<sup>2+</sup>イオンに対して相対的に増大していくことが判明した。また、Xe-He 混合ガスでは Xe<sup>3+</sup>イオンの生成量が Xe 純ガスを用いた場合と比較して高くなった。以上の結果から、クラスターが多価イオン生成に何らかの影響を及ぼしていることが明らかとなった。

## 2. 実験装置

実験は、日本原子力研究開発機構が所有するプラズマ励起軟 X 線レーザー発生装置を用いて行った。この X 線レーザーの特徴としては、波長 13.9 nm (分解能  $\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-4}$ )、パルス幅  $\sim 7$  ps、エネルギー  $> 100$  nJ である。集光は 2 m の焦点距離を持つ Mo/Si 多層膜球面鏡を用い、代表的なスポットサイズは縦横方向それぞれ 39、24  $\mu$ m である。

キセノンクラスターは高圧ガスを真空中に断熱自由膨張させる際に生成されるファンデルワールスクラスターである。超音速ノズルは広島大学で開発したものを使用し、スロート部で 0.2 mm の径を持つ。クラスターのサイズとしては、ノズル背圧を調整することにより  $10^3 \sim 10^6$  atoms/cluster と比較的大きなサイズのクラスターを生成した。さらに、よりクラスター生成効率を上げるために、Xe(30%)-He(70%)の混合ガスを用いる実験も行った(seeding 技術)。クラスタービームの時間・空間的密度分布などの特性は、あらかじめ高速イオンゲージにて測定し、ガス噴射と X 線レーザー入射時刻のタイミング調整に活用した。

X 線レーザー・クラスター相互作用に伴って生成される多価イオンは、Wiley-McLaren 型のイオン飛行時間分解分析装置(time-of-flight mass spectrometer, TOF-MS)で行った。フライトチューブ長は 55 cm で、検出器としては高速の MCP を用いた。また、本研究ではノズル出口とレーザー集光点の間に 1 mm  $\phi$  のスキマーを取り付けた。これにより、TOF-MS の分解能向上だけでなく、真空容器内に充満する低密度キセノンガスとレーザーとの相互作用を防ぐことができる。



さらに、実験はシングルショットで行うため、ショットごとに X 線レーザーの強度を計測する必要がある。そのため、クラスタービームを通過した X 線レーザーは集光点から 50 cm 下流に取り付けられている CCD カメラで計測を行った。

### 3. 実験結果

X 線レーザー・キセノンクラスター相互作用実験試みる前に、Ti:S レーザーを用いた TOF-MS 計測を行った( $\sim 80$  fs,  $\sim 2 \times 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>)。その結果、Xe<sup>10+</sup>イオンまでのスペクトルが観測され、イオンエネルギーは価数の増加に伴って線形的に増大することが判明した (Xe<sup>10+</sup>イオンのエネルギーは $\sim 10$  keV)。一般に、大きなクラスターでは流体的にプラズマが膨張していくということがこれまでの実験・シミュレーションで明らかになっているため、実験で用いたクラスタービーム源には大きなクラスターが多数存在することが確認できた。

さらに、Kr クラスターをターゲットとした実験も行った。というのも、Kr 3d 電子の内殻電離 (閾値 94eV) には本研究で用いたレーザー波長(89 eV)では不十分であり、クラスター内の原子の電離が最外核から始まると内殻から始まるのではどのような違いが生じるのかを調べるために有用と考えられるためである。実験の結果、予想通り Kr<sup>+</sup>イオンスペクトルのみが観測され、光電離に伴う光電子による電子衝突電離など付加的な原子過程が無視できることが分かった。

図 1 に X 線レーザーをキセノンクラスターに照射した場合に得られる TOF-MS を示す (ノズル背圧 P=18 atm)。X 線レーザーの強度 (CCD カウント数) は図中に記されている。この図から明らかなように、レーザー強度が増大すると Xe<sup>3+</sup>イオンの生成効率が上昇する様子が分かる。Xe<sup>3+</sup>イオンが生成される内殻ホール崩壊過程は、ダブルオージェ崩壊 (光電子と 2 個のオージェ電子が放出される) と呼ばれているが、Xe 4d 電子の内殻電離の場合、N<sub>45</sub>O<sub>23</sub>O<sub>23</sub> オージェによる Xe<sup>2+</sup>イオンへの崩壊確率が最も大きいことが放射光の実験で判明している。つまり、Xe<sup>2+</sup>に対する Xe<sup>3+</sup>の生成量は、20%程度と小さく、本研究で得られた結果とは大きく異なる。また、同様の振る舞いは Xe-He 混合ガスでも得られているが、純 Xe ガスよりも混合ガスを用いる方がより Xe<sup>3+</sup>イオン生成には有効であった。

一方、図 2 には多価イオン生成効率のノズル背圧依存性を示す。ただし、Xe-He 混合ガスによってクラスターは生成され

た。ノズル背圧を上げることは、クラスターのサイズを増大させることに対応するので、大きなクラスターの場合には、ダブルオージェ崩壊に起因する Xe<sup>3+</sup>イオンが支配的となることが判明した。

以上の結果から、クラスターサイズの増大、及び、レーザー強度の増大に伴って、放射光では観測されていない非線形的な光吸収過程やクラスター内で電子構造が大きく歪むことによるエネルギー準位のシフトが生じて

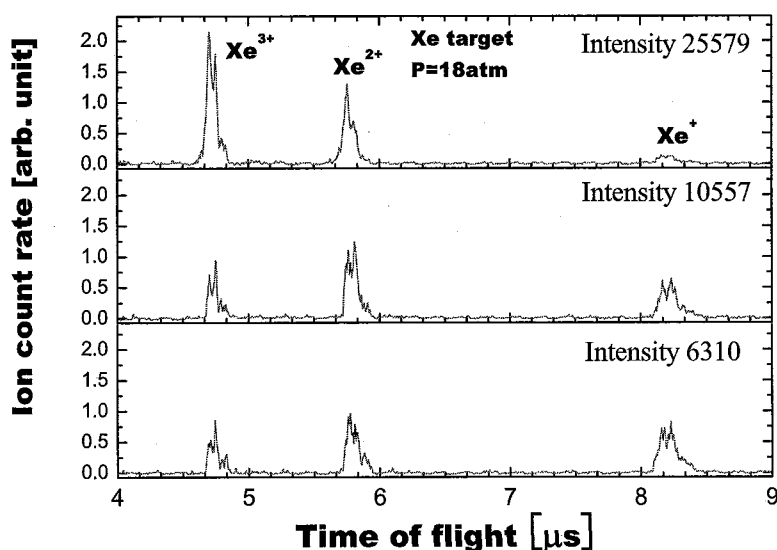


図 1. X 線レーザー・キセノンクラスター相互作用によって生成される多価イオンの TOF-MS。レーザー強度の増大に伴い、価数分布が大きく変化することが分かる。

いる可能性がある。さらに、クラスター内で多数の原子が内殻電離を起こした場合クーロンポテンシャルが非常に大きくなり、低温高密度の超強結合プラズマが発生する可能性もある。このようなプラズマでは、高リードベルグ状態の原子がイオン化過程を大きく変化させると言う予測もある[4]。このように興味深い現象が得られているので、今後は様々な計測器を用いることにより、内殻電離過程とその崩壊過程を調べていく予定である。

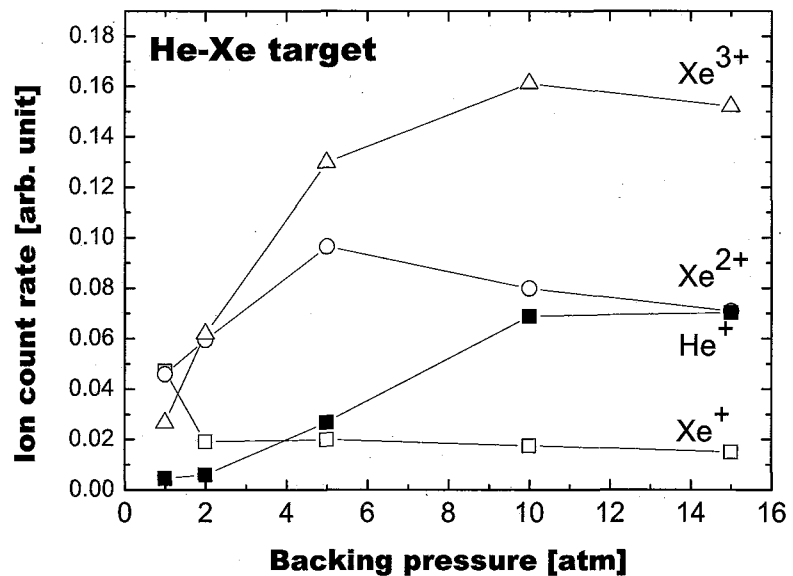


図 2. 多価イオン生成量のノズル背圧依存性。背圧が高いと Xe<sup>3+</sup>イオン発生量が増大し、ダブルオージェ過程が支配的になる。

#### 4. まとめと今後の課題

X線レーザー照射によるキセノンクラスターの内殻電離過程を解明するために、イオン飛行時間分解分光計測を行った。その結果、レーザー強度、クラスターサイズの増大に伴い Xe<sup>3+</sup>イオンの生成効率が高くなることが判明した。このことは、ダブルオージェ過程により内殻ホールが崩壊する確率が高強度場にさらされたクラスター中では変化することを意味しており、低強度の放射光光源での同様の実験ではこれまで観測されていない。

今後、電子分光を行い、光電子・オージェ電子のエネルギー分布からクラスター内でどのような過程が生じているのかを解明する。また、発光分光も行い輻射遷移による内殻電子の崩壊過程についても詳細に調べる予定である。

#### 参考文献

- [1] Ulf Saalmann and Jan-Michael Rost, Phys. Rev. Lett. **89** 143401 (2002).
- [2] H. Wabnitz, et al., Nature **420** 482 (2002).
- [3] R. Santra and C. H. Greene, Phys. Rev. Lett., **91** 233401 (2003).
- [4] C. Jungreuthmayer, L. Ramunno, J. Zanghellini and T. Brabec, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **38** 3029 (2005).



## 5.6 レーザープラズマ X 線顕微鏡による細胞内小器官の可視化

### Visualization of organelle by using laser plasma X-ray microscope.

保 智己<sup>1, 2</sup>、森弘和子<sup>1</sup>、安田恵子<sup>3</sup>、三方祐司<sup>2</sup>、大石正<sup>1, 2</sup>、加道雅孝<sup>4</sup>

<sup>1</sup>奈良女子大学大学院人間文化研究科、<sup>2</sup>奈良女子大学共生科学研究センター、<sup>3</sup>奈良女子大学理学部生物科学科、<sup>4</sup>日本原子力研究所 関西研究所 光量子科学研究センター

Satoshi TAMOTSU<sup>1,2</sup>, Kazuko MORIHIRO<sup>1</sup>, Keiko YASUDA<sup>3</sup>, Yuji MIKATA<sup>2</sup>, Tadashi OISHI<sup>1,2</sup>, Masataka KADO<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Department of Life and Environmental Sciences, Graduate School of Humanities and Sciences, Nara Women's University, <sup>2</sup>Kyousei Science Center for Life and Nature, Nara Women's University, <sup>3</sup>Department of Biological Sciences, Faculty of Science, Nara Women's University, <sup>4</sup>Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute

#### 1. はじめに

生命科学の分野において、顕微鏡は必要不可欠な設備である。その進歩に伴って生命科学が発展してきたと言っても過言ではない。しかしながら、X 線顕微鏡は、その開発から 20 数年が過ぎているにもかかわらず、広く普及してもおらず、また大きな成果を挙げているわけでもない。その理由として、ハード面では、設備が非常に大掛かりになることと他の顕微鏡との差別化が明瞭でないことが挙げられる。それ以上に大きな要因としては、得られる顕微鏡画像の問題である。電子顕微鏡はもちろんのこと、特に光学顕微鏡の発展には、特定の部位の標識技術の開発が必須であったが、X 線顕微鏡のための標識技術は全く開発されていない。加えて、得られた画像を正確に評価するシステムがないために、顕微鏡の性能が有効に利用されていなかったことにある。本研究プロジェクトの目的は X 線顕微鏡画像を評価するシステムの確立とさらに X 線顕微鏡に最適な標識技術の開発である。今年度は X 線顕微鏡観察に適していると思われる神経様細胞の顕微鏡ホルダー上で培養系の確立と X 線顕微鏡像との比較のための細胞内オルガネラの蛍光標識を行った。

#### 2. 材料と方法

##### 材料

実験にはラット副腎髄質由来細胞 (PC12 : 大日本製薬) を用いた。通常培地は、RPMI1640 培地を用い、37℃、5%CO<sub>2</sub>のインキュベーター内で静置培養した。

##### 細胞内オルガネラ染色

染色の 7 日前に、コラーゲンコートされたチャンバースライドで、通常培地に NGF (神経成長因子) 溶液を 0.01ng/μL になるように添加し、37℃、5%CO<sub>2</sub>のインキュベーター内で静置培養した。

### 核

核染色には DAPI (4',6-diamino-2-phenylindole) を用いた。7 日間培養した後、培養液で希釈した DAPI 溶液 (最終濃度 : 0.3mg/L) で封入した。

### ミトコンドリア

標識には Mito Tracker Red CMXRos (Molecular Probes 社製) を用いた。MitoTracker stock solution を作製し、通常培地 1ml に対し 0.02  $\mu$ l 加え、この培地で 37°C でインキュベーションした。その後、溶液を除去して通常培地で数回洗浄し、培地で封入した。

### ゴルジ体

ゴルジ体標識には BODIPHY FL C5-ceramide (Molecular Probes 社製) を用いた。まず BODIPHY FL C5-ceramide stock solution を作製し、培地 1ml に対して 10  $\mu$ l 加えて、この培地で 30 分間、4°C の状態にしてインキュベーションした。その後、染色用培地を除去し、氷冷した培地で数回洗浄した。新しい培地に換えて 30 分間、37°C の状態でインキュベーションした。培地を除去し、通常培地で封入した。

### 細胞骨格

細胞骨格標識には Alexa Fluor 488 phalloidin (Molecular Probes 社製) を用いた。phalloidin stock solution を作製し、PBS (リン酸緩衝生理食塩水) で 40 倍に希釈した。細胞をザンボン一固定液で化学固定し、PBS で 2 回洗浄後、先ほど染色液を加えて、染色時間の違いによる観察時の変化があるかを調べるために 60 分、20 分の 2 通りの時間でそれぞれ静置させた。その後、PBS で洗浄し、封入剤 (BIOMEDA 社製) を用いて、封入した。

### 試料ホルダー上での PC12 細胞の培養

試料ホルダーは軽いので、培養液内で浮遊する。この問題を解決するために、重石を作製した。白金をコの字型にし、その間をナイロン線で繋いだ (図 )。

4-well culture dish (NUNC 社製) の各 well 内に試料ホルダーを静かにおき、その上に重石を乗せた。細胞を含んだ培養液をその上から静かに入れ、その後 NGF を添加し、37°C で培養した。

## 3. 結果と考察

### PC12 の性状

PC12 は NGF 無しの培地では丸型または多角型をし、時には凝集塊状になる (図 1)。NGF 添加後数日間で神経様突起を伸ばす (図 2)。この状態ではカテコールアミンであるノルアドレナリンやドーパミンを生成・蓄積する能力があることが知られている。NGF 濃度が 0.01ng/ $\mu$ L では 7 日間で細胞体直径の 2 倍程度の突起を伸張したが、0.04ng/ $\mu$ L では 3 日間で細胞体の 1.5 倍程度にまで突起を伸張していた。

### 蛍光顕微鏡による細胞内オルガネラの観察

PC12 細胞における細胞内オルガネラ標識の最適条件を決めるために濃度や処理時間等の条件を変えて染色した。核染色の場合、DAPI の濃度は  $3.3 \times 10^{-1} \mu\text{g/ml}$  を使用することにした。また、細胞骨格染色の場合、化学固定が必要であるため固定液の選択をおこなった。その結果、固定液にはザンボニー固定液（4%パラホルムアルデヒド+0.05%ピクリン酸）を用いた。また染色時間は20分で染色された。この条件での PC12 細胞を図 に示す。NGF を添加していない通常培地中では細胞は丸型をし（図 ）、NGF 添加培地中では細胞は神経様突起を伸長させており（図 ）、それぞれに細胞骨格が観察できた。ミトコンドリア染色の場合、マーカーの最適濃度、最適な染色時間を決めるために3種類の濃度のマーカー（ $0.5 \mu\text{l/ml}$ 、 $0.1 \mu\text{l/ml}$ 、 $0.02 \mu\text{l/ml}$ ）を用意し、染色時間は15分、30分、60分で比較した。その結果、 $0.5 \mu\text{l/ml}$ 、 $0.1 \mu\text{l/ml}$  は濃度が濃すぎて細胞内のミトコンドリアが確認しづらく、最も薄い  $0.02 \mu\text{l/ml}$  でも細胞内のミトコンドリアを示す蛍光が強いように思われる（図 ）。染色時間に関しては、どの時間でも大きな差は見られなかった。

### X線顕微鏡による観察のための培養条件の決定

X線顕微鏡専用試料ホルダーにもチェンバースライドと同様に  $0.01\text{ng}/\mu\text{L}$  の濃度でコラーゲンを塗布した。試料ホルダーでは、細胞が張り付きにくく、張り付くまでに時間がかかった。試料ホルダーの窒化シリコン膜上に細胞が数個程度乗っただけだったが、それらの細胞は、神経様突起を伸長させていた（図5）。コラーゲン液の濃度を規定濃度（ $0.01\text{ng}/\mu\text{L}$ ）の2倍濃度で再度培養を試みた。その結果、PC12 細胞は窒化シリコン膜上で突起を伸長させ、神経様の細胞に変化した。

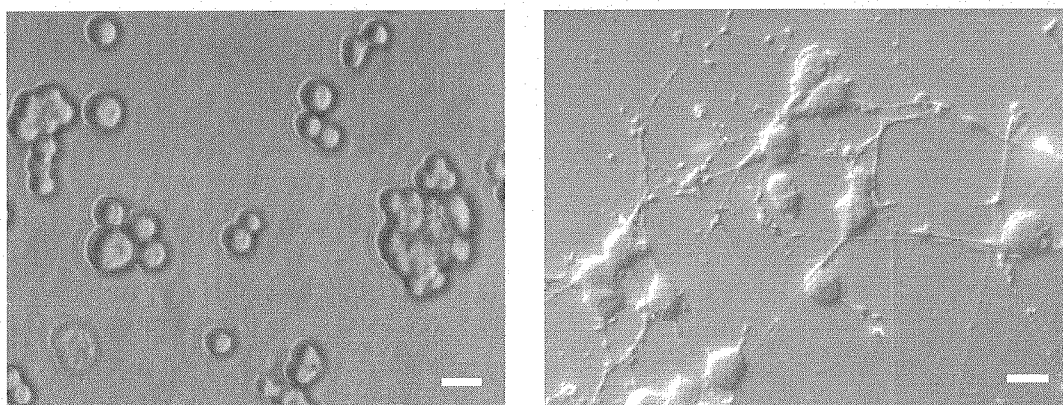


図1 NGF 添加前（左）と添加後7日目の PC12 細胞

NGF 添加前では球形である。また一部では数個の細胞が凝集している。NGF を添加すると突起が伸長し、神経様の形態を示す。スケール：  $50 \mu\text{m}$ （左）、 $20 \mu\text{m}$ （右）

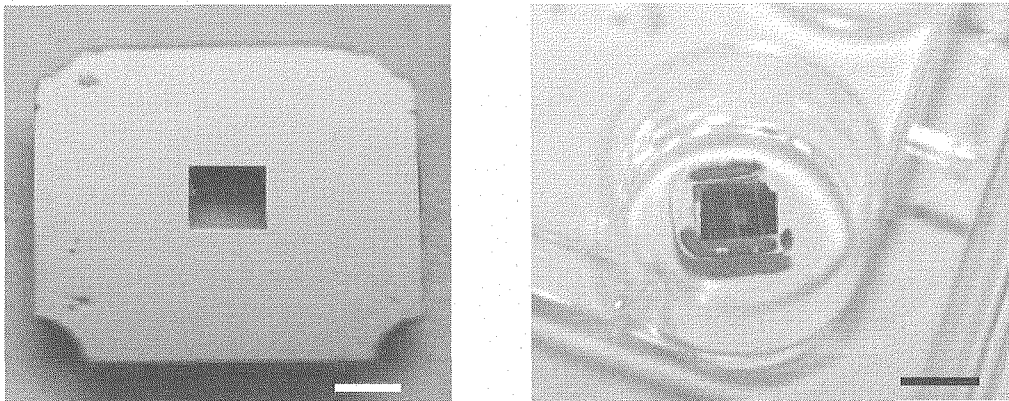


図2 X線顕微鏡用の試料ホルダー（左）とホルダー上での細胞培養（右）

試料ホルダーを滅菌を施した後に窒化シリコン膜上にコラーゲンを塗布した。その後、重石を載せて培養用チェンバー中で細胞培養を行った。スケール： 1 mm（左）、 5 mm（右）

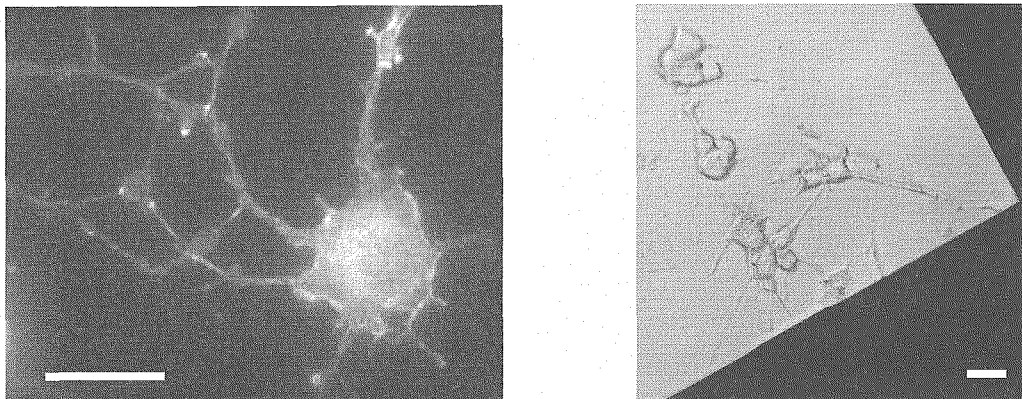


図3 PC12 細胞におけるファロイジン標識像（左）と試料ホルダーの窒化シリコン膜上で伸長するPC12 細胞（右）

細胞体だけでなく、神経突起内にも蛍光が見られる（左）。窒化シリコン膜上でも NGF を添加することで神経様に変化している（右）。スケール：20  $\mu\text{m}$

## 5.7 ナノスケール軟 X 線分光系の高検出効率化に関する研究

Improvements of the detection efficiency of a Soft-X-ray emission spectrometer  
for analytical transmission electron microscopes

○寺内正己<sup>1)</sup>、小池雅人<sup>2)</sup>、石野雅彦<sup>2)</sup>、今園孝志<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> 東北大学多元物質科学研究所、<sup>2)</sup> 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

○Masami Terauchi<sup>1)</sup>, Masato Koike<sup>2)</sup>, Masahiko Ishino<sup>2)</sup> and Takashi Imazono<sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

<sup>2)</sup> Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

In this development, a Ni-coated varied-line spaced grating (VLS) with an averaged groove density of 1600 l/mm. The optics of the grating was designed for a soft-X-ray emission spectrometer for a transmission electron microscope (SXES-TEM) [1]. The grating covers an energy range from 165 eV (7.5 nm) to 500 eV (2.5 nm). The performance of the grating was evaluated by using a SOR facility. It was revealed that the efficiency of the grating is 2-3 times larger than that of an Au-coated one. The grating was installed to the SXES-TEM instrument and confirmed the nice performance by measuring C-K emission line of diamond.

Keywords: SXES, TEM, VLS-grating, Ni-coating

### 1. はじめに

ナノスケール領域の物性解析には、ナノスケールの空間分解能を有する透過型電子顕微鏡 (Transmission electron microscope: TEM) を用いた分光手法が有力である。電子顕微鏡による結合電子のエネルギー分布測定が寺内らにより初めて報告された [2]。そこでは、汎用の回折格子を用いた分光系が用いられた。我々は、その分光系の性能を上げるため、H14 年度より協力研究を行っている [3]。

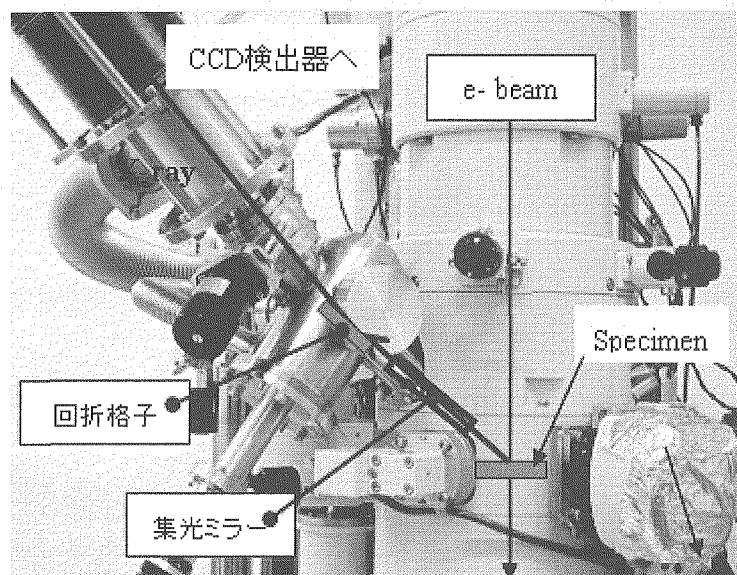


Figure 1: WDS spectrometer attached to a conventional TEM of JEM2010. The spectrometer composed of three VLS gratings and a CCD detector.

H16 年度に、通常の電子顕微鏡実験との両立を前提とし、エネルギー分散量をそれまでの 2 倍にした高分解能型装置 (図 1) を製作した[1]。この SXES 装置では、3 つの回折格子 (表 1) を用いて 60 eV (20 nm) から 1200 eV (1 nm) のエネルギー範囲の測定が可能となっている。

	平均溝間隔 (mm)	水平からの設置 角度 (度)	X 線入射角 (度)	測定エネルギー 範囲 (eV)
L-VLS	1/1200	1.6	3.0	60 - 180
M-VLS	1/1600	0.4	1.8	165 - 500
S-VLS	1/2400	0.0	1.4	410 - 1200

Table 1: Averaged groove spacing, setting angle, incident angle of X-rays and energy range of each grating, which is installed for the SXES-TEM instrument shown in Fig.1.

## 2. 高効率回折格子の製作と評価

軟 X 線分光の難点は、元素の浅い内殻準位に生成されたホールのがほとんどがオージェ過程によって緩和してしまうため、このエネルギー領域での X 線発光効率が極めて低いことである。例えば、炭素の K 殻ではわずか 0.14% でしかないため、放出された X 線を効率よく検出する技術が必要不可欠となる。そこで、H17 年度は、表 1 の中の M-VLS 回折格子に、従来の Au コートではなく Ni コートを施した回折製作と性能評価を行った。

図 2(a) は、入射角 88.6 で計算した Ni と Au の反射率である。M-VLS の領域 (2.5-7.5nm) では、Ni の方が高い反射率を示すことが分かる。

図 2(b) は、実際に作成した Ni コート M-VLS 回折格子の回折効率を立命館大学の SOR に設置されている原研の評価装置で測定したものである。比較のため、Au コート M-VLS 回折格子の結果も示した。4.5nm 付近の回折

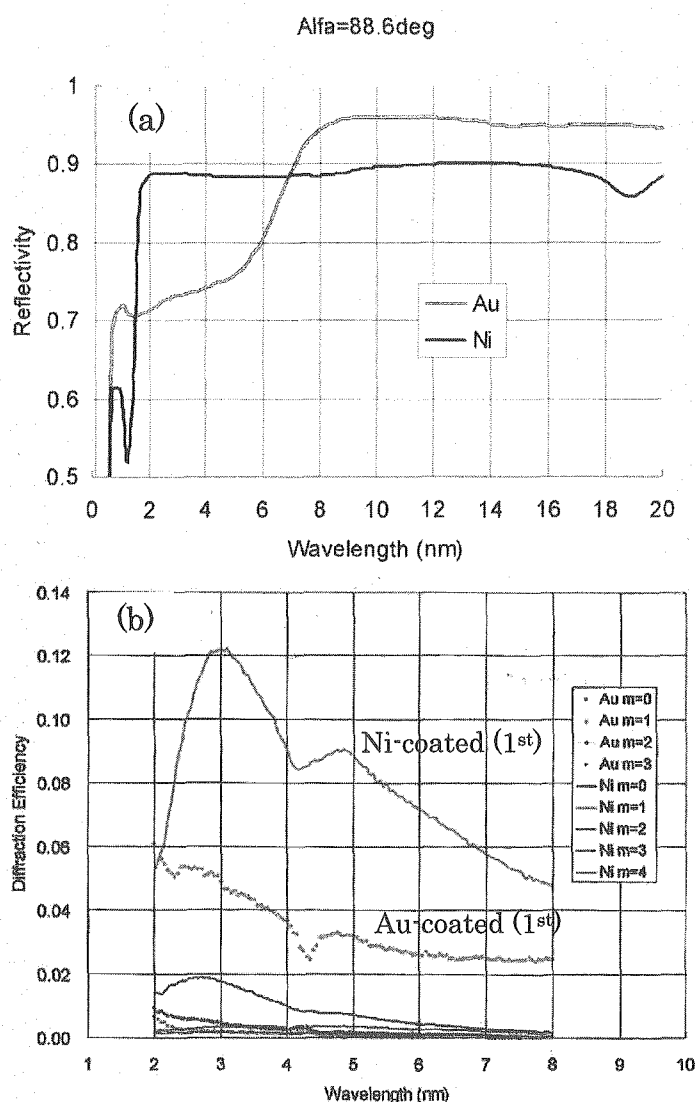


Figure 2: (a) Theoretical calculations of reflectance of Au and Ni. (b) Evaluated diffraction efficiencies of Ni-coated and Au-coated M-VLS gratings.



効率の低下は、評価装置の分光系のコンタミネーションに起因するによる。予定したエネルギー領域 165 eV (7.5 nm) – 500 eV (2.5 nm)において、Au コートに比べ、Ni コートの方が約 2 倍の回折効率を持つことが明らかになった。C-K 発光 (4.46nm) では、Ni コートが Au コートの約 3 倍の回折効率を示している。図 2(a)と(b)の 7nm 付近のデータを比べると、物質としての反射率は Au と Ni ではほぼ同じと期待されるのに、実際に製作した回折格子で比較すると Ni が Au の 2 倍強の回折効率を示していることが分かる。このことは、実際の回折格子で、Ni コート膜の表面平滑度が Au のそれに比べてよいことを示唆している。

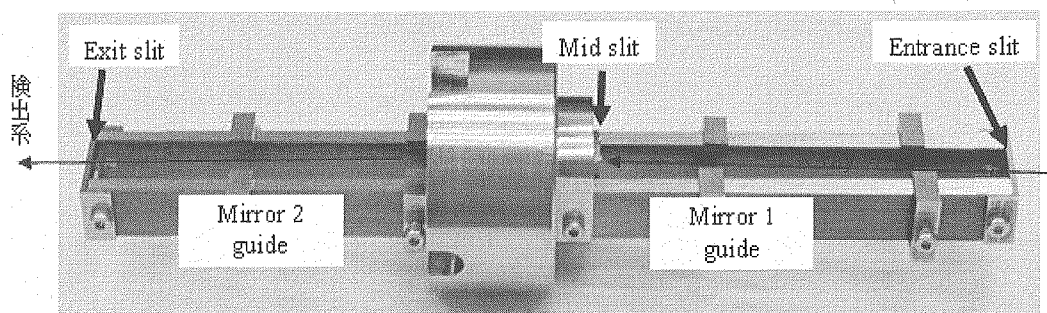


Figure 3: X-ray collection mirror unit installed for the instrument (Fig.1).

### 3. X線集光ユニットの導入と高効率回折格子の実装テスト

製作した Ni コート M-VLS 回折格子を、東北大にある SXES-TEM 装置 (図 1) に装着してテストを行う際、装置の検出効率を向上させる手段として、専用の集光ミラーを作製 (図 3) して装着した。集光ミラーサイズは、巾 10mm x 長さ 145mm である。ミラーそのものは、Si ウエファの鏡面に W のスパッタ膜 (約 100nm) を作製して用いた。ミラーへの X 線の入射角が 3 度程度以下となるように設計した。全反射が起こるとした場合、回折格子に入射する X 線強度は約 3.2 倍となることが期待される。

図 4 に、Ni コート M-VLS+集光ミラーで測定した Diamond の C-K 発光スペクトル (右下) を示す。比較のため、Au コート M-VLS のみ (ミラー無) のデータ (左上) も示す。Ni コート M-VLS+集光ミラーで測定したデータは、Au コート M-VLS のみのデータに比べ、実験時のプローブ電流が  $5.3/12=0.44$  倍、測定時間が  $1/10$  であるにも関わらず十分な S/N のスペクトルが得られていることが分かる。ピーク強度が約 0.75 倍であることを考慮すると、装置全体として約 17 倍の効率向上が実現できたと評価できる。このことは、回折格子の効率で約 3 倍、ミラーの集光率で約 3 倍の効率向上が十分に機能しているだけでなく、装置組替えに伴う機械的な精度の向上および迷光遮断のためのスリット設定位置がより適切になった等による約 2 倍分の効率向上が要因と思われる。

今回、高効率化に成功した M-VLS の測定範囲 165 eV (7.5 nm) – 500 eV (2.5 nm) は、重要な軽元素 B、C、N、O の K 発光エネルギーをほぼ網羅しており、材料におけるナノスケールでの軽元素の電子状態研究への応用が期待できる。

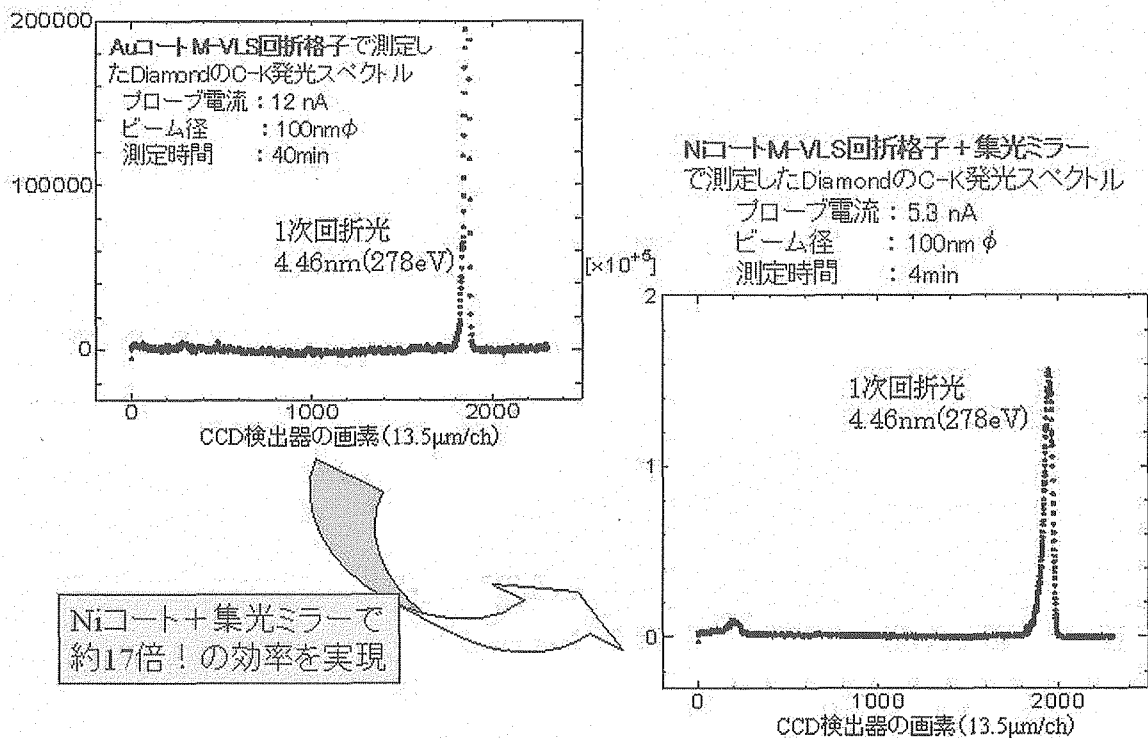


Figure 4: C-K emission spectra of Diamond obtained by using Au-coated grating (probe current: 12nA, acquisition time: 40min) and Ni-coated one + X-ray collection mirror system (probe current: 5.3nA, acquisition time: 4min) are shown. Detection efficiency was improved by about 17 by the new grating, the mirror and a fine mechanical alignment of the instrument.

#### 謝辞

電子顕微鏡用 XES 装置の汎用化開発は、文部科学省のリーディングプロジェクトの一環として行われている (H16-H18: ナノスケール電子状態分析技術の実用化開発 - 軟 X 線発光分光器の実用化開発 -) ものである。また、X 線用ミラーの製作においては東北大多元研の柳原美広教授に、高分解能型分光器チャンバーの設計・製作においては同研究所の技術室 (設計室、附属機械工場) の協力を得て行っている。

#### 参考文献

- [1] M. Terauchi, M. Koike, K. Fukushima and J. Kimura: Abstract EDGE2005 International EELS workshop (Austria, 5/1-5), 54 (2005).
- [2] M.Terauchi H.Yamamoto and M.Tanaka: J. Electron Microscopy, vol.50, 101 (2001).
- [3] M.Terauchi and M.Koike: Microscopy and Microanalysis, vol.9(Suppl.2), 894 (2003).



## 5.8 短周期多層膜の構造評価と構造制御—高エネルギービーム照射安定性—

### Radiation-induced Amorphization in Mo/Si Nano-multi-layer Materials

大貫惣明

北海道大学大学院工学研究科 材料科学専攻

〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

Somei OHNUKI

Materials Science Division, Graduate School of Engineering, Hokkaido University

N-13, W-8, Sapporo 060-8628, Japan

石野雅彦

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台 8-1

Masahiko ISHINO

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

8-1, Umemidai, Kizu, Souraku, Kyoto 619-0215, Japan

High-resolution microscopy was carried out for surveying atomistic mixing process in Mo-Si multi-layer materials, which is a candidate for soft x-ray mirror materials. Amorphization and shrinkage were observed during electron irradiation at room temperature. The Furor Transfer indicates that the multi-layer structure changed to be a amorphous structure. The Inverse Furor Transfer indicates random arraignment of the atoms with much compact packing. In this process the diffusion of Si atoms should be predominant for this amorphization

#### 1. はじめに

ナノレベルの組織・構造の特徴的問題点として界面構造、原子拡散過程、安定性などがあり、これらについての高分解能電子顕微鏡による研究が盛んに行われている。本研究では X 線のミラー材料の Mo/Si 系ナノ多層膜に着目し、高分解能電子顕微鏡観察と高エネルギー粒子線照射を手段としてナノ多層膜の原子混合過程とナノ構造の安定性を検討した。特に新しい評価方法についても試みた。

#### 2. 実験

ナノ多層膜試料は、Mo と Si をターゲット材としたスパッタ蒸着法により、〈100〉単結晶 Si ウェハ一上に堆積し、Mo/Si 多層膜とした。機械研磨とイオンスパッタ法により断面試料を調製した。断面試料に高分解能観察を行うとともに、200keVAr<sup>+</sup> と 1MeV の電子線で照射し、非晶質相の安定性を検討した。高分解能像はフーリエ変換 (FFT) とフーリエ逆変換 (IFFT) により局所解析を行った。

#### 3. 結果と考察

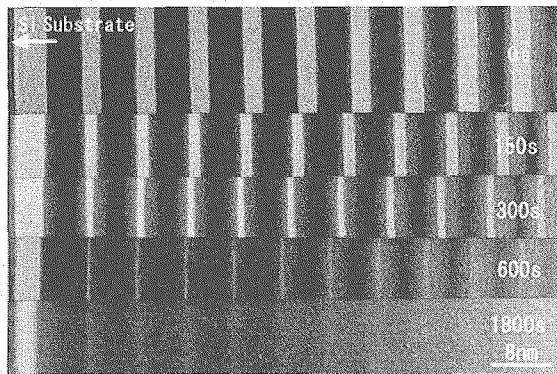


Fig. 1. Mixing process during e-irradiation

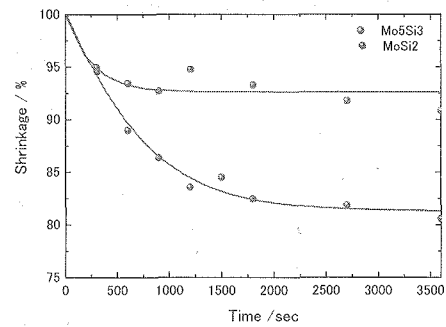


Fig. 2 The change in layer thickness during e-irradiation.

積層状態ではナノ多層構造である。Mo 層は〈110〉方位に成長した多結晶で、Si 層は非晶質であった。また、Mo と Si 界面には 1~2nm の厚さの遷移層が存在した。室温でイオン照射をした場合、a-Si 層にはボイド列が形成された。また、Mo と Si の界面に a-Si とは異なる非晶質のミキシング層が成長した。これらの現象は Si の優性な拡散を示している。また、顕著な収縮から、高密度の非晶質が形成したと推定した。

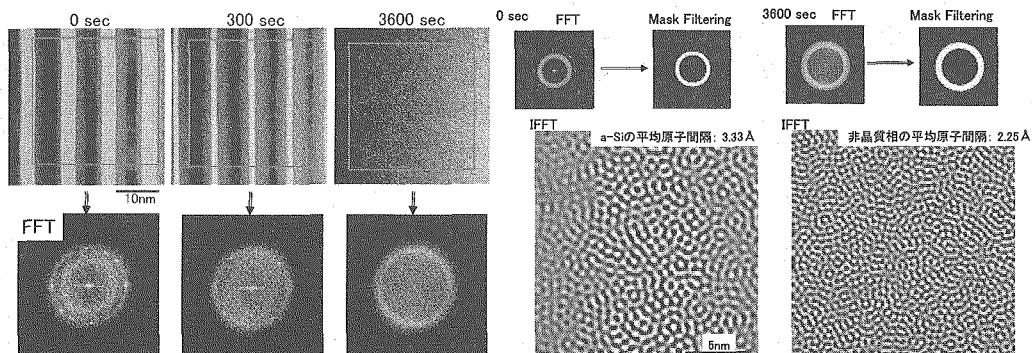


Fig. 3. HR images and FFTs before and after e-irradiation

Fig. 4. IFFTs before and after irradiation

Figure 1 は同一領域を室温で電子線照射した場合の連続的時間的変化を示す。時間とともに両層が混合して行くことが明快である。また、混合の進行とともに層間隔が明確に収縮する。このミキシング層は Mo と Si の非晶質混合層である。Figure 2 にこの時間的経過を示す。収縮は短時間 (600 秒) でほぼ終了するが、収縮の程度は Si の比率が大きい (Si 層の厚さが厚い) ほうが顕著であった。これらの結果は原子サイズの異なる場合の非晶質化の例と推定し、高分解能観察から詳細に検討した。Figure 3 は電子線照射中の高分解能像とそのフーリエ変換像である。局部回折に相当する FFT では結晶スポットの消失と 2 重のハローが 1 重に変化する、すなわち 2 種の非晶質が 1 種の非晶質になることが推察される結果であった。Figure 4 は照射前後での逆変換像 (IFFT) であり、原子位置の情報を含んでいる。照射前の配列はランダムであるが、平均間隔は 2 種ある。照射後はランダムな配列の間隔は 1 種となり、より緻密な間隔となっている。照射混合により、より緻密な非晶質構造となることが示唆された。

Figure5 は Mo と Si の原子混合のモデルである。結晶質の Mo と非晶質の Si が照射により原子混合した結果、均質な非晶質に変化するものと推察される。以上より、Mo/Si 系のナノ多層膜構造は基本的に不安定で、400℃以下では非晶質に移行する傾向にあり、この過程は Si の高速拡散

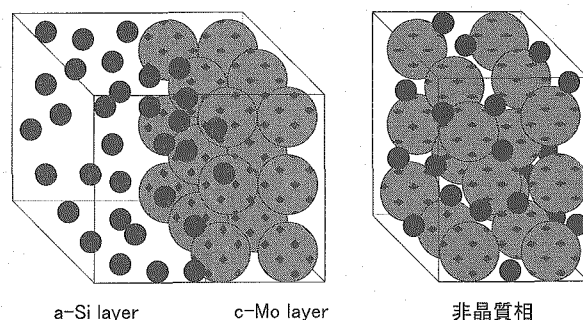


Fig. 5. A model of mixing of a-Si and c-Mo

に律速されるであろう。

#### 4. まとめ

Mo/Si ナノ多層膜の界面構造を高分解能電子顕微鏡により観察し、原子の混合過程を検討した。Mo 層は〈110〉方位を持つ多結晶、Si 層は非晶質であった。遷移層の形成：Mo/Si 界面に遷移層の形成が見られた。これは、製膜時の原子混合により出来たと考えられる。Si の優先的拡散：Si の c-Mo 層への急速な拡散が起こり、a-Si 層にはカーケンドールボイドが形成された。ミキシングによる非晶質化：非晶質化過程は、照射粒子の種類や照射の方向に依存せず、照射促進拡散により生じていると考えられる。高密度の非晶質：どの条件でも試料の収縮が見られた。逆フーリエ変換の結果、原子の平均間隔が短くなり空隙の少ない非晶質になっている。



## 5.9 コバルトナノ多層膜の構造と熱的安定性 Nanostructure and Thermal Stability of Co Oxide Multi-layer Materials

大貫惣明

北海道大学大学院工学研究科 材料科学専攻

〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目

Somei OHNUKI

Materials Science Division, Graduate School of Engineering, Hokkaido University

N-13, W-8, Sapporo 060-8628, Japan

石野雅彦

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台 8-1

Masahiko ISHINO

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

8-1, Umemidai, Kizu, Souraku, Kyoto 619-0215, Japan

High-resolution microscopy and x-ray refraction were carried out for surveying thermal and environmental stability in nano-multi-layer materials, which are candidate for soft x-ray mirror materials.  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  nano-layer: This system shows excellent X-ray refraction property, and has a flat structure at nano-scale, where the thermal stability was high up to 600 C.  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  nano-layer: This showed not enough x-ray refraction property, and has a nano-particle structure of  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . Such difference may be caused by less wet-ability and chemical affinity. Thermal stability at high temperature up to 700-1000 C: The nano-particle structure in  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  system up to 600 C, where such high stability consists with qualitative thermodynamic data, even if nano-scale particles.

### 1. はじめに

機能性のナノ構造を得るためには、界面構造、原子拡散過程、組織安定性、反応特性などの制御が重要である。本研究では X 線反射鏡材料である  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  系と  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  系の多層膜に注目した。これらの系は酸化物や窒化物の組み合わせであり、酸化物粒子のナノ構造の熱的安定性の検討に有効である。高分解能観察と組成分析により、積層時のナノ構造を観察し、さらに熱的安定性について調査した。

### 2. 実験

ナノ多層膜試料は、 $\text{Co}_3\text{O}_4$ 、 $\text{SiO}_2$ 、BN をターゲット材としたスパッタ蒸着法により、 $\langle 100 \rangle$  単結晶 Si ウェハ上上に堆積した。30 周期の多層膜は①コバルト酸化物とシリコン酸化物の積層 ( $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$ ) と②コバルト酸化物と窒化ホウ素の積層 ( $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$ ) とした。Figure 1 に  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  系多層膜と  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  系多層膜の X 線反射率グラフを示す。 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  系の反射特性は良好な多層構造を反映しているが、一方の  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  系の反射特性は、構造（周期性）の乱れを

反映し、ピークが分裂している。これらの多層膜を 600～1000℃で 2 時間の真空熱処理した後、断面試料に調製し、透過型電子顕微鏡による高分解能断面観察を行った。

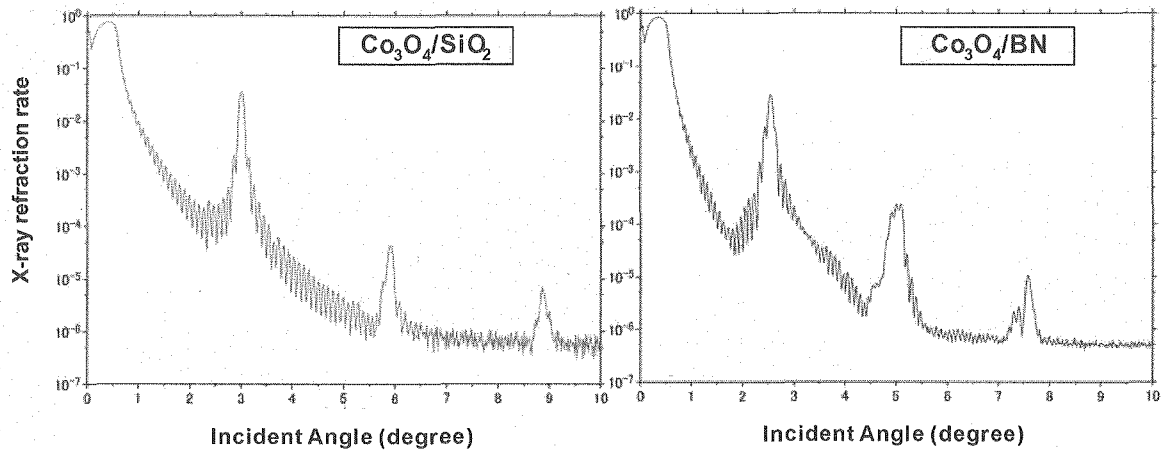


Fig. 1. Refraction from  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  and  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  multi-layers (60 layers, 30 cycles)

### 3. 結果と考察

Figure 2 は  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  (as-deposition) および  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  (as-deposition) の断面構造写真を示す。

①  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  のナノ構造:  $\text{Co}_3\text{O}_4$  と  $\text{SiO}_2$  はともに非晶質構造であり、電子線回折では周期 3.2nm の回折スポットが得られた。積層構造では、 $\text{Co}_3\text{O}_4$  層と  $\text{SiO}_2$  層の間に灰色のコントラストで遷移層が存在していた。このことから、 $\text{Co}_3\text{O}_4$  層と  $\text{SiO}_2$  層の両酸化物間には親和性があり、平膜状に積層されていることが分かった。②  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  のナノ構造:  $\text{Co}_3\text{O}_4$  の部分に格子像が見られるため、 $\text{Co}_3\text{O}_4$  粒子は結晶質である。それに対して BN 層には格子像が見られないため、BN 層は非晶質として存在する。また、周期約 5.2nm の回折スポットが得られた。 $\text{Co}_3\text{O}_4$  は非常に均一なサイズ (約 5nm) のナノ粒子で、一列に配列する傾向があり、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  の構造に比較して極めて特徴的であり、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  系では斥力が働くものと推定された。

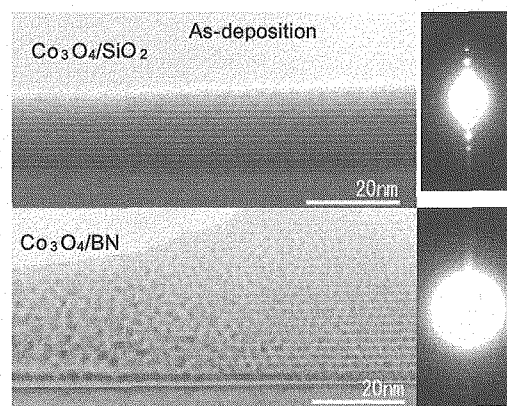


Fig. 2. Structures of nano-multi-layers (as-deposition)

Figure 3 に 1000℃で真空熱処理した  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  (annealed) および  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  (annealed) の断面構造写真を示す。③アニールによる  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  の構造変化: 層間で  $\text{Co}_3\text{O}_4$  と  $\text{SiO}_2$  の拡散が起

こっていた。これは、多層膜が形成された際に  $\text{Co}_3\text{O}_4$  と  $\text{SiO}_2$  はともに非晶質で、層間に遷移層が存在していたことの影響と考えられる。このとき、 $\text{Co}_3\text{O}_4$  の酸素は基板 Si により還元され Co 粒子となった。拡散、もしくは拡散後の反応により、膜構造は比較的低温で崩壊した。Co 粒子は加熱とともに粗大化し、多くは Si 基板の方向へ移動した。基板との反応により、Co シリサイドが形成された。④アニールによる  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  の構造変化: 加熱の際、Si 基板により  $\text{Co}_3\text{O}_4$  の酸素が還元され、新たに  $\text{SiO}_2$  層が形成された。このとき、 $\text{Co}_3\text{O}_4$  粒子は Co 粒子となった。Co 粒子と BN 層による混合層が観察された。加熱によって Co 粒子が BN 層に凝集したと考えられる。さらに、Co 粒子も粗大化した。加熱を進めていくほど粗大化してゆく傾向のあった Co 粒子が、加熱を進めてもナノ粒子として存在することができたのは、BN 層が高温にしても安定して存在することができたことにより、BN 層が Co 粒子を保護していたためと考えられる。⑤Co 酸化物ナノ粒子の安定性: 以上の結果は、共存物質を選択することにより Co 酸化物のナノ粒子を安定に表面に分散・制御する可能性を示唆している。この際の化学的親和力(斥力)が重要と推定した。

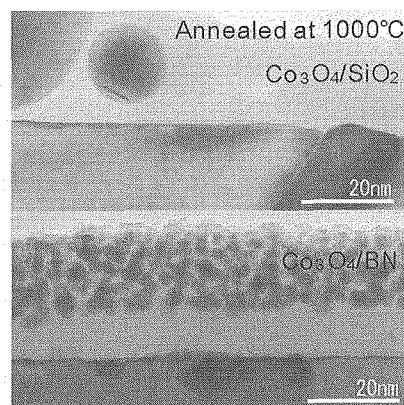


Fig. 3. Structures of nano-multi-layers (annealed at 1000°C)

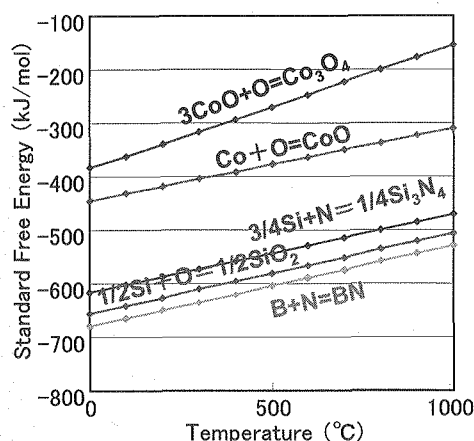


Fig. 4. Thermodynamic Data of Oxides and Nitrides

次に酸化物および窒化物についての安定性について考察した。Figure 4 に酸化物および窒化物についての熱力学データ(標準自由エネルギーと温度の関係)を示す。酸化物は  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{CoO}$ 、 $\text{Co}_3\text{O}_4$  の順で安定性が高く、従って  $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  系ナノ多層膜を加熱すると  $\text{Co}_3\text{O}_4$  層は Si 基板によって  $\text{CoO}$ 、 $\text{Co}$  へと還元され、Co 粒子が粗大化し、新たに  $\text{SiO}_2$  層が形成される。また窒化物については BN が最も安定な状態である。よって、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  系は、熱力学的に安定性を欠く Co 粒子が粗



大化するのを BN が防ぐことができるので、ナノ構造を維持することができるという推測が妥当である。以上から、ナノレベルの多層膜であっても、酸化物の構造と熱的安定性は熱力学的な反応性の大小に依存していると結論した。

#### 4. まとめ

酸化物系ナノ多層膜の適性を検討するため、界面構造の相違と熱的安定性を調査した。その結果、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  ナノ多層膜では  $\text{Co}_3\text{O}_4$  が結晶性ナノ粒子化したのに対して、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  ナノ多層膜は平滑な非晶質の酸化物構造となった。アニールによる構造変化については、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{BN}$  ナノ多層膜は比較的安定であったのに対して、 $\text{Co}_3\text{O}_4/\text{SiO}_2$  ナノ多層膜の反応性は大きかった。また、ナノスケールの多層膜であっても、酸化物の構造と熱的安定性は熱力学的な反応性の大小に依存することを考察から見出した。反射鏡材料として Co 酸化物多層膜を選択する場合、積層構造と反応性の観点から共存物質の選択が重要である。



## 5.10 偏光プラズマ分光

### —再結合プラズマの軟X線領域時間分解偏光計測—

#### Plasma Polarization Spectroscopy -Time Resolved Spectroscopy in Soft X-ray Region on Recombining Plasma-

岩前 敦<sup>†</sup>、蓮尾 昌裕<sup>†</sup>、安宅 誠<sup>†</sup>、長谷川 登<sup>‡</sup>、河内 哲哉<sup>‡</sup>

<sup>†</sup>京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻

<sup>‡</sup>日本原子力研究開発機構関西光科学研究所

Atsushi IWAMAE<sup>†</sup>, Masahiro HASUO<sup>†</sup>, Makoto ATAKE<sup>†</sup>,

Noboru HASEGAWA<sup>†</sup> and Tetsuya KAWACHI<sup>†</sup>

<sup>†</sup>Department of Mechanical Engineering and Science, Kyoto University

<sup>‡</sup>Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency

We present an experimental study of polarization of emission radiations from recombining plasmas generated by the interaction of 60 fs ultra-short laser pulses with a gas jet. Time-resolved spectroscopy with a temporal resolution of 5 ps with repetitive accumulation is used to follow the recombination time histories.

**Keywords: Plasma Polarization Spectroscopy, Anisotropic Electron Velocity Distribution Function, Recombining Plasma**

#### 1. はじめに

プラズマ中の電子速度分布関数は暗黙のうちに等方的であると仮定される。しかしながら、プラズマの加熱に用いられるマイクロ波や高強度レーザー光とプラズマ中の電子との相互作用により電子速度分布が非等方となり得る。再結合連続スペクトルは、電子がイオンに捕獲される際の発光であり、そのスペクトルは電子の運動エネルギー分布を直接反映する。Glover らは、レーザー生成ヘリウムプラズマの水素様ヘリウムの Lyman 系列スペクトルを時間分解計測し、電子エネルギー分布がレーザー入射直後、熱的分布から大きく外れていたものが次第に熱平衡へと移ってゆく過程をとらえている[1]。レーザー入射直後の非熱的電子エネルギー分布は、レーザー光の電場と電子の相互作用によってもたらされたものであり、この非熱的分布は速度分布の大きな非等方性を有していると考えられる。そのため、レーザー光入射直後の連続スペクトルは電子速度分布の非等方性を反映し、偏光すると考えられる。本研究では、軟X線領域での偏光度計測の手法を開発し、レーザー生成プラズマからの発光スペクトルを時間分解偏光計測することを目的とする。

## 2. 実験

直線偏光したレーザー光(偏光方向を量子化軸 $z$ 軸とする)が原点においてプラズマを生じ、その発光を $x$ 軸上と $z$ 軸上の2方向から観測する場合を考える。発光が古典的双極子の輻射強度分布となる場合には、 $z$ 軸方向には $2I_z$ の強度が観測され、 $x$ 軸方向には $I_x + I_z$ が観測される。これらの観測から偏光度 $P = (I_x - I_z)/(I_x + I_z) = (I_x - I_z)/I_x$ を求めることができる。

実験装置図を図1に示す。半波長板を通ったTi:Sapphireレーザー光(60 fs 210 mJ 10 Hz)をレンズ( $f=100$  mm)でパルスバルブから噴射するガスに集光しプラズマを生成した。プラズマからの発光をトロイダル前置鏡を装備した斜入射分光器(1200 grooves/mm)により分光し、ストリークカメラ(Hamamatsu C4575-01)を用い時間分解計測した。レーザー光入射軸が回折格子面に45度となるように光軸を設置した。この45度配置により分光器の前置鏡・回折格子の偏光依存性の問題を回避できる。半波長板によりレーザー偏光方向をレーザー光入射軸と分光器の観測軸により張られる面に平行・垂直とし、強度 $I_z$ および $I_x$ をそれぞれ時間分解計測した。種レーザー(Tsunami)はデータタイミングジェネレーター(Tektronix DTG5274+ DTGM20)により駆動され、ストリークカメラのトリガーとレーザー光パルスを同期した。

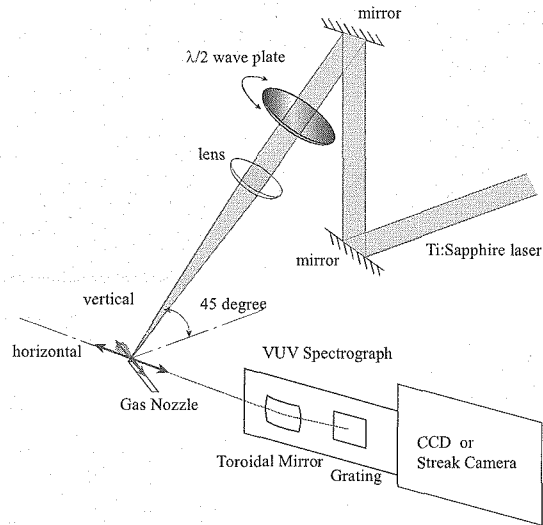


図1 実験装置配置図. 回折格子面に対して45度方向からレーザーを入射. 半波長板によりレーザー偏光方向を変える.

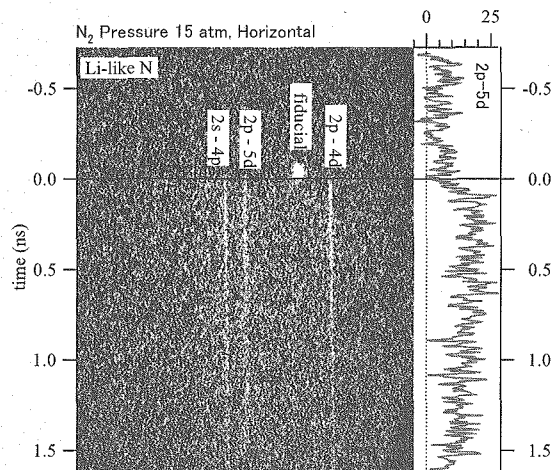


図2. Li様Nv $z$ 方向スペクトルストリーク画像(2 ns 掃引)

## 3. 再結合プラズマ時間分解スペクトル

窒素ガス背圧は15気圧で720秒露光を $I_z$ および $I_x$ それぞれ6回ずつ繰り返した。時間掃引は2 ns レンジで記録した。図2に $I_z$ の窒素プラズマからの分光ストリーク画像を示す。リチウム様窒素からの発光線スペクトル線 N v 2s-4p ( $\lambda 16.3$  nm), 2p-5d ( $\lambda 16.7$  nm), 2p-4d ( $\lambda 18.6$  nm)が観測された。レーザー光パルスをストリーク上面のポートから導入し基準点とした。この2 ns 掃引レンジでの時間分解能は基準パルスの時間幅から55 ps FWHMであった。観測強度は十分でなく再結合連続光は観測されていない。リチウム様窒素スペクトル線観測強度と $(I_x - I_z)/I_x$ の時間発展を

図3に示す。発光線には大きな偏光は見られない。

キセノンガスの背圧を14気圧とし、分光ストリークの時間掃引は0.5 nsレンジでプラズマからの発光を記録した。ジッター補正モード（各ショットごとにストリーク画像に表れるレーザー光パルスを基準点とし、その重心が重なるように各画像の時間軸を補正）で積算した。強度 $I_x$  $I_z$ それぞれの100 shot 積算を5回繰り返した。図4にキセノンプラズマからの $I_z$ 成分の分光ストリーク画像を示す。図4の破線で示した10~12 nm領域の発光強度の時間変化の強度比 $(I_x - I_z)/I_x$ を図5に示す。時間分解能はレーザーパルスの基準点の時間広がりから5 ps FWHMと見積もられる。強度 $I_x$ および $I_z$ はほぼ等しく大きな偏光は現れていない。偏光は50ps-150psで振動している。

Gloverらの報告では電子エネルギー分布は400 ps程度の時間でほぼ熱分布に緩和している。今回導入したマスターオシレーターにより、55psの時間分解能を得た。ジッター補正モードにより5ps FWHMも可能である。再結合連続光は弱く観測されていない。明るい計測系の開発が課題である。

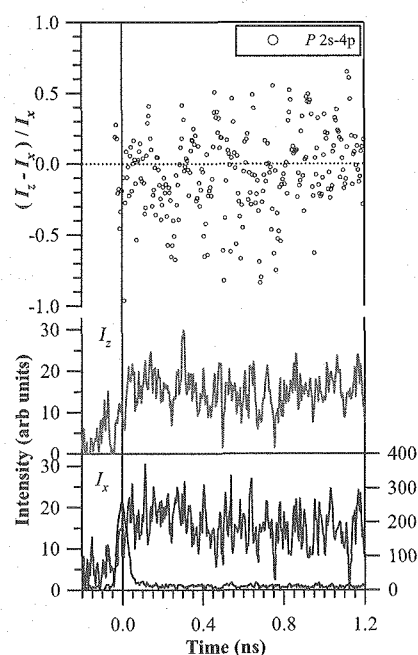


図3. リチウム様NV 2s-4p  
発光線強度 $I_x$ ,  $I_z$   
及び $(I_x - I_z)/I_x$ の時間変化

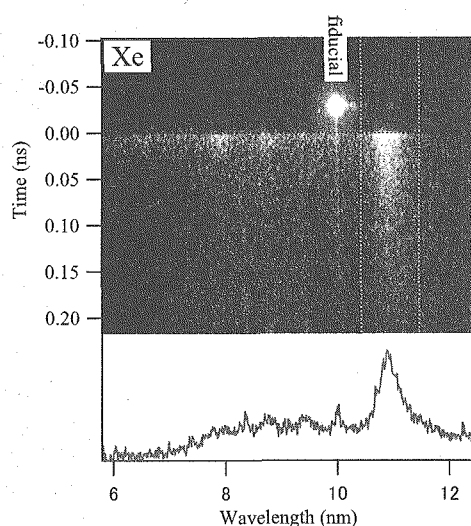


図4. Xe再結合プラズマ $z$ 方向スペクトルストリーク画像  
(0.5 ns 掃引:ジッター補正)

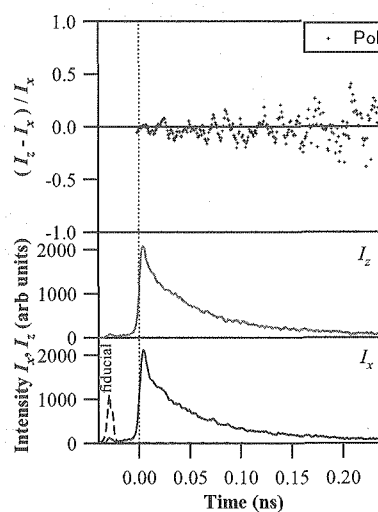


図5. Xe発光強度 $I_x$ ,  $I_z$   
及び $(I_x - I_z)/I_x$ の時間変化

## Reference

- [1] T.E. Glover *et al.* Phys. Rev Lett. **75**, 445 (1995).

## 5.11 亜鉛型色素を持つ新規な光合成細菌の反応中心における初期電子移動ダイナミクス

### Dynamics of the Primary Electron Transfer of Reaction Center Purified from a Novel Photosynthetic Bacterium Containing Zinc-Based Pigment

柴田 穰

名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻

Yutaka SHIBATA

Division of Material Science (Physics Section), Graduate School of Science, Nagoya University

**Abstract:** The author studied the primary photo-induced electron transfer process in the reaction center (RC) purified from a novel photosynthetic purple bacterium, *Acidiphilium rubrum*, which contains Zn-bacteriochlorophyll-*a* as a major photosynthetic pigment. The electron transfer dynamics was observed by detecting the temporal change in the fluorescence from the special pair pigments in RC that act as the primary electron donor. Measurement was done by the femtosecond fluorescence up-conversion technique. The observed fluorescence dynamics showed a rise with a time constant of 160 fs, and a decay of 3.3 ps. The former corresponds to the energy-transfer time from the neighboring pigments, and the latter the time constant of the primary electron transfer. The kinetics was quite similar to those observed in the other purple bacteria, indicating that Zn-based pigments are photosynthetically as effective as Mg-based pigments.

**Keywords:** Photosynthesis, Reaction center, fluorescence up-conversion, electron transfer

#### 1. はじめに

光合成生物は、太陽からの光エネルギーを利用して電子の流れを作り出し、自らの生体活動に利用できる化学的なエネルギーへと変換する。光エネルギー変換の最初の段階は、反応中心 (RC) と呼ばれるタンパク質で進行する。RC には複数の色素分子があり、そのうちのある特定のもの (スペシャルペアと呼ばれる色素二量体であることが多い) が光を吸収すると電子が放出される。いくつかの電子担体を経る電子伝達過程により、最終的に電子供与体 (ドナー) から電子受容体 (アクセプター) への電子の流れが作り出される。

植物の葉緑体におけるクロロフィル *a* (Chl-*a*)、光合成細菌におけるバクテリオクロロフィル *a* (BChl-*a*) は、これらの生物が光合成を行う上での主要な色素である。どちらも、光エネルギーの吸収、エネルギー輸送、光誘起電荷分離、電子伝達、といった光合成の重要な反応において主要な役割を担っている。これらの色素は中心にマグネシウム (Mg) を配位しており、これまでは Mg 以外の金属を配位したものが光合成反応において働くことはないと考えられてきた。化学的に Mg に近い亜鉛 (Zn) を中心に配位した Zn-Chl-*a* や Zn-BChl-*a* は、光吸収波長、酸化還元電位など Mg 型の色素とほぼ同じであり、きわめてよく似た光学的、電気化学的性質を示す。様々な条件下での安定性はむしろ Zn 型色素の方が高いため、人工光合成を目差した物質開発の場では Mg よりもむしろ Zn を中心に配位した色素をベ-

スに新規物質が合成され、一定の成果を上げてきた。なぜ、より安定性の低い Mg 型の色素が生物の光合成に利用されているかは、生体内での速やかな分解の必要性などの理由が推測されるが、明らかではない。

1996 年、亜鉛が中心金属となっている Zn-BChl-*a* を主要色素として持つ光合成生物 *Acidiphilium (A.) rubrum* が鉱山の酸性廃水から発見された[1]。Zn-BChl-*a* で機能する天然の光合成の発見は初めてである。*A. rubrum* は、これまでに反応機構や構造などの詳細な研究結果が蓄積されている紅色光合成細菌と同じタイプの RC を持つ。我々は *A. rubrum* を用いて、亜鉛型色素を利用した光合成が Mg 型を用いる通常的光合成と比べてどのような違いがあるのかを様々な観点から調べてきた。本研究では、*A. rubrum* における初期電荷分離反応を調べるため、精製した RC における fs 蛍光アップコンバージョン法の測定を行った。

## 2. 試料、実験装置

### 2-1. 試料

*A. rubrum* の細胞全体では、Mg-BChl-*a* も少量含まれるが、Zn-BChl-*a* が 9 割以上を占めていることが知られている[1]。RC には Zn-BChl-*a* のみが含まれている。RC は、コアアンテナ複合体 LH1 に囲まれ、LH1 の Zn-BChl-*a* により吸収された光エネルギーは、速やかに RC へと渡され初期電荷分離反応に利用される。LH1 も Zn-BChl-*a* を含むが、いくつかは Mg を含む BChl-*a* に置き換わっていると考えられる。

*A. rubrum* の RC 等のタンパク質試料は、嶋田らの方法により培養した細胞から精製した[2]。Fig.1 に、LH1 と RC の両方を含む膜標品 (①)、精製した LH1 (②)、RC (③) の吸収スペクトルを示す。比較のため、典型的な紅色光合成細菌 *Rhodobacter(Rb.) sphaeroides* の RC の吸収スペクトル (④) も示す。*A. rubrum* の RC で、749、793、842 nm に見られる吸収帯はそれぞれ、バクテリオフェオフィチン *a* (Bpfe-*a*)、アクセサリー Zn-BChl-*a*、初期電子供与 Zn-BChl-*a* スペシャルペアの吸収帯である。これらの吸収帯は、*Rb. sphaeroides* のものと比べ短波長にシフトしているが、有機溶媒中での吸収ピークは Zn-BChl-*a* の方が BChl-*a* よりも短波長に吸収を持つことと符合する。

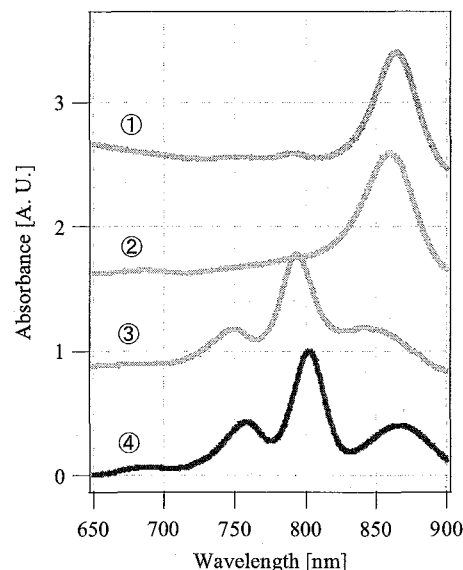


Fig. 1 Absorption spectra of *A. rubrum* membrane ①, LH1 ② and RC ③ purified from *A. rubrum*, and RC from *Rb. sphaeroides*. Spectra are offset vertically to avoid overlap

### 2-3. fs 蛍光アップコンバージョンシステムの構築

多くの紅色光合成細菌 RC の初期電荷分離反応は室温で光励起後 $\sim 3$  ps、低温で $\sim 1.5$  ps という超高速で進行することが知られている[3, 4]。 *A. rubrum* RC において、このような超高速反応を観測するため、fs 蛍光アップコンバージョン法の装置を構築した。蛍光法では、過渡吸収法のように反応生成物の吸収バンドに邪魔されることなく、反応物 (BChl スペシャルペアの励起状態) の減衰のみをモニターでき、よりクリアな情報が得られる。本研究のような未知の反応中心電子移動反応を観測するには最適の方法である。LH1 複合体内の BChl-*a* 間のエネルギー移動、それに伴う蛍光偏光解消等も観測可能となる。

励起は、BChl の Qy バンドのある 800 nm 付近の波長で行う。この波長では、最初アクセサリ-Zn-BChl-*a* が励起されるが、その後のエネルギー伝達によりスペシャルペアの励起状態が形成される。スペシャルペアが発する 900-950 nm の蛍光の減衰をモニターすることで、初期電荷分離反応のダイナミクスが観測される。励起光源は、Ti:S レーザーの基本波を用い、蛍光の集光にパラボラ鏡を用いるなどで $\sim 170$  fs の装置関数を得た。

### 3. 結果、考察

#### 3-1. *A. rubrum* の RC 蛍光減衰

これまでの実験で、*A. rubrum* の RC および *Rb. sphaeroides* の RC の蛍光ダイナミクスを測定し、初期電荷分離反応のダイナミクスおよびエネルギー移動ダイナミクスを解明した。測定では、励起を 810 nm のアクセサリ (Zn- or Mg-) BChl-*a* (B) の吸収ピークで行った。この条件では、最初に B が励起されその後エネルギー移動によりスペシャルペア (P) へと励起状態が移り最初の電子移動、 $P^* \rightarrow P^+ - B^-$  が誘起される。観測された蛍光ダイナミクスの速い立ち上がりから、 $B^* \rightarrow P^*$  のエネルギー移動速度が 160 fs と見積もられ、これは他の紅色光合成細菌で観測されている  $B^* \rightarrow P^*$  のエネルギー移動速度にほぼ等しい。蛍光の減衰成分については、3つの指数関数減衰でフィットされ、400 fs (34%)、3.3 ps (53%) および 16 ps (13%) の時定数が見積もられた。*A. rubrum* RC で遅い蛍光減衰となるのは、一番遅い 16 ps の成分の割合が高いことによる。このことから、*A. rubrum* RC では少し初期電荷分離の量子収率が低いと考えられる。また、*A. rubrum* RC のピコ秒領域の蛍光偏光異方性の測定から、B と P の遷移双極子モーメントの相対角度を見積もることができ、 $36^\circ$  という値が得られた。これは、同様の測定から *Rb. sphaeroides* で得られている値  $32^\circ$  にほぼ近い値となった。

以上のように、初期電荷分離、エネルギー移動ダイナミクス、および P と B の遷移双極子の角度など、今回調べられた性質は *A. rubrum* と *Rb. sphaeroides* 由来の RC で少しの違いは見られたが、ほぼ同じであった。これは、亜鉛とマグネシウムが似た化学的な性質を持つことから妥当な結果である。データは見せないが、スペシャルペアの酸化還元電位などの測定も行い、二つの生物でほぼ同じであるという結果を得ている。光初期反応に関しては、亜鉛型光合成は通常のマグネシウム型光合成とほぼ同じであることが分かった。

#### 4. 今後の展望

これまでの研究により、*A. rubrum* の初期反応過程が見えてきた。典型的な紅色細菌の反応ダイナミクスと、基本的には大きく変わらないようである。しかし、若干速い初期電荷分離反応速度が示唆され、今後が楽しみである。低温にしたときの振る舞いなども、興味深い。

#### 参考文献

- [1] Wakao N., et al., *Plant Cell Physiol.* **37** 889-893 (1996).
- [2] Shimada K., et al., in *Photosynthesis: Mechanism and Effects* (Garab, G. Ed.) pp731-734, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands.
- [3] Schmidt S., et al., *Spectrochim. Acta. Part A* **51** 1565-1578 (1995).
- [4] Lanterwasser C., et al., *Chem. Phys. Lett.* **183** 471-477 (1991).





## 5.12 超短パルスレーザーを用いた高輝度短パルス X 線の発生と固体表面からの高次高調波発生分光学的研究

Spectroscopic Study on High Brightness Ultra-short Pulse X-Ray and High-order Harmonic Generations

鈴木将之<sup>1)</sup>、馬場基芳<sup>1)</sup>、Jia Tianging<sup>1)</sup>、Jun Zhang<sup>1)</sup>、He Xingui<sup>1)</sup>、  
織茂聡<sup>2)</sup>、大道博行<sup>2)</sup>、黒田寛人<sup>1)</sup>

- 1) 東京大学物性研究所 (〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5)
- 2) 日本原子力研究開発機構関西光科学研究所量子ビーム応用研究部門  
(〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台 8-1)

Masayuki Suzuki<sup>1)</sup>, Motoyoshi Baba<sup>1)</sup>, Jia Tianging<sup>1)</sup>, Jun Zhang<sup>1)</sup>, He Xingui<sup>1)</sup>,  
Satoshi Orimo<sup>2)</sup>, Hiroyuki Daido<sup>2)</sup>, and Hiroto Kuroda<sup>1)</sup>

- 1) The Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo  
(5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan)
- 2) Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency  
(8-1 Umemidai, Kizu-cho, Souraku-gun, Kyoto, 619-0215, Japan)

We demonstrate the first observation of significant resonance enhancement of a single high-order harmonic generation using the low-density indium laser plasma in the extreme ultra-violet region. A strong 13<sup>th</sup> order harmonic with conversion efficiency is  $8 \times 10^{-5}$ , and this harmonic intensity is two orders magnitude higher than neighbor harmonics. Such a strong enhancement of high-order harmonic generation is due to the multiphoton resonance in indium ions.

### 1. はじめに

極端紫外域におけるコヒーレント光には高次高調波および軟 X 線レーザーがある。これらのコヒーレント光は生体試料の時間分解イメージング、X 線領域の非線形光学、物性研究および微細加工への応用が可能である。近年、チタンサファイアレーザー技術の高度化に伴い超短パルス (～20fs) 高エネルギー (～5J) のレーザーシステムがテーブルトップサイズで構築可能となり実験室レベルで極端紫外域のコヒーレント光の発生が可能となった。高次高調波発生メカニズムはトンネル電離により原子から放出された電子が、入射レーザーの光電場により加速され、そしてその 1 サイクル後に元の原子と再結合する時に放射される。このため入射レーザーのサイクルがモノサイクルであれば発生する高次高調波はアト秒 ( $10^{-18}$  秒) パルスになる。アト秒パルス発生研究はドイツ、マックスプランク量子光学研究所のグループが先駆的に行っており[1]、観測されている高次高調波の最短波長は 1.04nm(エネルギー: 1.3keV)である[2]。特に最近では、アト秒パルス発生[3]だけでなくアト秒時間スケールでの分子の配向、配列、並進運動、振動運動などの制御を試みる分子光学の研究が行われて[4]。現在、高次高調波と並んで極端紫外域のコヒーレント光には X 線レーザーがある。初期の軟 X 線レーザー発生は核融合用レーザー (1KJ クラスのパルスエネルギー) を用いていたが、ドイツ、マックスボルン研究所のグループが提案した過渡励起

方式を用いることで必要励起エネルギーを数 J (3-10J 程度) まで下げることができた[5]。しかし必要励起エネルギーが 3J を越すことから繰り返し発振は困難であった。その後、東京大学物性研究所のグループで縦型過渡励起方式をもちいて 150mJ (プレパルス 30mJ、メインパルス 120mJ) のパルスエネルギーで 18.9nm における Ni 様モリブデンの X 線レーザー発振に成功した[6]。そして現在ではこの方式を元にした斜入射型過渡励起方式を用いてアメリカローレンスリバモア国立研究所で 18.9nmNi 様モリブデン[7]、コロラド大学で 13.9nmNi 様銀[8]の繰り返し X 線レーザーの発振に成功している。他の繰り返し X 線レーザー励起方式は光電離型がありフランス応用光学研究所のグループが Pd 様 41.8nm キセノン及び Ni 様クリプトン 32.8nm の X 線レーザーの発振に成功しており[9]、ごく最近では高次高調波を種光に用いて波長 32.8nm の Ni 様クリプトン様 X 線レーザーの増幅に成功した[10]。以上のことから世界中で高次高調波および軟 X 線レーザーの短波長化、高出力化および短パルス化の研究が精力的に行われている。

今回、我々はアルカリ金属のカリウム分子を非線形媒質に用いた時に単一次数高次高調波の増幅が得られるシミュレーション結果[11-13]に注目した。共鳴増幅による高次高調波の準単色化を目的として低密度レーザープラズマを非線形媒質に用いて高次高調波発生を行った。低密度インジウムプラズマを非線形媒質に用いたとき、入射レーザーの中心波長 795nm における 13 次高調波、波長 61.26nm のみで高出力の高調波を得た。この 13 次高調波は周りの次数の高次高調波よりも 60 倍強かった。本報告書ではこの単一次数高次高調波増幅の実験結果およびその増幅のメカニズムについての考察を行う。

## 2. 実験配置

実験概略図を図 1 に示す。チャープパルスレーザーシステム中においてパルス圧縮する前のレーザーパルスの一部 (プレパルス) を真空チェンバー内に設置したインジウムターゲットに線集光してインジウムターゲット表面にプレプラズマを生成させる。約 100ns 後にパルス圧縮したレーザーパルスをプレプラズマ (低密度プラズマ) に集光して高次高調波を発生させる。発生した高次高調波は斜入射型回折分光器を用いて波長分解して MCP を用いてスペクトルの検出を行う。MCP は 100nm 以上の波長に感度がないため入射レーザーの強い光を分離することなく高調波のみを検出することができる。共鳴の効果を調べるため発振器の波長を 770-795nm まで中心波長を変化させて実験を行った。

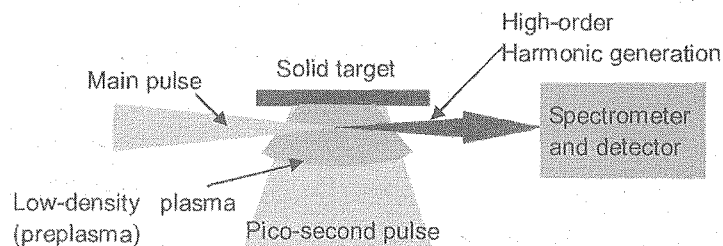


Fig.1 Experimental setup for high-order harmonic generation using low-density laser plasma.

## 3. 実験結果

低密度インジウムレーザープラズマをターゲットに用いたときの高次高調波のスペクトルを図 2 に示す。入射レーザーの中心波長 795nm に対して、波長 25.65nm おける 31 次までの奇数次の高調波が得られた。奇数次のみの高次高調波が得られた理由は低密度プラズマがガス化したためである。この時、最も注目する点は 13 次高調波、波長 61.26nm においてのみで非常に強い高調波発

生が得られたことである。このスペクトルが高調波であることを確認するためにフェムト秒レーザーパルスの偏光を直線偏光から円偏光に変えて実験を行った。その結果、円偏光にしたとき高調波が観測されなかったことから、このスペクトルが間違いなく高調波であることを確認した。波長 61.26nm における 13 次高調波の変換効率は  $8 \times 10^{-5}$  と周り的高調波に比べて 2 桁以上強い高いことがわかった。このことから得られた 13 次高調波のエネルギーは 0.8μJ であった。

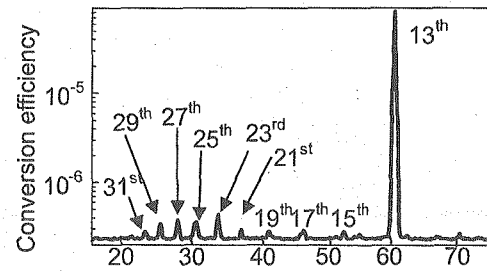


Fig.2. Typical harmonic spectrum using indium laser plasma

#### 4. 考察

現在まで高次高調波のエネルギー増大の実験はガスセルを用いて位相整合条件を長い相互作用長で満足する条件を作り出す[14]、または中空ファイバー内にモジュレーションをつけて擬似的位相整合条件を満たす状態[15]を作り出すことで達成されてきた。しかしながらこれらの実験結果はある単一波長域の高調波の出力が増幅しており、単一波長での増幅でない。銀をターゲットに用いたときは全波長域において他のターゲットを用いたときよりも 80 倍強くなっていることから位相整合条件が満たされた状態になっていると考えられる[16]。しかしインジウムを用いたときのように特定次数の高調波のみが増幅されることは位相整合の最適化とは考えにくい。そこで我々はインジウムプラズマ中で共鳴増幅が起きているのではないかと考えた。理由はインジウム 2 価、波長 62.24nm の  $4d^{10}5s^2S_0-4d^95s^25p(^2D)^1P_1$  遷移におけるオシレーターストレングスの計算値が 1.11 と他の周りに存在する遷移の値に比べて約 10 倍程度高いため[17]AC シュタルク効果により 61.26nm の高調波が共鳴増幅したと思われる。フェムト秒レーザーパルスの中心波長を 795nm および 770nm における高次高調波のスペクトルを図 3 に示す。中心波長 795nm のレーザーを用いたときは 13 次高調波のみが強い。一方中心波長 770nm のレーザーを用いたときは 13 次高調波の強度が弱くなり、15 次高調波の強度が強くなっている。これは中心波長 770nm のレーザーを用いたときの 13 次高調波の波長は 59.23nm となりインジウム 2 価、波長 62.24nm の  $4d^{10}5s^2S_0-4d^95s^25p(^2D)^1P_1$  遷移から大きく離れていくため共鳴増幅が起こらなくなったことを表している。中心波長 770nm のレーザーを用いたときの 15 次高調波の波長は 51.33nm であり、波長

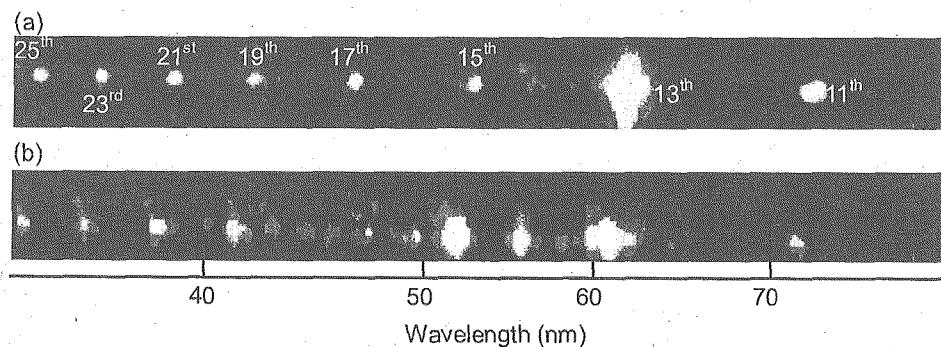


Fig.3 High-order harmonic spectra of the indium plasma at the central wavelength of (a) 795nm and (b) 770nm.

51.99nm におけるインジウム 2 価の  $4d^{10}5s^25p^3P_2-4d^95s5p^2(^3P)^3F_3$  遷移が AC シュタルク効果により増幅したと考えられる。インジウム 2 価の  $4d^{10}5s^25p^3P_2-4d^95s5p^2(^3P)^3F_3$  遷移のオシレーターストレングスは 0.30 と  $4d^{10}5s^2S_0-4d^95s^25p(^2D)^1P_1$  遷移と比較して 4 分の 1 程度である。そのため波長 770nm の 15 次高調波の強度増幅は波長 795nm の 13 次高調波より低くなると考えられる。

## 5. まとめ

低密度レーザーインジウムプラズマを非線形媒質として高次高調波発生の実験を行った。世界で初めて波長 61.26nm における単一次数高次高調波の増幅を観測した。この高調波のエネルギーは 0.8μJ という非常に高い出力を得た。現在、波長 61.26nm の領域でのみで増幅が観測されているが、この発生物理機構の理解がより明白になれば、短波長領域で単一高調波増幅の可能性がある。その結果、“水の窓” (2.3-4.4nm) 領域において単一波長の高調波増幅発生が可能になれば、生体試料の時間発展イメージングに応用が可能になり非常にインパクトのある結果が得られる。そのためには、今後より短波長領域での単一波長域での増幅を目指す。

## 謝辞

高次高調波発生実験にあたりウズベキスタン科学アカデミーの R. A. Ganeev 教授ならびにケベック大学国立研究所の尾崎恒之助教授の協力に謝意を表します。本研究は文部科学省が実施している学術創成プロジェクト「新型高性能軟 X 線レーザーの物理と開発実用化の研究」で得られた成果の一部である。

## 参考文献

- [1] R. Kienberger, E. Goulielmarkis, M. Uiberracker, *et al.*, *Nature* **427**, 817 (2004).
- [2] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, *et al.*, *Nature* **433**, 596 (2005).
- [3] T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai, and S. Watanabe, *Nature* **432**, 605 (2004).
- [4] H. Niikura, F. Legare, R. Hasbani, *et al.*, *Nature* **421**, 826 (2003).
- [5] P. V. Nickels, V. N. Shlyaptsev, M. Kalachnikov, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 2748 (1997).
- [6] T. Ozaki, R. A. Ganeev, A. Ishizawa, T. Kanai, and H. Kuroda, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 253902 (2002).
- [7] R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 103901 (2005).
- [8] Y. Wang, M. A. Larotonda, B. M. Luther, *et al.*, *Phys. Rev. A* **72**, 053807 (2005).
- [9] S. Sebban *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 2503901 (2002). S. Sebban *et al.*, *ibid.* **86**, 3004 (2001).
- [10] Ph. Zeitoun, G. Faivre, and S. Sebban *et al.*, *Nature* **431**, 426 (2005).
- [11] M. B. Gaarde, and K. J. Schafer, *Phys. Rev. A* **64**, 013820 (2001).
- [12] E. S. Toma, Ph. Antoine, A. de Bohan, and H. G. Muller, *J. Phys. B* **32**, 5843 (1999).
- [13] C. Figuerira de Morisson Faria, R. Kopold, W. Becker, and M. Rost, *Phys. Rev. A* **65**, 033404 (2002).
- [14] E. Takahashi, Y. Nabekawa, T. Otsuka, M. Obara, and K. Midorikawa, *Phys. Rev. A* **66**, 012802 (2002).
- [15] A. Paul, R. A. Bartles, R. Tobey, *et al.*, *Nature* **421**, 52 (2003).
- [16] R. A. Ganeev, M. Baba, M. Suzuki, and H. Kuroda, *Phys. Lett. A* **339**, 103 (2005).
- [17] D. G. Duffy and P. Dunne, *J. Phys. B* **34** L173 (2001).



### 5.13 位相回転によるレーザー生成陽子のエネルギーピーク形成

#### Peak Creation in the Energy Spectrum of Laser-Produced Protons by Phase Rotation

野田 章、中村 衆、岩下 芳久、白井 敏之、頓宮 拓、伊東 宏之、想田 光、山崎 淳  
田邊 幹夫、大道 博行\*、森 道昭\*、加道 雅孝\*、匂坂 明人\*、小倉 浩一\*、  
西内 満美子\*、織茂 聡\*、林 由紀雄\*、余語 覚文\*、セルゲイ ブラノフ\*、  
チムール エシルケポフ\*、長島 章\*、木村 豊秋\*、田島 俊樹\*、福見 敦<sup>#</sup>、黎 忠<sup>#</sup>

京都大学化学研究所附属先端ビームナノ科学センター

\* 独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

<sup>#</sup>独立行政法人放射線医学総合研究所医用重粒子物理・工学研究部

Akira NODA, Shu NAKAMURA, Yoshihisa IWASHITA, Toshiyuki SHIRAI, Hiromu TONGU,

Hiroyuki ITO, Hikaru SOUDA, Atsushi YAMAZAKI, Mikio TANABE, Hiroyuki DAIDO\*

Michiaki MORI\*, Masataka KADO\*, Akito SAGISAKA\*, Koichi OGURA\*,

Mamiko NISHIUCHI\*, Satoshi ORIMO\*, Yukio HAYASHI\*, Akifumi YOGO\*,

Sergei BULANOV\*, Timur ESIRKEPOV\*, Akira NAGASHIMA\*, Toyoaki KIMURA\*,

Toshiki TAJIMA\*, Atushi FUKUMI<sup>#</sup>, Zhong LI<sup>#</sup>

Advanced Research Center for Beam Science, Institute for Chemical Research, Kyoto University

\* Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

<sup>#</sup>National Institute of Radiological Sciences

In collaboration between JAEA, Kansai Photon Science Institute and Institute for Chemical Research, Kyoto University, proton generation from a thin foil target (Ti 3 or 5  $\mu\text{m}$  in thickness). with use of 10 TW laser (JLITEX) has been performed. Proton production is optimized by real time proton energy measurement with use of TOF method. Phase rotation with use of an RF electric field phase-synchronized to the pulse laser enabled the creation of peaks with the spread of  $\sim 7\%$  in the energy spectrum of the produced protons, which resulted in the increase of the intensity  $\sim 4$  times at peak position.

**Keywords:** Ultrashort pulse laser, High intensity, Proton production, TOF, Phase rotation

#### 1. はじめに

京都大学化学研究所はがん治療用粒子線加速器の小型化を目指して、イオン加速用シンクロトロンの入射器ライナックをレーザーイオン源で置き換える開発を日本原子力研究開発機構関西光科学研究所との共同研究により進めてきているが、今年度は協力研究により 10TW レーザー (JLITEX) を用いた固体薄膜 (Ti: 3 $\mu\text{m}$  及び 5 $\mu\text{m}$ ) からの陽子生成実験と「位相回転」と称するパルスレーザーと位相同期した高周波電場 (80.6MHz) による縦方向位相空間内での回転を行い、生成陽子ビームのエネルギーの拡がりを縮減して、エネルギー分布にピークを形成する実験を遂行したので、その結果に関して報告する。

## 2. 陽子生成及び位相回転実験のセットアップ

日本原子力研究機構・関西光科学研究所の Ti:Sapphire レーザー JLITEX を Fig.1 に示したように軸外し角  $15^\circ$ 、焦点距離 646mm の軸外し放物面鏡(OAP)を用いて、Ti フォイルのターゲット（厚さ  $3\mu\text{m}$  or  $5\mu\text{m}$ ）上に  $11 \times 15\mu\text{m}$  (FWHM)のサイズに集束している。ターゲット上でのレーザーパワー密度は最大で  $9 \times 10^{17} \text{W}/\text{cm}^2$  に達し、メインパルスより 12.5ns 程度前に存在するプリパルスのコントラスト比は  $10^{-5}$  以下に制御されている。JLITEX のパルス幅は最短 35fs まで可能であるが、この実験では最適化の結果 250fs のパルス幅で実験を行った。

レーザーにより生成される陽子は主としてターゲットの垂直方向に  $10^\circ$  の角度拡がりて生成されることがこれまでの CR39 を用いた測定により判明している。今回我々はレーザーに

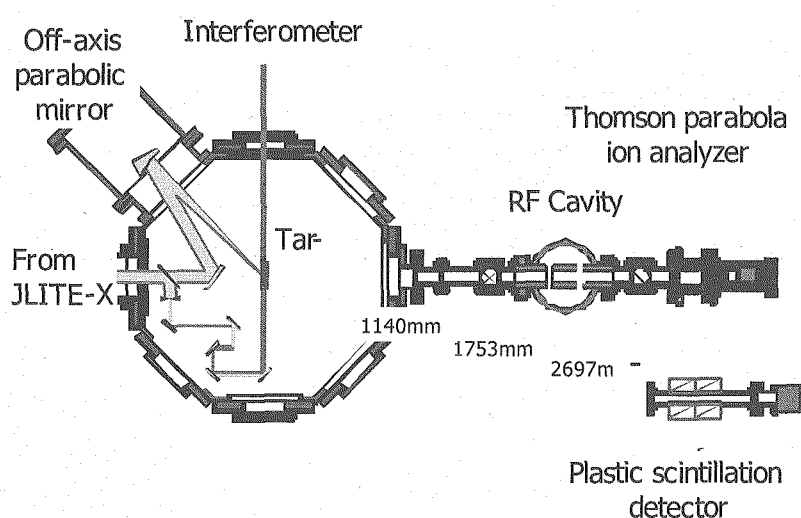
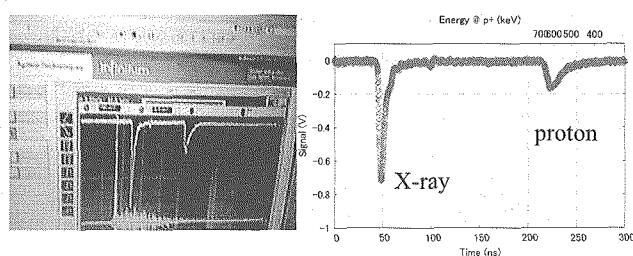


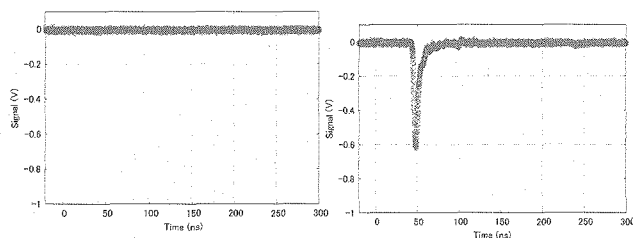
Fig. 1 Experimental set up of laser proton production and phase rotation.

より生成された陽子のエネルギーをリアルタイムで効率よく測定する目的で、厚さ 0.2mm のプラスチックシンチレータからの信号を用いた陽子の飛行時間 (Time of Flight: TOF) を用いる手法を考案し (特許取得済)、

Fig.1 に示したように、Thomson Parabola と入れ替えることにより効



(a) signal at the oscilloscope (b) with target after optimization



(c) without target (d) with target before optimization

Fig.2 Observed signal of the time of flight of proton by the plastic scintillation counter.

率良く、高エネルギー陽子の生成を可能とするパラメータの最適化を行うことが出来た。高強度レーザーによる固体からの陽子の生成は、従来は強烈なバックグラウンドのもとでも使用可能な CR39 を用いた計測が中心で、測定結果の解析のためには CR39 を真空槽から取り出し、エッチングした後、光学顕微鏡で一つずつ計数する必要があるため、数日を要していた。今回我々が開発したバックグラウンドを抑制するための対策を施したプラスチックシンチレータを用いた飛行時間法によるリアルタイムでの陽子エネルギーの計測手法により、レーザー生成陽子のエネルギー測定が Online で可能となり、レーザーの集光条件

やターゲット位置等の最適化が格段に効率良く遂行可能となった。Fig.2 に今回我々が開発したバックグラウンドの除去性能を格段に向上したプラスチックシンチレータにより検出した陽子信号を用いた飛行時間(TOF)測定の様子をターゲット無し、及びターゲット

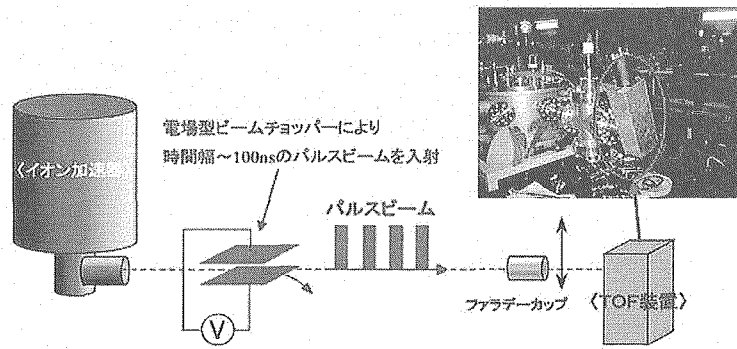


Fig.3 Experimental setup for sensitivity calibration of plastic scintillation counter.

### 3. エネルギースペクトルの測定

レーザー生成陽子のエネルギースペクトラムの精密なデータはトムソンパラボラとその後ろに設置した CR39 を用いた測定により得られている。今回開発した TOF 法ではレーザーやターゲットの諸条件の最適化を効率的に行うため、生成陽子のエネルギーを近似的にでもリアルタイムで得

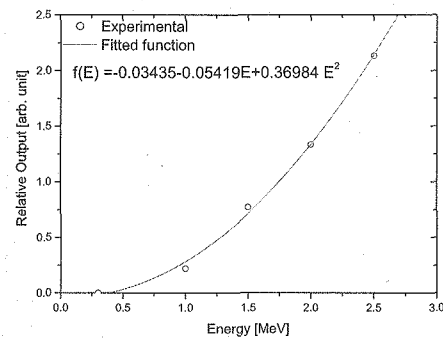


Fig.4 Calibrated sensitivity of the plastic scintillation counter for various energies.

ることを主眼に置いた開発を進めてきたが、これにより得られたエネルギースペクトルを可能な限り精密化する目的で、プラスチックシンチレーションカウンターの感度校正実験を行った (Fig.4 参照)。実験は京大工学研究科附属量子理工学研究実験センターのバンデグラーフ加速器からのビームを用いて行い、シンチレータ感度のエネルギー依存性を実測し補正を加えた。

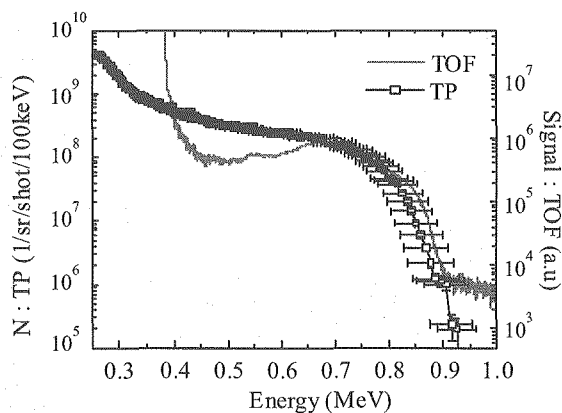


Fig.5 Comparison of energy spectra of laser-produced protons with TOF and Thomson Parabola (TP).

Fig.5 に示したようにこの補正により 650MeV 以上のエネルギー分布は誤差棒の範囲内でトムソンパラボラと CR39 により得られたものと一致することが確認でき、レーザーによる高エネルギーの陽子ビーム生成の最適化という目的のためには、このプラスチックシンチレータによるリアルタイムの TOF 測定が充分役割を果たしうることが確認できた。

### 4. 位相回転によるエネルギーピーク生成

前記の TOF を用いた陽子生成の最適化の後、これを Thomson Parabola に置き換え、ターゲット

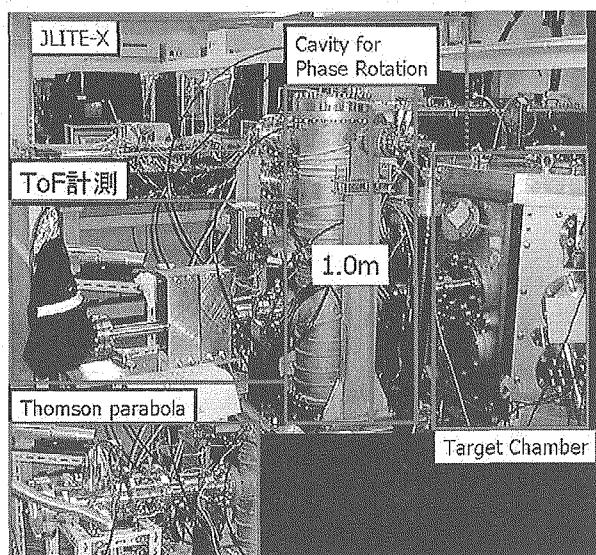


Fig.6 Experimental set up for phase rotation of laser produced protons.  $\lambda/4$  wave length RF cavity for phase rotation is set between the target chamber and Thomson parabola.

厚さ  $3\mu\text{m}$  の Ti ターゲットから生成された陽子に対する典型的な位相回転の結果を Fig.7 に示した。900keV までの陽子の生成が確認されており、位相回転により、エネルギー幅 7% 程度の複数のピークが生成されることが確認されている。図から位相回転を行うことにより、エネルギーピーク位置での陽子ビーム強度が位相回転を行わない場合に比して 4 倍程度増大可能であることが判明し、レーザー生成陽子ビームの実用化に向けて大きな役割を果たすと期待されている。

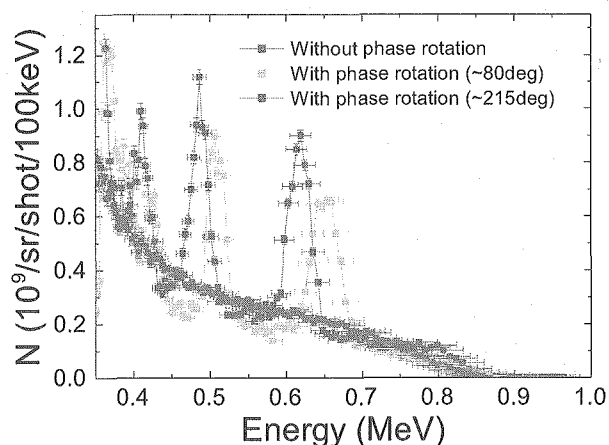


Fig.7 Change of the energy spectrum of laser produced proton by phase rotation for two different RF phases.

トチェンバーとの間に  $1/4$  波長 RF 共振器の位相回転空洞を設置して (Fig.6 参照)、パルスレーザーに対して位相を種々変化させた場合の生成陽子のエネルギースペクトルの測定を行った。

## 5. 謝辞

ここに報告した研究は日本原子力研究機構、関西光科学研究所との協力研究として文部科学省の先進小型加速器のための要素技術開発の財政的支援を得て遂行された。また、京都大学 21 世紀 COE-物理学の多様性と普遍性の探求拠点一からも支援を頂いた。ここに記して厚く謝意を表したい。

## 参考文献

- [1] A. Noda et al., "Phase rotation scheme of laser-produced ions for reduction of the energy spread", *Laser Physics*, Vol. 16, No.4 (2006) pp647-653.
- [2] A. Fukumi et al., "Laser polarization dependence of proton emission from a thin foil target irradiated by a 70 fs, intense laser pulse", *Physics of Plasmas* 12 (2005) 100701.
- [3] M. Nishiuchi et al., "The laser proton acceleration in the strong charge separation regime", *Physics Letters A* 357/4-5 (2006) pp339-344.
- [4] A. Yogo et al., "Enhancement of high energy proton yield with a polystyrene-coated metal target driven by a high-intensity femtosecond laser", *Applied Physics* B83 (2006), pp487-489.
- [5] S. Nakamura et al., "Real-time optimization of proton production by an intense short-pulse laser with a time-of-flight measurement", *Japanese Journal of Applied Physics*, accepted for publication.





## 5.14 表面活性化手法による光学素子接合技術の開発 Developments of a bonding technique for optical materials by a surface activation method

杉山 僚<sup>a</sup>、小田知弘<sup>b</sup>、阿部智之<sup>b</sup>、楠 勲<sup>b</sup>

<sup>a</sup>独立行政法人 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門  
〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台 8-1

**Akira SUGIYAMA**

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency  
8-1 Umemidai Kizu-cho, Souraku-gun, Kyoto 619-0215 Japan

<sup>b</sup>アユミ工業株式会社

〒671-0225 兵庫県姫路市別所町家具町 60 番地

**Tomohiro ODA, Tomoyuki ABE and Isao KUSUNOKI**

Ayumi Industry Co. Ltd.  
60 Kagumachi, Bessho-cho, Himeji, Hyogo 671-0225 Japan

We have been developing a pair of sample holder used for optics in the surface activation bonding equipment. The holder can adjust the relative position of samples in the order of sub mm. To study the degree of dislocation appearing crystal surface activated by a fast atomic beam, irradiated sapphire crystals were examined by RBS, XPS, and AFM analysis. The heat treatment recovered the surface roughness of irradiated sapphire when the heating temperature reached at 1573K.

**Keywords: Surface Activation Bonding, Sapphire, RBS, XPS**

### 1. はじめに

光量子科学研究センターにおける次世代の超高ピーク出力レーザーを開発する上で、耐熱性の高い光学素子や複合的な光機能を誘発できる新たな光学素子を開発することは必要不可欠である[1]。我々はこの実現に向けてH15年度より、共同研究を実施し新たな接合技術の開発を行っている。平成17～18年度は高精度位置あわせを可能にするためのサンプルホルダーの試作を行うと共に、表面活性化時の中性アルゴンビーム照射条件の最適化に向けたFAB（Fast Atom Beam：高速原子ビーム）の特性把握を行った。

### 2. サンプルホルダーの試作

過年度の共同研究にて製作した表面活性化接合装置に組込むことができる高精度位置あわせが可能なサンプルホルダーの設計・試作を行なった（Fig. 1 参照）。このサンプルホルダーに求められる条件として以下の項目が挙げられる。

- ・ サブミリオーダーの位置決め精度が得られる事
- ・ サンプルの相対位置について X, Y,  $\theta$  方向の調整が可能な事

- ・ 光学顕微鏡下での位置決めができる事
- ・ FAB 照射角度を任意に変えられる事
- ・ 結晶コンタクト後のホルダーの Z 方向の動きを容易に固定できる事
- ・ 上下 2 方向から同時照射される FAB を妨げない事
- ・ 真空容器内外の圧力差によって生じる加重を 0 ～ 10 kgf に抑えられる事

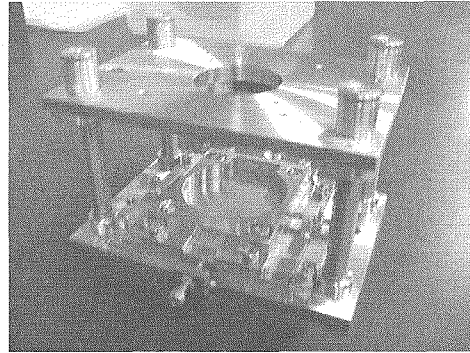


Fig. 1 試作1号機

特に真空中での加重については大気圧下の場合と異なり、ロードセルのシャフトが内圧によって引き込まれるので、より高い圧力が接合面に加わってしまう。サンプルの接合面積が小さいと、この圧力差に基づく加重が破損の原因となるため、加重をキャンセルするようなバネ等を用いた機構が必要である。これまでの調整によって圧力差によって生じる加重を 40 kgf から 30 kgf に減少させた。更に 10 kgf に減少させるための改造を行う。

### 3. 表面活性化用 FAB の特性把握

表面活性化法は、研磨加工によって平滑化された 2 つの結晶表面に FAB を同時照射して、吸着不純物等を除去することで表面エネルギーを増加・活性化し、加圧接触によりダングリングボンドを介した接合を行なう方法である[2,3]。この際に、FAB の照射条件すなわち、加速電圧、照射電流、照射角度によってどの程度、照射面にダメージが生じるかを把握することは極めて重要である。過度の照射は、面粗度の増加による未接合を招く恐れがある。

そこで、サンプルに単結晶サファイアを用いて FAB 照射を行い、照射後のサンプル表面に生じた原子配列の乱れ具合について把握を行った。

1～2mtorr 圧力下の表面活性化装置内で、厚さ 300 $\mu$ m のステップ処理済  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(0001) 基板 (信光社製) に、0.6～2 keV の範囲で加速電圧の異なる中性アルゴンビームを約 10 分間照射した。更に加速電圧を 2 keV に固定した状態で、基板への FAB 照射角度を 9～37° の範囲で変化させて照射した。また、ビーム照射後の基板数点については、723～1723 K の異なる温度で 10 時間の熱処理を行った。結晶サンプル表面に現れた結晶の形態変化を高精度に測定するために、TIARA 施設の静電加速器及び簡易型イオンビーム解析装置を用いて、RBS (Rutherford Back Scattering) 測定を行うと共に、XPS (X-ray Photo Spectroscopy) 測定による結晶表面の元素分析を行った。これらの試験結果から、結晶のランダム度並びに照射によってもたらされた残留アルゴン量を評価した。また以上の評価と併せて、AFM による結晶表面の形状変化について観察を行った。

### 4. 結果及び考察

Fig. 2 に、FAB の照射電圧に対する結晶のランダム度及び残留アルゴン存在比の依存性を示す。これらの値は、未照射のサンプルを理想的な結晶と見做し、この結晶との比較から

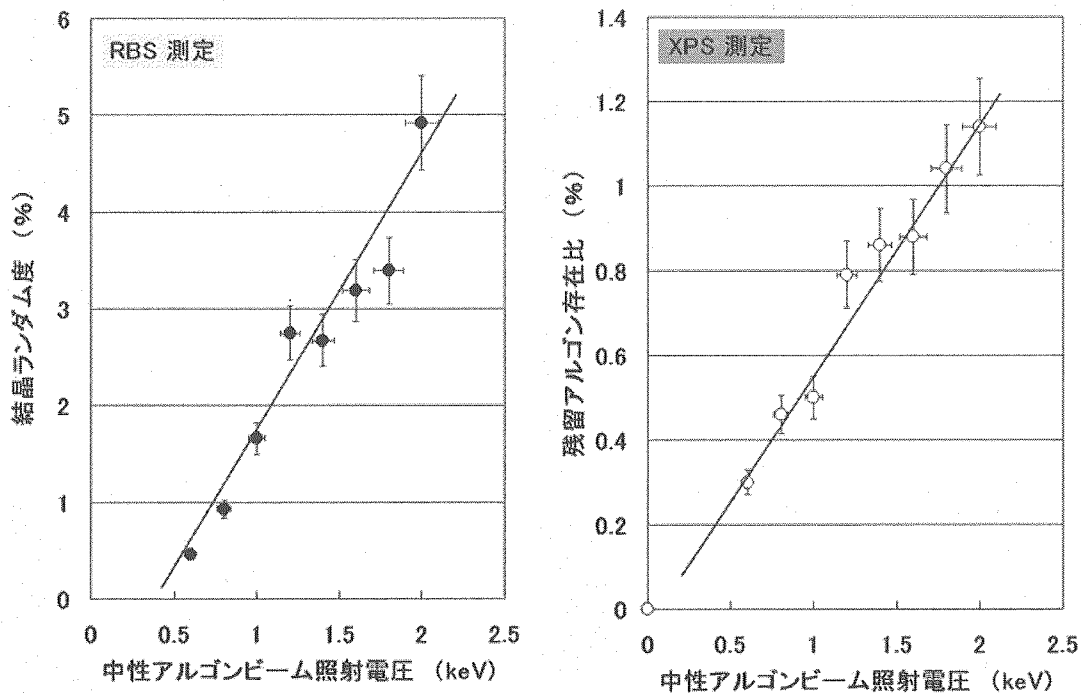


Fig. 2 単結晶サファイアの表面状態のFAB照射電圧依存性

求めた。ランダム度はRBS測定における結晶軸入射及びランダム入射のサンプル配置において得られた1.10MeV近傍のAl元素後方散乱エネルギースペクトルの差から求めた。また、残留アルゴン量は、Al(2p)、O(1s)及びAr(2p)の各XPSスペクトルからその存在比を求めた。図から、照射電圧の増加に伴って比例的にランダム度及び残留アルゴン量が増えている。同様な比例増加傾向は、ビーム照射角度の増加に対しても現れた。特に照射角度については、従来の角度35°に対して15°以下の浅い角度で活性化することにより、結晶のランダム度及び残留アルゴン量を3分の1に減少できる。浅い角度での照射によって、照射ダメージが低減できる可能性があると思われる。

一方、熱処理後照射サンプルのRBS測定からは、処理温度の増加に伴う結晶性の回復が得られた。1373 K以上の熱処理温度において結晶性はほぼ回復できると共に、残留アルゴンも除去されることが明らかとなった。この回復状態について、形状変化の観点から調べるためにAFM測定を行った。Fig. 3に、熱処理前後の表面形状変化を示す。その結果、FAB照射直後の平均表面粗さ(Ra) 4.27 nmは、1573 Kの熱処理によって0.69 nmと照射前の0.43nmの状態に近づくことを改めて確認することができた。

## 5. 結 論

光学素子の接合において必要な高精度位置決めが出来る結晶ホルダーの試作を行った。現在、圧力差に基づく加重を低減させるための改造を検討中である。また、RBS及びXPS測定によるFABの特性試験から、FABの主なパラメータである照射電圧及び照射角度の結晶表面状態に対する依存性が得られた。熱処理後のサンプルは、処理温度の上昇に伴い、

結晶性がほぼ回復する事が明らかとなった。

接合表面の活性化には照射電圧及び照射角度をより小さくすることが妥当と推測される。  
今後の試験において、光学特性を評価しつつ、これらのパラメータの最適化を行う。

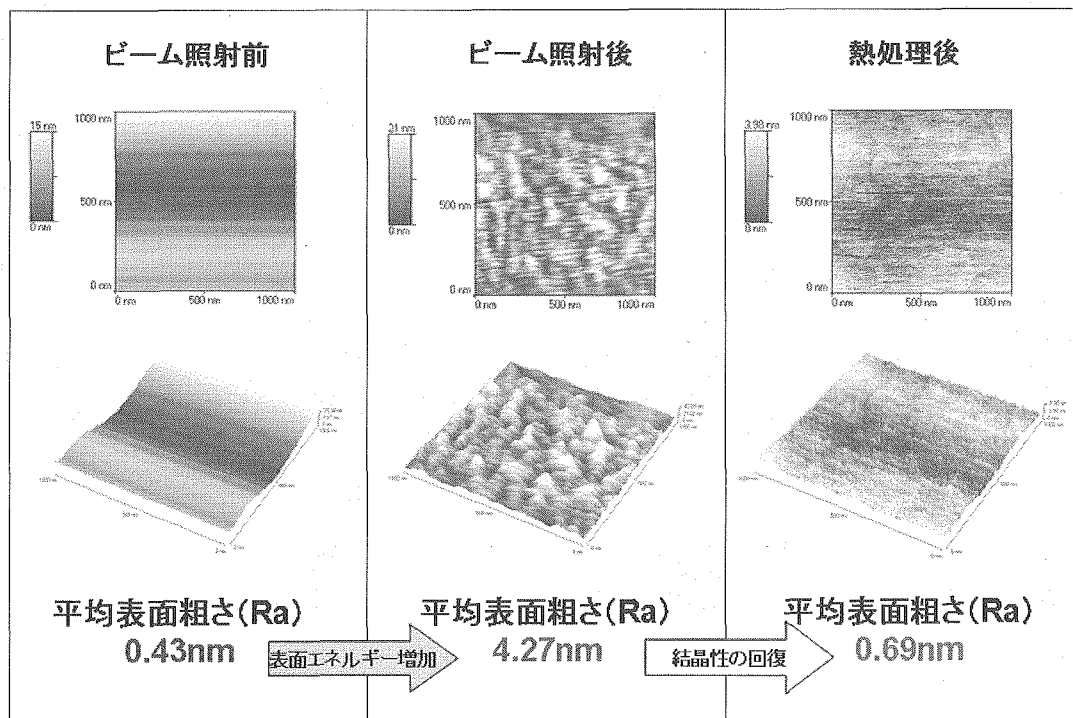


Fig. 3 AFM による結晶表面状態の観察

#### 参考文献

- [1] A. Sugiyama, Jpn. Weld. Soc. **75**, pp. 9-13 (2006).
- [2] T. Suga, Mater. Jpn. **35**, pp. 496-500 (1996).
- [3] T. Furukawa, Am. Met. Mark. **100**, pp. 4 (1992).



## 5.15 レーザープラズマ EUV 光源の概要..

### Status of Laser-produced Plasma EUV Light Source

遠藤 彰、高林 有一、溝口 計、佐々木 明<sup>a</sup>  
ギガフォトン株式会社、日本原子力研究開発機構<sup>a</sup>  
Akira Endo, Yuichi Takabayashi, Hakaru Mizoguchi, Akira Sasaki<sup>a</sup>  
Gigaphoton Inc., <sup>a</sup>Japan Atomic Energy Agency

The development status of the key technologies for a HVM laser produced plasma EUV light source is presented. This includes the high-power RF-excited CO<sub>2</sub> laser, the Sn droplet target and the collector mirror lifetime enhancement (debris, ion mitigation). Basic experiments that support the development, e.g. a conversion efficiency of 2.8% has been obtained with a 15ns TEA CO<sub>2</sub> laser and a Sn wire, as well as a general outline of the system development, i.e. system scaling, towards >115 W is given.

**Keywords :** EUV light source, EUV lithography, Laser produced plasma

#### 1. はじめに

プラズマから放射される 13.5nm 近傍の極端紫外線 (EUV) を光源として用いる EUV リソグラフィーは、32nm ノード以細の半導体リソグラフィー技術の有力候補として注目されている [1, 2]。EUV リソグラフィー実用化の鍵は、高出力の実用的 EUV 光源の開発とされており、レーザー生成プラズマ (LPP) 方式と放電生成プラズマ (DPP) 方式の 2 方式の光源開発が集中的に行われている。LPP 方式は、ターゲット供給ノズルからプラズマまでの距離を比較的長く取れること、清浄なプラズマであり、かつ発光サイズが小さい点等の利点がある。この反面レーザーを介するため、電気入力から EUV 出力への変換効率が現状 0.1%程度と低いことと、要求 EUV 出力 (>115W [3]) を得るには 10~20 kW 級出力のレーザーが必要なため、装置コストが高くなる傾向がある。また、EUV 光源実用化に際しては、高価な EUV 集光ミラーの寿命課題の解決が必要となる。

本稿では、EUV リソグラフィー量産工程への利用を目指した、将来の高出力実用 EUV 光源の構成と実現に向けた研究開発について報告する。

#### 2. 高出力実用 EUV 光源の開発

将来の高出力実用 EUV 光源の構成模式図を図 1 に示す。この模式図は、EUV 変換効率を 2%とした場合における、集光点で 115W を得るために必要なレーザー出力を試算したものである。レーザー出力としては 18kW が必要と試算される。115W 以上の高出力 EUV 光を、経済的に成り立つ装置コストで実現するためには、EUV 変換効率 (EUV 出力/レーザー出力) の向上と、レーザー装置価格の低減が必要となる。EUV 変換効率に関しては、ターゲット材質の選択に大きく依存する。この他、実用化の課題である EUV 集光ミラーの寿命延長に関しては、プラズマから発生する高速イオンの制御とデブリの抑制が重要といえる。

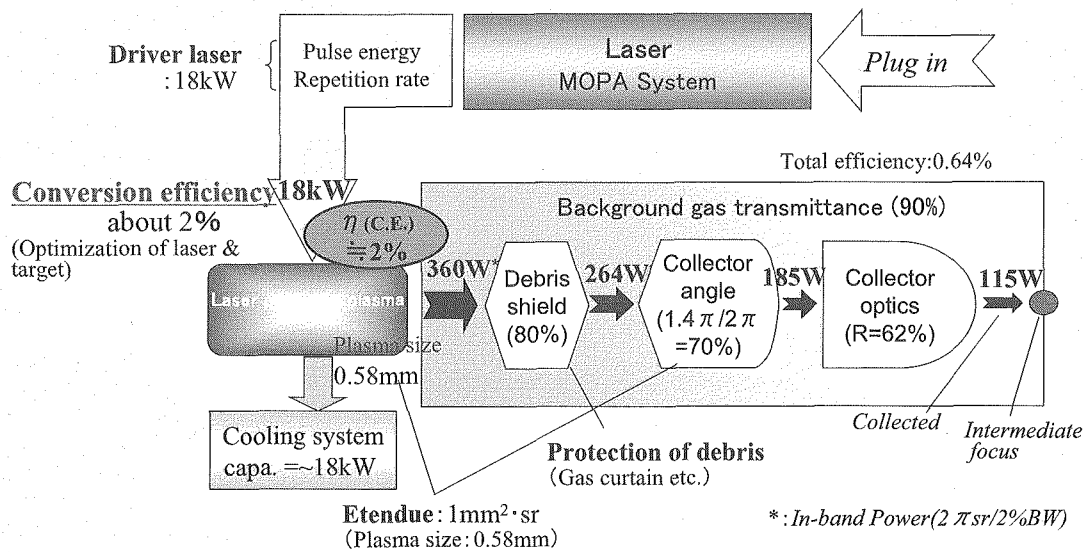


図 1. 高出力実用 EUV 光源の構成模式図

## 2. 1 ターゲット開発

EUV プラズマのターゲット開発に関しては、ターゲット材質の選択とターゲット供給技術の確立が必要である。13.5nm の EUV 光を発生するターゲット材質としては、一般に Xe (キセノン) と Sn (錫) が代表的な候補となっている。これらの物質の EUV 光の発生に関しては、理論モデルに基づいた計算解析が進められている。図 2 は Xe と Sn の共鳴線波長の価数依存を示したグラフである。共鳴線の内、4d-4f 遷移の発光波長は、元素ごとにほぼ一定であり、Xe では 11nm、Sn では 13.5nm である。このため、Xe では 11nm、Sn では 13.5nm をピークとしたスペクトル形状が観測されている。Sn の場合は、EUV リソグラフィーで用いる波長 13.5nm が、スペクトルのピーク波長と丁度一致するため、スペクトル利用効率が Xe の場合よりも高く、EUV 変換効率が高いことが期待される。

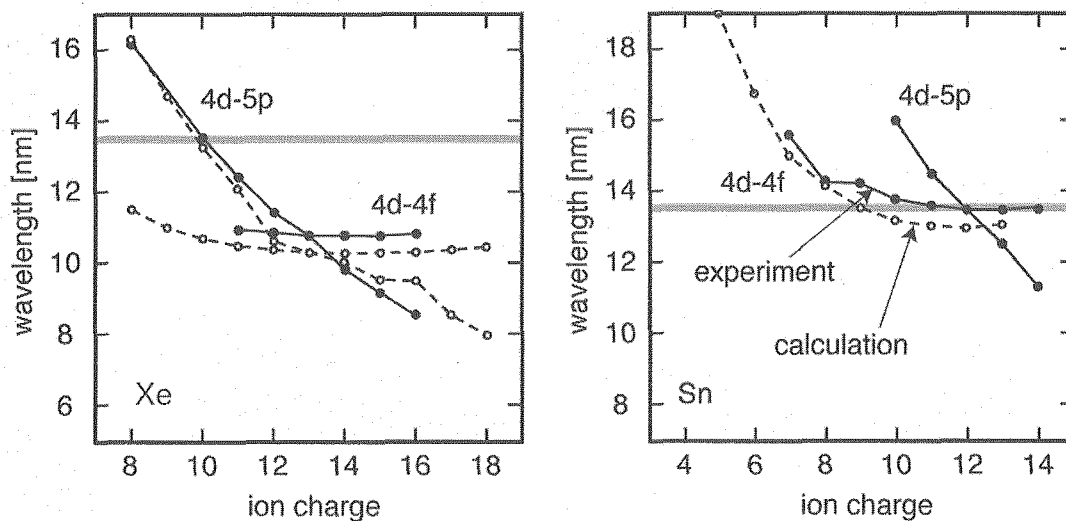


図 2. Xe と Sn の共鳴線波長の価数依存

ターゲット供給技術に関しては、ターゲットを連続した微細球状で供給する、ドロップレットターゲット[4]が高繰り返しレーザー照射に対応したターゲットとして有望と考える。また、ターゲット開発に際しては、2.3 節で述べるように、高価な集光ミラーの寿命を左右するデブリや、高速イオンの発生も考慮して開発を進める必要がある。

## 2. 2 ドライバレーザー開発

プラズマを生成するためのドライバレーザーは、115W 以上の EUV 光を得るために、10~20kW 級のレーザー出力が必要となる。ドライバレーザーとしては、従来から Nd:YAG レーザーが一般的に用いられている。Nd:YAG レーザーは、固体レーザーであるため取扱い易い利点があるが、装置価格が高額になる。これは、媒質の励起に用いている半導体レーザーが、現状においては高価であることによる。一方、産業界で利用されている CO<sub>2</sub> レーザーをパルス動作での最適化を行い、EUV プラズマ生成へ応用することは、装置コストの面で利点がある。EUVA での最近のデータとして、RF 励起 CO<sub>2</sub> レーザーを増幅器とした MOPA システムにより、2.6kW（繰り返し周波数 130kHz）の出力が得られている[5]。

Sn ワイヤーを CO<sub>2</sub> レーザーで照射した EUVA での実験においては、最大で 2.8% の EUV 変換効率が得られている。また、Sn ターゲットを Nd:YAG レーザーで照射した場合と比較しても、CO<sub>2</sub> レーザー照射の場合は Nd:YAG レーザー照射の場合よりも、より低いレーザー強度において高い変換効率が得られている[6]。これは、CO<sub>2</sub> レーザー波長の場合、電子臨界密度が Nd:YAG レーザーの場合よりも低いため、イオン密度の薄い領域で EUV 発光が行われているため、プラズマによる再吸収が少なくなったためと考えられる。Sn ターゲットと CO<sub>2</sub> レーザーの組み合わせが良いと考えられる。

## 2. 3 EUV 集光ミラーの保護技術

EUV 集光ミラーは、プラズマ発光点から 100~150mm の距離に設置されて、発生した EUV 光を露光装置の照明光学系へ反射集光するものである。EUV 光の捕集効率を高めるために、 $\pi$  sr 以上の捕集立体角と 60% 以上の反射率を得るには、集光ミラーは、開口径が 200mm 程度以上の大きさで、基板表面が約 0.2nm(rms) の平坦度が要求される。このため、集光ミラーは現状において非常に高価なものとなっている。一方で、集光ミラーはプラズマ近傍の厳しい環境に置かれているため、プラズマから発生する高速イオンによる多層膜のスパッタリング損傷や、特に Sn ターゲットの場合のデブリ（飛散粒子）の反射面への付着が問題となる。高速イオンの対策としては、EUVA での実験より、磁場を用いたイオンの制御が有効であることが示されている[6]。実用 EUV 光源への磁場制御の適応に際しては、開口径の大きな集光ミラーに対応した、大きな磁場空間を有する磁石の製作が課題と考える。デブリの抑制に関しては、先に述べたドロップレットターゲットに代表される、質量制限ターゲットを用いることにより、デブリの発生を少なくする必要がある。この他、レーザーの照射条件等の最適化を行うことにより、デブリの抑制が可能と考える。

## 3. まとめ

将来の高出力 EUV 光源の構成としては、Sn ドロップレットターゲットと高出力 CO<sub>2</sub> レーザーの

組み合わせが実用的と考える。集光ミラーの保護は、磁場を用いた高速イオンの制御と質量制限ターゲットによるデブリの抑制が有効と考える。これらを実用的な光源装置として実現するためには、解決すべき技術課題がある。今後とも産学ならびに関連する研究所との連携により、基礎的な現象の理解を深めながら研究開発を進めることが必要と考える。

#### 参考文献

- [1] 木下博雄, レーザー研究, 第 27 巻, 第 1 号(1999)
- [2] 岡崎信次, 応用物理, 第 69 巻, 第 2 号 (2000)
- [3] K. Ota : EUV Source Requirements, Presentation of EUV Source Workshop. Miyazaki, November, 2004.
- [4] 中野真生 他、第 53 回応用物理学関係連合講演会 25a-ZQ-9
- [5] 有我達也 他、第 53 回応用物理学関係連合講演会 25a-ZQ-1
- [6] 平成 17 年度 極端紫外線(EUV)露光技術研究成果報告会





## 5.16 高輝度フェムト秒レーザー照射による新規材料創生

### New material creation by high-intense fs-pulse laser irradiation

神谷信雄、東 博純、伊藤 忠  
(株)豊田中央研究所

大道博行、西村昭彦、匂坂明人、森道昭、小倉浩一、織茂聡、島田幸洋、村上洋  
日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 光量子ビーム利用研究ユニット

Nobuo Kamiya, Hirozumi Azuma, Tadashi Ito  
TOYOTA Central R&D Labs. Inc.

Hiroyuki Daido, Akihiko Nishimura, Akito Sagisaka, Michiaki Mori, Koichi Ogura,  
Satoshi Orimo, Yukihiro Shimada, Hiroshi Murakami  
Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,  
Japan Atomic Energy Agency

Surface modification of Silicon Carbide(SiC) by femtosecond laser pulse irradiation was investigated. The trace of melting were observed on the surface of SiC after one-pulse irradiation although SiC have no melting point. Furthermore, silicon/carbon ratio of the irradiated surface depended strongly on the pulse duration of femtosecond laser. The ratio of the surface irradiated with 70 femtosecond laser was nearly equal to that before irradiation although that irradiated with 150 femtosecond laser decreased remarkably.

Keywords: Femtosecond laser, Surface modification, Silicon Carbide, Silicon/Carbon ratio, Pulse duration

#### 1. はじめに

フェムト秒レーザーによる各種材料のアブレーション加工は、熱影響の少ない精密加工〔1〕およびナノ周期構造形成〔2、3〕が可能であり、各種応用が検討されている。また、最近、おたまじゃくし状の特異な形状を持った Si ナノ粒子の生成〔4〕、ダイヤモンド様炭素膜(DLC 膜)の形成〔5〕および DLC 膜の表面改質〔6〕など新規な利用についても報告されている。

中でも高輝度フェムト秒レーザーを用いた材料の表面改質は高エネルギーを極めて短時間だけ注入できることおよび熱影響を低減できることから、特異な組織あるいは構造を材料表面に形成できる可能性が高く、新規な特性の発現が期待されている。今回、ワイドギャップ半導体である SiC に高輝度フェムト秒レーザーを照射することによる新規な表面改質

の検討を試みた。

## 2. 実験

本実験では2種類のフェムト秒レーザーを使用した。それらの種類および代表的照射条件を表1に示す。

表1 レーザーの種類と代表的照射条件

種類	レーザー	波長	パルス幅	照射径	照射強度
		nm		$\mu\text{m}$	$\text{W}/\text{cm}^2$
70fs	Ti-サファイア	800	70fs	$\phi 50$	$10^{16}$
150fs	Ti-サファイア	800	150fs	$\phi 40$	$9.0 \times 10^{14}$

照射実験の装置概略を図

1に示す。レーザーは真空槽内に設置した off-axis パラボラミラーにより集光してターゲット表面上に照射した。この際、ターゲットは水平方向に  $0.25 \text{ mm/s}$  の速度で移動させて、1パルス毎の照射痕を形成させた。照射時の真空度は  $2.6 \times 10^{-4} \text{ Pa}$  とした。

ターゲットは CVD 法で製作した多結晶 SiC（三井造船製）であり、形状は  $30 \times 30 \times 0.5 \text{ mm}$  とした。SiC の結晶多形は 3C であり、結晶は  $30 \times 30$  の面が (001) 面に対応した。

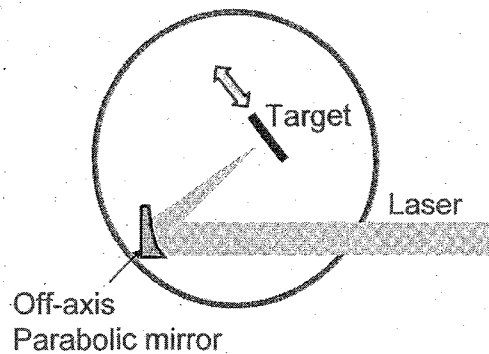
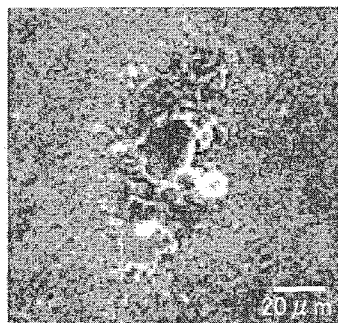


図1 レーザー照射装置概略

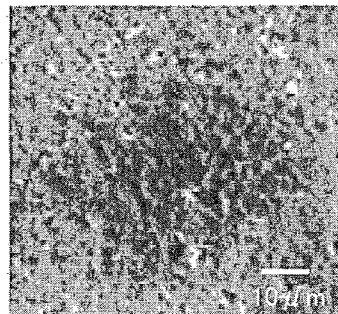
照射痕は SEM（Scanning Electron Microscopy）による観察と AES（Auger Electron Spectroscopy）による元素分析を行った。

## 3. 結果

フェムト秒レーザー照射後の SiC 表面の SEM 像を図2に示す。150fs レーザーによる照射では、照射部は表面が一度熔融後固化した様であり、また、中央部から外側に向かって液状物質が飛散した様相を呈している。この痕跡は、レーザー照射により表面の一部が熔融したと同時にレーザーの高い圧力により溶融物が外周に飛散したことに拠ると推定され



70fs



150fs

図2 レーザー照射後 SiC 表面の SEM 像

る。同様に、70fs レーザー照射面においても一部に液状物質の飛散が観察され、表面も熔融したようであるが、150fs レーザーの照射痕とは若干異なっていた。

SiC は本来融点を持っておらず、高温では Si が昇華して分解する物質である。ただし、SiC 表面は通常自然酸化により  $\text{SiO}_2$  が形成されている。この表層の  $\text{SiO}_2$  がレーザー照射により発生した熱によって熔融した可能性もある。あるいは、レーザーにより SiC の結合が切断され、一部の Si が熔融して上記現象に至った可能性もある。ただし、写真に見られる外側への飛散状態は熔融物の粘度がかなり低くないと生ずる現象ではなく、更なる検討が必要である。

fs レーザー照射痕の AES による Si、C、O の元素分析値と Si/C 比を表 2 に示す。同表には比較のために、レーザー照射前の SiC 表面の分析値と Si/C 比も示した。レーザー照射

表2 レーザー照射後SiC表面のAESによる元素分析値

レーザー	元素/at%			Si/C
	Si	C	O	
照射前	60	31	7	1.94
70fs	58	29	13	2.00
150fs	20	68	12	0.29

前の SiC 表面の Si/C 比は 1.94 であり、また、前述したように自然酸化による 7 at% の O が検出された。SiC は Si と C が 1 対 1 で形成される物質であり、本来 Si/C 比は 1 であるはずであるが、AES の測定上の理由により元素比の 1 にはならず表 1 に示した 1.94 になり、この数値を元に Si/C 比の変化を議論しなければならない。

70fs レーザーの照射痕の Si /C は 2.00 であり、照射前の 1.94 とほぼおなじであった。それに対し、150fs レーザーのそれは 0.29 であり、著しく低下した。また、両者の酸素は若干増加した。

150fs レーザ照射部の Si/C 比が照射前に比べて大きく低下した原因は、レーザー照射により照射部の温度が上昇し、この段階において蒸気圧の高い SiC 中の Si が昇華したことによると推定される。一方、50fs レーザーでは、Si/C 比が殆ど変化しなかったが、これはレーザー照射による温度上昇の時間が極めて短く、Si の昇華がほとんど起こらなかったと推定される。図 2 に示した、150fs レーザーの照射痕の熔融状態は 50fs のそれに比べて強く、150fs の表面温度が 50fs レーザーのそれに比べて高かった可能性が高かったと推定される。この温度の差は、50fs レーザーの照射強度は 150fs レーザーよりも高いことから、レーザーのパルス幅に強く依存したと考えられるが、より系統的な解析が必要である。

#### 4. まとめ

- ① 70fs および 150fs レーザーを各々照射強度  $10^{16}$  と  $10^{14}\text{W/cm}^2$  で SiC に照射することにより、融点を持たない SiC の表面が熔融後固化した様子が見られた。
- ② レーザー照射後の SiC 表面の Si/C 比はパルス幅に強く依存した。70fs レーザー照射面の Si/C 比は照射前とほぼ同じであったが、150fs では著しく減少した。

参考文献

- [1] A. Nishimura, E.Minehara, T. Sukada, M.Kikuchi, J.Nakano., 5th International Conference of Laser Precision Micro-fabrication (LPM2004), Proceedings of SPIE(2004)
- [2] 橋田昌樹、藤田雅之、節原裕一、光学 31,621(2002)
- [3] J.Reif, F.Costache, M.Henyk and S.V.Pandelov: Appl. Surf. Sci.197-198,891(2002)
- [4] H.Azuma, H.Daido, et. al. Jpn. J. Appl. Phys. 43, L1172 (2004)
- [5] F.Qian, R.K.Singh, S.K.Dutta and P.P.Pronko, Appl. Phys. Lett. 67,3120(1995)
- [6] N. Yasumaru, T. Shimizu and J. Kiuchi, Appl. Phys.A, 79,425(2004)

6. 第7回光量子科学研究シンポジウム ポスター発表一般

JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research

- Poster Presentations

**This is a blank page.**



## 6.1 Design of a high efficiency grazing incidence monochromator with multilayer coated laminar gratings for the 1-8 keV region

Masato Koike,<sup>a</sup> Masahiko Ishino,<sup>a</sup> Hiroyuki Sasai<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Quantum Beam Science and Technology Directorate, Japan Atomic Energy Agency

<sup>b</sup> Consumer and Optical Products Department, Shimadzu Corporation

A grazing incidence objective monochromator consisting of a spherical mirror, a varied spacing plane grating with multilayer coating, a movable plane multilayered mirror, and a fixed exit slit for the 1 – 8 keV region has been designed. The included angle at the grating was chosen to satisfy the grating equation and extended Bragg condition simultaneously. The aberration was corrected by means of a hybrid design method. A spectral resolving power of ~2000 - ~6000 and a throughput of ~3% - ~25% is expected for the monochromator when used in an undulator beamline.

Keywords: Grating; Spectrograph; soft X-ray

### 1. Introduction

Progress in grating and crystal monochromators<sup>1-5</sup> has extended their energy regions and a portion of the energy region of 1 - 8 keV has been accessible to both gratings and crystals. However, the entire energy region has not been easily accessed by either type of optic. Multilayer coatings on the gratings would improve their diffraction efficiencies in this region. However little work has been done in the development of practical grating monochromators employing multilayer gratings because of the difficulties to match the diffraction conditions of the grating and multilayer as well as the focusing condition without mechanical complexity. Years ago we proposed a high resolution grazing incidence monochromator consisting of a spherical mirror, a varied line spacing plane grating, and a movable plane mirror.<sup>5</sup> In this paper, we describe details of the design of a monochromator which employs a multilayer varied-line-spacing grating and a multilayer movable plane mirror covering the energy region of 1-8 keV.<sup>6</sup> Also a description is given for the expected performance of the monochromator from the viewpoints of diffraction efficiency and resolving power in the region.

### 2. Design

Figure 1 is the schematic of a grazing incidence objective (entrance slit-less) monochromator optics: S, source; M<sub>1</sub>, fixed spherical mirror (incidence angle  $\theta$ ); G, varied spacing plane grating (incidence angle  $\alpha$ , deviation angle  $2K$ ); M<sub>2</sub>, movable plane mirror (incidence angle  $\phi$ ); and E, fixed exit slit. The ray S-M<sub>1</sub>-G-M<sub>2</sub>-E lies in the vertical plane and represents the principal ray of wavelength  $\lambda$  that passes through the centers of the respective optics. Wavelength scanning is carried out by combining simultaneous rotation and translation of M<sub>2</sub> with simple rotation of G, while keeping the exiting beam direction unchanged. The

principal role of G and M<sub>2</sub> here is to provide design flexibilities accommodating a multilayered grating and higher-order suppression by properly varying  $\alpha$ ,  $2K$ , and  $\phi$  with scanning. For the convenience of design, we define a reference scanning point C for M<sub>2</sub>: C is taken on the straight line M<sub>2</sub>E and specified by the distance G-to-C

$\equiv D'_0$  and the angle  $\angle M_1GC \equiv 2K_0$  or  $\angle GCEX \equiv 2\phi_0$ . The positions of G and M<sub>2</sub> at  $\lambda$  are drawn in Fig. 1 by solid lines and those at C by dotted lines.

The design parameters to be determined are the scanning parameters ( $\alpha$ ,  $K$ ,  $\phi$ , distances G-to-M<sub>2</sub> $\equiv D'$  and M<sub>2</sub>-to-E $\equiv r'$ ), and the groove parameters to define the groove number,  $n$ , by a power series of coordinate ( $0, w, l$ ) on the grating:

$$n = \frac{1}{\sigma} \left( w + \frac{1}{2} n_{20} w^2 + \frac{1}{2} n_{30} w^3 + \frac{1}{8} n_{40} w^4 + \dots \right), \quad (1)$$

where  $\sigma$  is the effective grating constant. In order to keep the exiting beam direction fixed during the scan, the scanning parameters ( $D'$ ,  $r'$ ,  $\alpha$ ,  $K$ ,  $\phi$ ) at  $\lambda$  and ( $D'_0$ ,  $r'_0$ ,  $\alpha_0$ ,  $K_0$ ,  $\phi_0$ ) at  $\lambda_0$  at the reference scanning point C must satisfy

$$\begin{aligned} D' &= D'_0 \sin 2\phi_0 / \sin 2\phi, \quad \phi - K = \text{const.}, \\ \Delta r' &\equiv r' - r'_0 = D'_0 \sin 2(\phi_0 - \phi) / \sin 2\phi. \end{aligned} \quad (2)$$

When the grating is illuminated at an incident angle,  $\alpha$ , and the diffracted ray of wavelength  $\lambda$  is observed at an angle,  $\beta$ , the grating equation and the generalized Bragg condition based on kinematic theory are, respectively, expressed as <sup>8,9</sup>:

$$m_G \lambda = \sigma (\sin \alpha + \sin \beta), \quad (3)$$

and

$$m_M \lambda = d (R_\alpha \cos \alpha + R_\beta \cos \beta), \quad (4)$$

where

$$R_\eta = \sqrt{1 - (2\delta - \delta^2) / \cos^2 \eta}, \quad \eta = \alpha, \beta, \quad (5)$$

$\sigma$ ,  $d$ ,  $m_G$ ,  $m_C$ , and  $\delta$  are the grating constant, and the multilayer period, the spectral order of the grating, the order of generalized Bragg reflection, and the composite average of the real deviation of the index of reflection from unity over the multilayer structure.

Controlling the depth of the grooves laminar gratings may suppress the zeroth order light and enhance the two first or other orders lights intensity matching the phases of the radiations from the lands and grooves constructively. This condition is denoted by

$$m_H \lambda / 2 = h (\cos \alpha + \cos \beta), \quad (6)$$

where  $h$  is the groove depth and  $m_H$  is the order that should be odd number,<sup>10</sup> In the monochromator design, we employ a hybrid design method given in Ref. 5. The method incorporates ray tracing into an

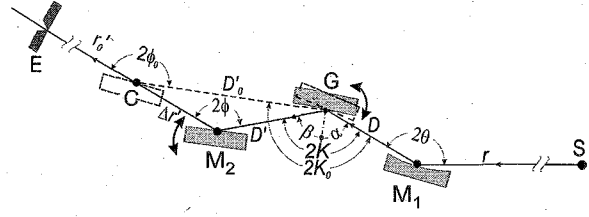


Fig.1. Schematic diagram of an objective monochromator.



analytic merit function closely represents the variance of the spots formed when an infinite number of rays of a design wavelength are traced through the optical system concerned.<sup>11</sup>

### 3. Results

The monochromator design was made with the following parameter values. Scanning range:  $\lambda_{\min} = 0.2$  nm (6.20keV),  $\lambda_{\max} = 1.2$  nm (1.03keV).  $M_1$ :  $r = 18$  m,  $\theta = 89.5^\circ$ ,  $R = 488$  m, dimensions = 200 (W)  $\times$  40 (H) mm<sup>2</sup>.  $G$ :  $D = 389$  mm,  $K_0 = 89^\circ$ ,  $1/\sigma = 1200$  grooves/mm, dimensions = 160 (W)  $\times$  40 (H) mm<sup>2</sup>,  $m_G = m_M = m_H = +1$ , duty ratio (= land width / grating period) = 0.4.  $M_2$ :  $D'_0 = 940$  mm at  $\lambda_0 = 0.2$  nm,  $\phi = K$ , design wavelengths:  $\lambda_i = 0.2, 0.4, 0.8, 1.2$  nm.

For example, we considered the following cases. Case I is the case in which all the elements,  $M_1$ ,  $G$ , and  $M_2$  were Au-coated. In this case the value of  $K$  for respective design wavelength as well as the varied line spacing parameters and  $r_0'$  were optimized solely to minimize the aberrations. In Case II it was assumed that  $M_1$  was Au coated, and  $G$  and  $M_2$  were a multilayer laminar grating and mirror, respectively, having exactly the same multilayer structure. We assumed a conventional material pair of W (Bottom layer) and C (Top layer) for the multilayer. The designed parameters are as follows: the multilayer period,  $d$ , = 6.66 nm; the ratio of bottom layer thickness vs. multilayer period = 0.4; the total number of multilayer periods = 50; the groove depth was 3nm both for Cases I and II. Other geometrical parameters of the three cases are as follows:

Case I:  $n_{20} = -1.0050 \times 10^{-3} \text{ mm}^{-1}$ ,  $n_{30} = 6.1695 \times 10^{-7} \text{ mm}^{-2}$ ,  $n_{40} = -2.2638 \times 10^{-9} \text{ mm}^{-3}$ ,  $r_0' = 1053.026$  mm,

Case II:  $n_{20} = -1.0287 \times 10^{-3} \text{ mm}^{-1}$ ,  $n_{30} = 8.7199 \times 10^{-6} \text{ mm}^{-2}$ ,  $n_{40} = 2.1996 \times 10^{-8} \text{ mm}^{-3}$ ,  $r_0' = 1082.630$  mm,

Figure 2 shows the calculated throughput of the monochromator for s-polarization light defined by  $E_1(\lambda) \times E_G(\lambda) \times E_2(\lambda)$  for the each case, where  $E_G(\lambda)$  is the diffraction efficiency of the grating and  $E_1(\lambda)$ , and  $E_2(\lambda)$  are the reflectivities of  $M_1$  and  $M_2$  mirrors, respectively. To assess the performance of the fabricated grating the theoretical diffraction efficiency was calculated by use of a simulation code<sup>12</sup> based on a differential method. We imported the optical constants published by Henke *et al.*<sup>13</sup> to this code.

The open circles and open squares show the throughput for Cases I and II, respectively. The thickness of the Au coating was chosen to be 100nm. The throughput of Case II exceeds 5% almost the whole energy region in contrast to Case I dropping the throughput significantly below 1% in the region of  $> 2$  keV.

Figure 3 shows the estimated resolving power of the designed systems calculated under the same illumination condition described in Ref. 5. Case I gave a high resolving power  $\sim 10^4$  because no constraint was imposed the deviation angle and its freedom was spent to minimize the aberrations. The resolving power of Case II is 2000–6000 in the energy region of 1–8 keV.

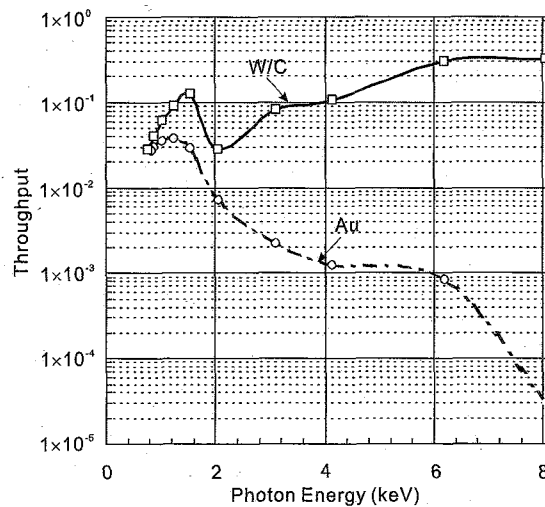


Fig 2. Calculated throughput of the monochromators.

The reason of this deterioration is to be attributed to the constraint that the included angle  $K = (\alpha - \beta) / 2$  for respective wavelength must be the solution that satisfies Eqs. (1) and (2) simultaneously. To circumvent lower resolving power in the low photon energy region we designed another grating, denoted as Case III, keeping same multilayer structure with the grating of Case II and enhance the resolving power in this region. The designed parameters are as follows:

Case III:  $n_{20} = -9.8547 \times 10^{-4} \text{ mm}^{-1}$ ,  $n_{30} = 2.8167 \times 10^{-6} \text{ mm}^{-2}$ ,  $n_{40} = 1.1845 \times 10^{-8} \text{ mm}^{-3}$ ,  $r'_0 = 1082.521 \text{ mm}$ .

The resolving power of Case III is also shown as open triangles in Fig. 3.

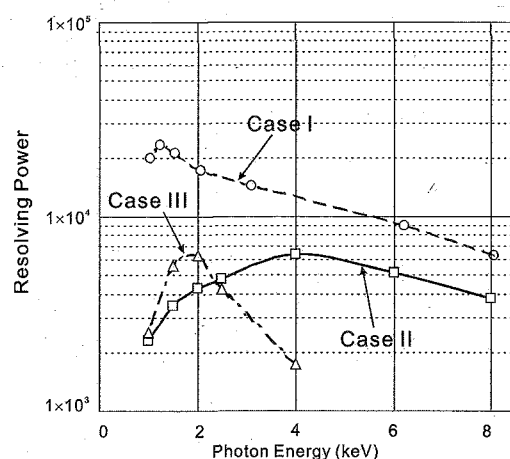


Fig. 3. Calculated resolving power of the monochromators.

From the investigation described above we can conclude that the multilayer grating monochromator would provide significant higher throughput with a moderate resolving power. To improve its resolving power one can employ the multiple varied spacing gratings having different groove parameters and multilayer structures optimized for the narrow wavelength regions.

## References

- [1] H. Petersen, *Opt. Commun.* **40**, 402 (1982).
- [2] J. Wong, G. N. George, I. J. Pickering, Z. U. Rek, M. Bowen, T. Tanaka, G. H. Via, B. Vries, D. E. W. Vaughan and G. E. Brown, Jr., *Solid State Commun.* **92**, 559 (1994).
- [3] M. Koike and T. Namioka, *J. Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **80**, 303 (1996).
- [4] M. Koike, K. Sano, Y. Harada, O. Yoda, M. Ishino, K. Tamura, K. Yamashita, N. Moriya, H. Sasai, M. Jinno and T. Namioka, *Proc. SPIE* **4782**, 300 (2002).
- [5] M. Koike and T. Namioka, *Rev. Sci. Instr.* **66**, 2144 (1995).
- [6] V. V. Martynov and Yu. Platonov, *Rev. Sci. Instr.* **73**, 1551 (2002).
- [7] E. Ishiguro, T. Kawashima, K. Yamashita, H. Kunieda, T. Yamazaki, K. Sato, M. Koeda, T. Nagano and K. Sano, *Rev. Sci. Instr.* **66**, 2112 (1995).
- [8] W. K. Warburton, *Nucl. Instr. Meth. A* **291**, 278 (1990).
- [9] H. Berrouane, J.-H. Andre, R. Barchewitz, T. Moreno, A. Sammar, C. Khan Malek, B. Pardo, and R. Rivoira, *Nucl. Instr. Meth. A* **312**, 521 (1992).
- [10] K. -H. Hellwege, *Z. Phys.* **106**, 588 (1937).
- [11] M. Koike and T. Namioka, *Appl. Opt.* **33**, 2048 (1994).
- [12] GSOLVER V4.2b, Grating Solver Development Co., Allen, Texas.
- [13] B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, *At. Data Nucl. Data Tables* **54**, 181 (1993).



## 6 ガス中 PLD 法によるシリコンカーバイド薄膜の生成過程に関する研究

### Study on formation mechanism of silicon carbide films by PLD in reactive gas

佐伯盛久、大場弘則、山本博之、横山 淳

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門光量子ビーム利用研究ユニット

Morihisa SAEKI, Hironori Ohba, Hiroyuki Yamamoto, and Atsushi Yokoyama

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

To study formation process of compound film in pulsed laser deposition (PLD) in reactive gas, the amorphous and hydrogenated silicon carbide,  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{H}$ , film was prepared by carrying out laser ablation of silicon in acetylene gas. The reaction products in PLD was deposited on the large-area substrate in off-axis geometry and investigated their spatial distribution of chemical composition, structure and thickness by photographic image, XPS and IR reflectance measurement. The photographic image of the prepared film showed the red and brown striped fringes. This result indicates the film thickness gradually decreases with being apart from the center of the fringes. The XPS measurement showed no dependence of the chemical composition, structure on the deposited position, while the IR reflectance measurement elucidated the dependence of film thickness on the deposited position. To explain these results, new formation mechanism of the film in PLD in reactive gas is proposed. The film thickness simulated based on the mechanism reproduces the observed dependence very well.

**Keywords:** pulsed laser deposition in reactive gas, amorphous and hydrogenated silicon carbide, photographic image, XPS, IR reflectance measurement

#### 1. 序

Pulsed laser deposition (PLD) 法とは固体材料をレーザー蒸発により気化し、蒸発物を基板に蒸着させて薄膜を形成する技術であるが、PLD を気体中で行うことにより、蒸発物と気体とを反応させて化合物薄膜を形成することができる。これを反応性 PLD 法と呼ぶ。例えば、アセチレンガス中においてシリコンをレーザー蒸発することにより、水素を含むアモルファスシリコンカーバイド ( $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{H}$ ) 薄膜が形成されることが知られている[1]。化合物薄膜の性質は組成比および膜厚、構造によって特徴づけられており、薄膜形成技術においてこれらの条件を制御することは重要である。特に、反応性 PLD 法では気体試料濃度を変えると生成する化合物の組成比が変化することが知られており、組成比を制御した化合物薄膜を形成するのに適した手法であると考えられる。しかし、反応性 PLD 法における化合物薄膜形成過程については不明な点が多く、能動的に化合物薄膜の組成比や膜厚、構造を制御することはまだできていない。本研究ではアセチレンガス中でシリコンのレーザー蒸発を行い、形成された  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{H}$  薄膜の組成比や膜厚、構造の空間分布を調べることで反応性 PLD 法における化合物薄膜形成過程について知見を得たのでこ

ここに報告する。

## 2. 実験方法

回転台上に単結晶シリコンディスクを置き、反応容器内を排気しながらアセチレンガスを導入し、容器内のガス圧が 80 mTorr で一定になるようにガスの流量を調節する。次に、YAG レーザー基本波 (1064 nm) をシリコンディスク上に集光し、レーザー蒸発させてアセチレンと反応させる。Fig. 1a に示すように、シリコン試料表面に対して垂直な位置にステンレス基板を配置し、その上に反応生成物を吸着させて  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜を形成した。そして、形成した  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜を反応容器から取り出し、その組成比や膜厚、構造を X 線光電子分光 (XPS) 装置および反射型フーリエ変換赤外分光 (FT-IR) 装置で解析した。

## 3. 結果

Fig. 1b に、30000 shot のレーザー照射により、40 mm×40 mm のステンレス基板上に形成した  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の画像を示す。画像にはシリコン試料表面から約 12 mm 離れた位置を中心とした、環状の干渉縞が見えている。この干渉縞はニュートン環と同じ原理により現れたと考えられ、干渉縞の中心から外側に広がるにつれ膜厚が減少していることを示している。真空中で PLD を行った場合、蒸発物は試料表面に垂直な方向へのみ並進速度をもつ高速分子線 ( $\sim 100$  km/s) となって蒸発することが知られている。予想される蒸発物の飛跡を Fig. 1b に白線で示す。我々はこの線に沿って試料表面から 5, 15, 25 mm 離れた点を選び、それらの位置における  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の組成比を XPS により分析した。その結果、どの位置においても Si と C の組成比は一定であり、 $\text{Si} : \text{C} = 1 : 9$  であることがわかった。

さらに、形成した  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の膜厚や構造を調べるために、FT-IR を用いて試料表面から 5, 10, 15, 20, 25, 30 mm 離れた点で赤外反射スペクトルを測定した。Fig. 2 に  $700\text{--}4000\text{cm}^{-1}$  の波数領域で測定した結果を示す。どのスペクトルでも一定の波数間隔で反射強度が極大・極小になる周期構造が現れており、その上に C-Si ( $@800\text{ cm}^{-1}$ ) および C-H ( $@2900\text{ cm}^{-1}$ ) 伸縮振動に帰属できる振動バンドが観測された。周期構造は薄膜表面での反射光と基板表面での反射光との干渉に由来するものと考えられ、それがこの領域で観測されたということは、 $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の膜厚が  $\mu\text{m}$  オーダーになっていることを意味している。周期構造における隣りあ

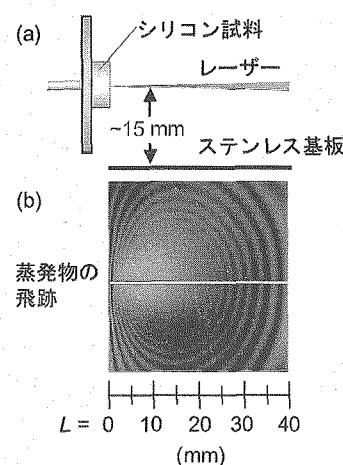


Fig. (1a) Position of substrate  
(1b) Photographic Image of prepared  $a\text{-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  film

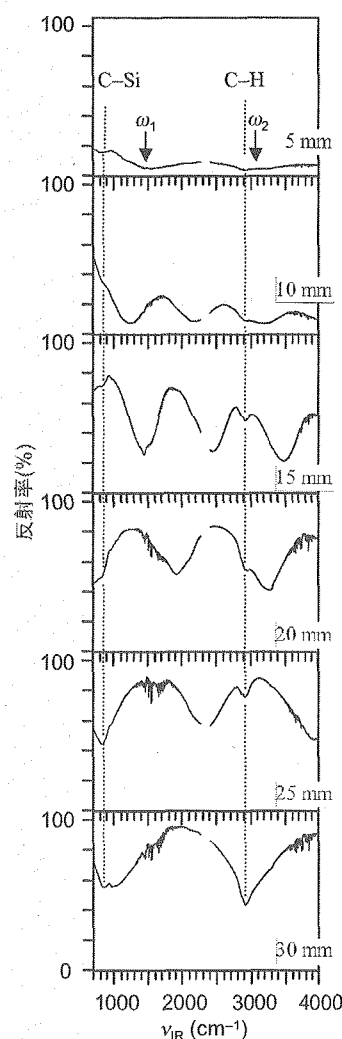


Fig. 2 The IR reflectance spectra in various positions

う極大値での波数を  $w_1, w_2 \text{ cm}^{-1}$  とすると、膜厚  $t$  は

$$t = \frac{1}{2} \cdot \frac{10^7}{n(w_1)\omega_1 - n(w_2)\omega_2} \quad (1)$$

と表せる。ここで、 $n(w_1)$  および  $n(w_2)$  はそれぞれ  $w_1, w_2$  における  $\text{a-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の屈折率である。式(1)を用いて膜厚を見積るためには  $\text{a-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の屈折率を必要とするが、それに関する情報はない。そこで、シリコンの  $1000 \text{ cm}^{-1}$  付近における屈折率 3.4 を用いて、 $n(w_1) = n(w_2) = 3.4$  と近似することにより、式(1)を

$$t = \frac{1}{6.8} \cdot \frac{10^7}{\omega_1 - \omega_2} \quad (2)$$

と書き換えて膜厚を見積った。試料表面からの距離  $L$  に対する膜厚  $t$  を Fig. 3 に示す。この図より、形成した  $\text{a-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の膜厚は  $0.7\text{--}1.6 \mu\text{m}$  の間に分布しており、 $L=10 \text{ mm}$  のところで最大になることがわかった。

#### 4. 考察

反応性 PLD 法による化合物薄膜形成過程は気相および基板表面過程に分類することができる。気相では、レーザー蒸発により生成したシリコンイオン・中性原子がアセチレン分子と衝突し、アセチレン分子を分解したり、場合によってはアセチレン分子と結合し化合物を形成する。そして、この結果生じるアセチレンの分解・反応生成物は未反応のシリコンイオン・中性原子とともにステンレス基板上に堆積する。堆積物は移動しながら互いに結合し、準安定状態のアモルファス構造の膜を形成する。

今回の実験は室温下で行われているので、堆積物の移動範囲は狭く、化合物の組成比や膜厚は気相過程により決まっていると考えられる。XPS および赤外反射スペクトルの結果は、組成比は場所に依らず均一であるが、膜厚はシリコン試料からの距離に依存して変化することを示している。これらの結果を説明するために、我々は Fig. 4 に示すような気相過程を考えた。まず、レーザー蒸発により高速のシリコンイオン・中性原子が試料表面から垂直な方向に放出されるが、アセチレン分子との多数回の衝突・反応により、徐々に速度を失っていく（過程 a）。次に、反応生成物を含むシリコンイオン・中性原子の速度は室温の気体速度と同程度になり、試料表面からある程度離れた点に局在化する（過程 b）。この時点においてシリコンイオン・中性原子の動きは異方性を失い、局在化した点を中心として等方的に広がるようになる（過程 c）。このようにして、等方的に広がっていくものの一部がステンレス基板上に堆積し、薄膜を形成する。このモデルに基づくと、生成する  $\text{a-Si}_{(1-x)}\text{C}_x\text{:H}$  薄膜の組成比は過程 b までに決まるので、基板上の

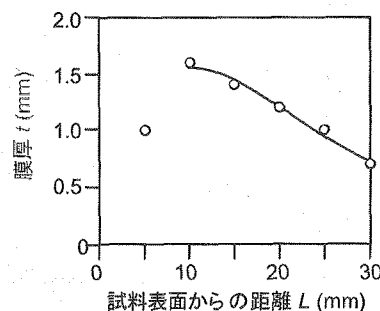


Fig. 3 The distribution of thickness of the film

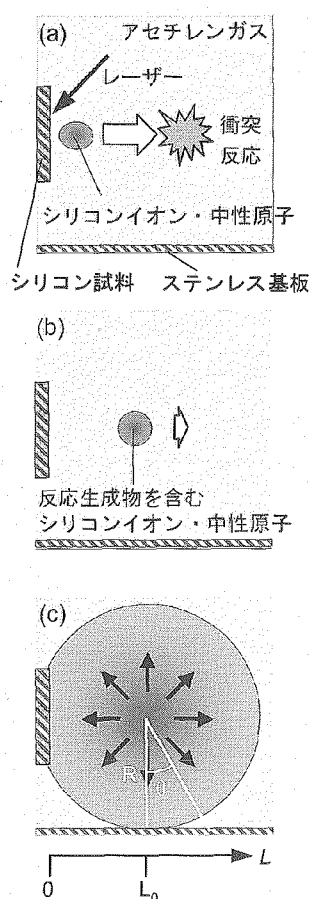


Fig. 4 The formation process of film in PLD in the reactive gas

位置に依らず一定であることが説明できる。また、膜厚は過程 c により決まり、基板上での堆積物の分布は

$$t(L) = \frac{N}{2\pi} \cdot \frac{1}{(L-L_0)^2 + R^2} \cdot (3)$$

と表すことができる。ここで  $N$  は反応生成物を含むシリコンイオン・中性原子の量、 $R$  は局在点からステンレス基板までの距離、 $L_0$  は局在点の真下における基板の位置を示す。 $L_0=10.0$  mm とし、式(3)を用いて試料表面からの距離  $L$  における膜厚  $t$  を計算すると、図 3 に示すように実験結果をよく再現することができた。この時、 $R=18.7$  mm と求められ、レーザーの集光位置と基板との間隔にほぼ一致している (Fig. 1a)。以上、図 4 に示した我々のモデルは実験を良く説明してると言える。

### 参考文献

- [1] J. M. Lackner *et al.* Surf. Coat. Technol. **177–178**, 360 (2004).



### 6.3 振動励起を用いた選択的化学結合切断

#### Bond-selective Photodissociation Caused by Vibrational Excitation

赤木 浩、横山 啓一、横山 淳

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 光量子ビーム利用研究ユニット

深澤 裕

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 中性子物質科学研究ユニット

Hiroshi AKAGI, Keiichi YOKOYAMA, and Atsushi YOKOYAMA

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Hiroshi FUKAZAWA

Neutron Materials Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Ultraviolet photodissociations of partially deuterated water (HOD) and ammonia (NHD<sub>2</sub>/NH<sub>2</sub>D) molecules excited to the vibrationally excited states have been investigated by using a crossed laser and molecular beams method. Branching ratio between the H- and D-atom ejection channels has been determined by utilizing a (2+1) resonance enhanced multiphoton ionization scheme of H and D atoms. For 243 nm photolysis of HOD in the 5<sub>ν<sub>OD</sub></sub> state, the OD bond dissociation has been solely observed with the branching ratio „ (D+OH)/ „ (H+OD) >12, which has been determined by the detection limit for the H atom. For the photolysis of NHD<sub>2</sub>/NH<sub>2</sub>D in the vibrationally excited states, the branching ratio between the NH and ND dissociation channels has been largely altered by the vibrational state selection.

**Keywords:** Bond-selective photodissociation, Vibrationally excited states, Partially deuterated species, Water, Ammonia

#### 1. はじめに

1990 年、Crim らのグループにより、部分重水素置換した水分子 HOD の OH 伸縮振動励起状態からの紫外光分解で OH 結合が選択的に切断されることが報告された[1]。それ以降、振動励起状態からの紫外光分解を用いて化学結合を選択的に切断しようとする試みが盛んに行われている。HOD では、OH 伸縮振動状態(4<sub>ν<sub>OH</sub></sub>および5<sub>ν<sub>OH</sub></sub>)からの紫外光分解で、OH 結合のみをほぼ 100 %の高確率で切断できることが報告されている[1,2]。一方、OD 伸縮振動状態(3<sub>ν<sub>OD</sub></sub>)からの紫外光分解では、OD 結合が OH 結合よりも 2~3 倍程度多く切断されることが報告されている[3]が、OD 結合のみを選択的に切断することは出来ていない。

本研究では、HOD の OD 結合をより高い確率で切断することを目的として、過去の実験よりも高い OD

伸縮振動状態( $5\nu_{OD}$ )からの紫外光分解の実験を行った[4]。さらに、この手法の一般的な系に対する適応可能性を検討するために、HOD よりも複雑で、選択的切断に不利なポテンシャル曲面を持つ、部分重水素置換したアンモニア分子( $NH_2D/NHD_2$ )の NH および ND 伸縮振動状態からの紫外光分解の実験を行った[5]。

## 2. 実験方法

対象分子を含む試料を、真空装置内にパルスバルブを用いて導入した。可視または近赤外レーザー光を照射することで対象分子を振動励起した後、243 nm の紫外レーザー光を照射することで光分解した。分解生成した H および D 原子は、243 nm の紫外レーザー光をさらに 3 光子吸収し、共鳴(2+1)光子イオン化する。その生成イオンを、飛行時間型質量分析装置で質量選別してから MCP で検出することにより、結合切断の分岐比を決定した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 HOD( $5\nu_{OD}$ )の紫外光分解

HOD( $5\nu_{OD}$ )の 243 nm 紫外光分解の結果を Fig. 1 に示す。D 原子の生成は確認されたが、H 原子は検出されなかった。バックグラウンドノイズの強度を考慮して、OD/OH 結合切断比を  $>12$  と決定した。この結果は、 $5\nu_{OD}$  振動状態からの紫外光分解によって、OD 結合を 9 割以上の高い確率で切断できることを示している。

この高い結合選択性は、励起エネルギーが HOD の電子励起  $\tilde{A}$  状態ポテンシャル曲面上の鞍点よりも低いことに起因する。 $\tilde{A}$  状態は、OH または OD 結合が伸びるにつれて単調にポテンシャルエネルギーが減少する、いわゆる直接解離性のポテンシャル曲面を有する。すなわち、2 つの解離チャンネルの間には鞍点が存在するため、OD 解離チャンネル内は OD 結合のみが解離する領域となる。さらに、 $\tilde{A}$  状態と基底  $\tilde{X}$  状態では、HOD 角度がほぼ同じであるため、変角振動は OD 解離にほとんど影響を与えない。今回の実験条件では、OD 伸縮振動が十分に励起した状態から  $\tilde{A}$  状態ポテンシャル曲面上の鞍点よりも低い励起エネルギーで電子励起することになっており、Fig. 2 に示される通り、OD 解離のみが進行できる領域に電子遷移が起きる。その結果、OD 結合切断の高い選択性が発現していると結論できる。

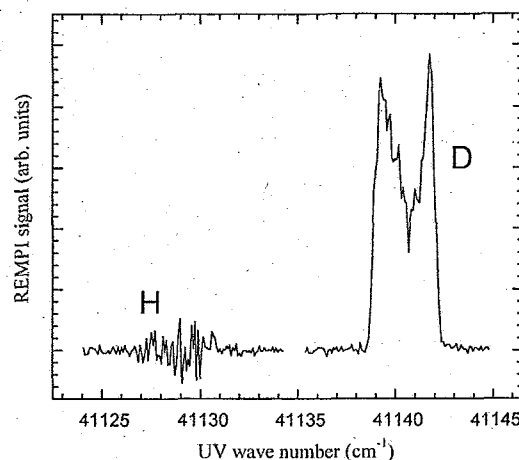


Fig. 1. (2+1) REMPI signals of H and D atoms generated by UV photolysis of HOD ( $5\nu_{OD}$ ) at 243 nm.

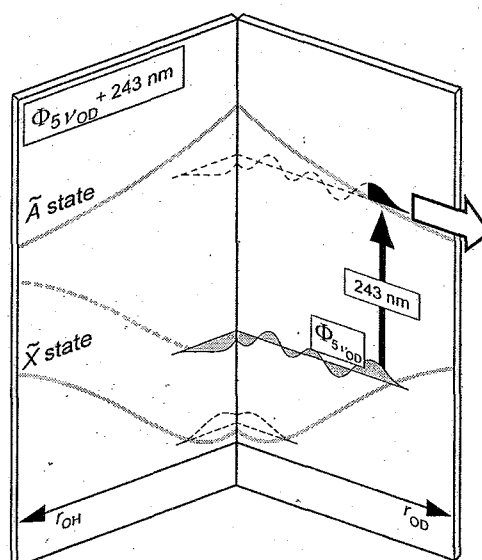


Fig. 2. Schematic diagram of 243 nm photolysis of HOD ( $5\nu_{OD}$ ). Complete selective OD dissociation is expected since the  $\tilde{A}$  state is energetically accessible only at the large OD distance.



### 3. 2 $\text{NHD}_2(5\nu_{\text{NH}})$ および $\text{NH}_2\text{D}(5\nu_{\text{ND}})$ の紫外光分解

$\text{NHD}_2(5\nu_{\text{NH}})$ および $\text{NH}_2\text{D}(5\nu_{\text{ND}})$ の 243 nm 紫外光分解の結果を Fig. 3 に示す。 $\text{NHD}_2$ の NH 伸縮振動状態からの紫外光分解では、H 原子の方が D 原子より 2~3 倍程度多く検出された。 $\text{NHD}_2$ が ND 結合を 2 本持っていることから、結合 1 本当りに換算して、NH 結合切断の確率が ND 結合切断の約 5 倍に相当することになる。他方、 $\text{NH}_2\text{D}$ の ND 伸縮振動状態では、結合 1 本当りの NH/ND 切断比が約 0.7 となり、ND 結合の方が高い確率で切断できていることがわかった。

アンモニアでの選択性発現は、HOD の場合とは異なり、励起エネルギーが電子励起  $\tilde{A}$  状態ポテンシャル曲面上にある鞍点よりも十分に高いことが原因であると考えられる。アンモニアの  $\tilde{A}$  状態は、NH あるいは ND 結合解離に対して前期解離性のポテンシャル曲面を有しており、結合解離は途中にある鞍点を乗り越えて進行することになる。さらに  $\tilde{A}'$ 、 $\tilde{X}$  遷移において、分子構造が非平面なピラミッド構造から平面構造へ、対称変角方向に大きく変化する。そのため、励起エネルギーが  $\tilde{A}$  状態の鞍点と同程度、またはそれより低い場合には、Fig. 4 に示されるように、分解過程は対称変角振動の緩和を伴った、非常に複雑なものになり、伸縮振動励起によって生じた選択性は失われてしまうと推測できる。一方、今回の実験条件では、励起エネルギーは  $\tilde{A}$  状態の鞍点よりも十分に高くなっており、Fig. 5 に示されるように、 $\tilde{A}$  状態ポテンシャル曲面の形状にあまり影響されず、直接的に結合切断が進行できるため、選択性が保存されやすくなっている、と考えられる。

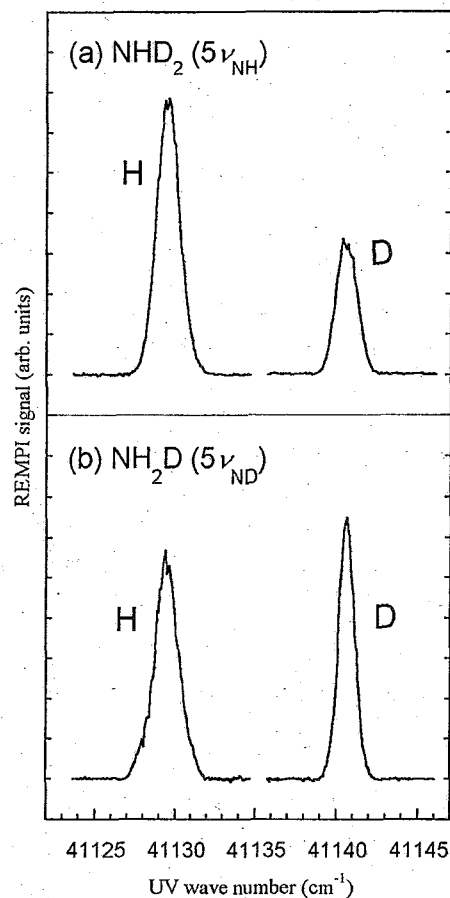


Fig. 3. (2+1) REMPI signals of H and D atoms generated by 243 nm photolysis of (a)  $\text{NHD}_2(5\nu_{\text{NH}})$  and (b)  $\text{NH}_2\text{D}(5\nu_{\text{ND}})$ .

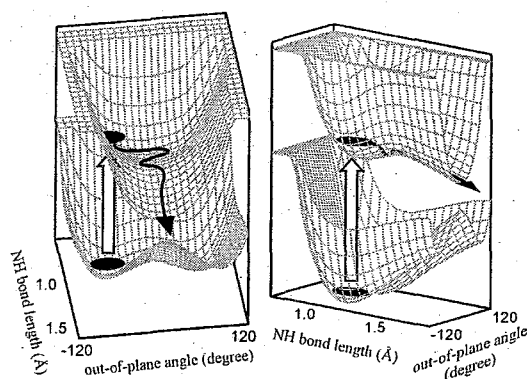


Fig. 4. Schematic diagram of photodissociation dynamics of ammonia at excitation energy lower than the saddle point on the  $\tilde{A}$ -state potential energy surface. Bond dissociation proceeds accompanying with the relaxation for the out-of-plane angle.

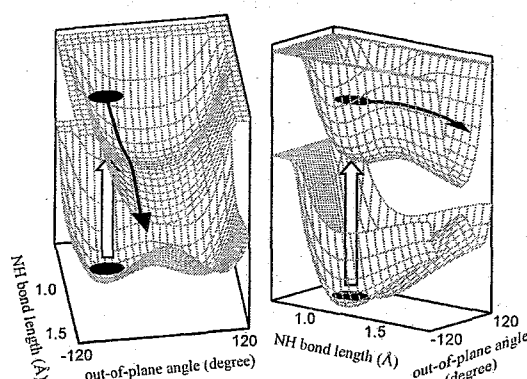


Fig. 5. Schematic diagram of photodissociation dynamics of ammonia at excitation energy higher than the saddle point on the  $\tilde{A}$ -state potential energy surface. Bond dissociation can proceed without the relaxation for the out-of-plane angle.

#### 4. まとめ

直接解離性という、比較的単純な  $\tilde{A}$  状態ポテンシャル曲面を有する HOD では、2つの解離チャンネルの間に鞍点が存在する。そのため、OD 伸縮振動を十分に励起した後、その鞍点より低い励起エネルギーで光分解することによって、OD 切断の高い選択性が発現した。一方、アンモニアでは、 $\tilde{A}$  状態は前期解離性で反応経路上に鞍点が存在し、かつ対称変角振動の励起を伴いながら解離が進行するという、HOD よりも複雑なポテンシャル曲面を有している。そのため、解離反応は直接的に進行しにくく、さらに対称変角振動が伸縮振動と強く相互作用するため、振動励起によって生じた選択性が失われやすくなる。この問題を回避するため、HOD の場合とは逆に、励起エネルギーを  $\tilde{A}$  状態の鞍点より高くしてポテンシャル曲面からの影響を小さくすることで、選択性を発現させることができた。これらの実験結果は、振動状態を選ぶだけでなく、励起エネルギーをうまく選別することによって、異なるポテンシャル曲面を有するさまざまな分子系に対して、選択的な結合切断の可能性を示している。

#### 参考文献

- [1] R. L. Vander Wal, J. L. Scott, and F. F. Crim, *J. Chem. Phys.* **92**, 803 (1990).
- [2] M. Brouard and S. R. Langford, *J. Chem. Phys.* **106**, 6354 (1997).
- [3] Y. Cohen, I. Bar, and S. Rosenwaks, *J. Chem. Phys.* **102**, 3612 (1995).
- [4] H. Akagi, H. Fukazawa, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, *J. Chem. Phys.* **123**, 184305 (2005).
- [5] H. Akagi, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, *J. Chem. Phys.* **120**, 4696 (2004).



## 6.4 重粒子線の線量分布に対する電荷数の役割

The role of charge numbers of heavy particles for dose distribution

森林健悟

独立行政法人 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

光量子ビーム利用研究ユニット

〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台 8-1

Kengo MORIBAYASHI

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

8-1 Umemidai Kizu-cho Souraku-gun, Kyoto 619-0215 Japan

### Abstract

We study the stopping powers of the target of  $H_2$  for the projectiles of He, Li, and C. We calculate the stopping powers as a function of invasion lengths of the projectiles by using Monte Carlo method. The charge numbers of the projectiles have a larger effect on the stopping powers and the range as the atomic number of the projectiles becomes larger.

**Keywords:** heavy particle, Stopping powers, Charge number, Ion impact ionization, Charge transfer, Electron loss, Monte-Carlo

### 1. はじめに

重粒子線と原子分子との相互作用は原子核物理、原子分子物理、放射線物理・化学、生体科学、医学物理など多くの分野で研究がおこなわれている。最近、マイクロビームにより重粒子線を1つの細胞だけに照射する実験が盛んに行われている[1]。この実験により照射していない細胞が損傷を受けるというバイスタンダー効果の発見がなされ、さらに、線量分布や二次電子などが観測できるようになった[1]。細胞核に確実に照射させるなど、さらに高精度な実験を行うには、重粒子線の線量分布のメカニズムを理解し、高精度な線量分布計算による予測が有用となる。重粒子線の線量は、重粒子線の電荷数に依存する[2]。それゆえに、線量計算には物質中での電荷数の変化を取り扱う必要がある。重粒子線の電荷数は、電荷移行( $A^{z+} + B \rightarrow A^{(z-1)+} + B^+$ ,  $A^{z+}$ : 入射イオン、 $B$ : 標的分子)、電子損失( $A^{z+} + B \rightarrow A^{(z+1)+} + B + e^-$ )などの原子分子過程によって決定する。すなわち、重粒子線による線量分布計算には、電荷数の効果が反映されるべきである。電荷数の変化を考慮した線量分布計算は、最近になり、ようやく陽子線 [3]及び $\alpha$ 線[4]に取り入れられたが、それらよりも重い粒子の線量分布計算に関してはその効果を取り入れた研究は、我々が知る限り存在しない。そこで、この論文では、モンテカルロ法を用いて標的を水素分子とし、衝突イオン化過程の他に電荷移行、電子損失過程を考慮して、2MeV/uのHe、Li、Cの入射粒子の阻止能(線量)を入射粒子の侵入距離の関数として求めて、電荷数が線量に与える影響を研究する。

## 2. モンテカルロ法

粒子線のエネルギー損失には標的の並進運動に移行するものと標的の内部エネルギーに移行するものの2種類ある[5]。阻止能はイオンエネルギーの侵入距離の微分の絶対で定義されているが、2つの損失はそれぞれ、原子核阻止能、電子阻止能と呼ばれている。原子核阻止能は文献[5]での手法を用いた。一方、電子阻止能の計算には、次の節で説明するいくつかの原子分子過程の断面積を用いる。

阻止能計算は以下のアルゴリズムのモンテカルロ法を用いる。(i) まず 2MeV/uの電子を持たない裸のイオンを標的に侵入距離  $r=0$  で入射する。(ii)  $r$ の値を  $dr$ だけ増やし、原子核阻止能を求めると共に原子分子過程を無作為に1つだけ選択する。(iii) その過程が起きる確率を計算する。(iv) その確率が乱数よりも大きい時のみ、その過程が起こるとする。そのとき、入射イオンのエネルギー、イオンの電荷数をその過程に従って変化させる。(v) その過程が起こらない(乱数が確率よりも大きい)とき、他の過程を選択し、手順 (iv)と(v)を実行する。(vi) 一つの過程が起こるか、または、すべての過程が起こらない時、手順(ii)-(v) を実行させる。(vii) イオンのエネルギーが10 keV/u. になるまで手順 (ii) - (vi) を実行させる。阻止能は、手順(i)-(vii).を1000回実行し、その平均値から求める。阻止能の計算には、レート方程式を直接解く方法もあるが、Liの入射粒子に対して、ここで求めた値とレート方程式で求めた値とが良好一致を示したことを確認した。

## 3. 原子分子過程

この論文では 衝突電離 ( $A^{z+} + B \rightarrow A^{z+} + B^+ + e^-$ ), 衝突励起 ( $A^{z+} + B \rightarrow A^{z+} + B^*$ ), 電荷移行 ( $A^{z+} + B \rightarrow A^{(z-1)+} + B^+$ ), 電子損失 ( $A^{z+} + B \rightarrow A^{(z+1)+} + B + e^-$ ) 過程の公開されている断面積を用いて、それから、モンテカルロ法(iii)に必要な確率を求める。

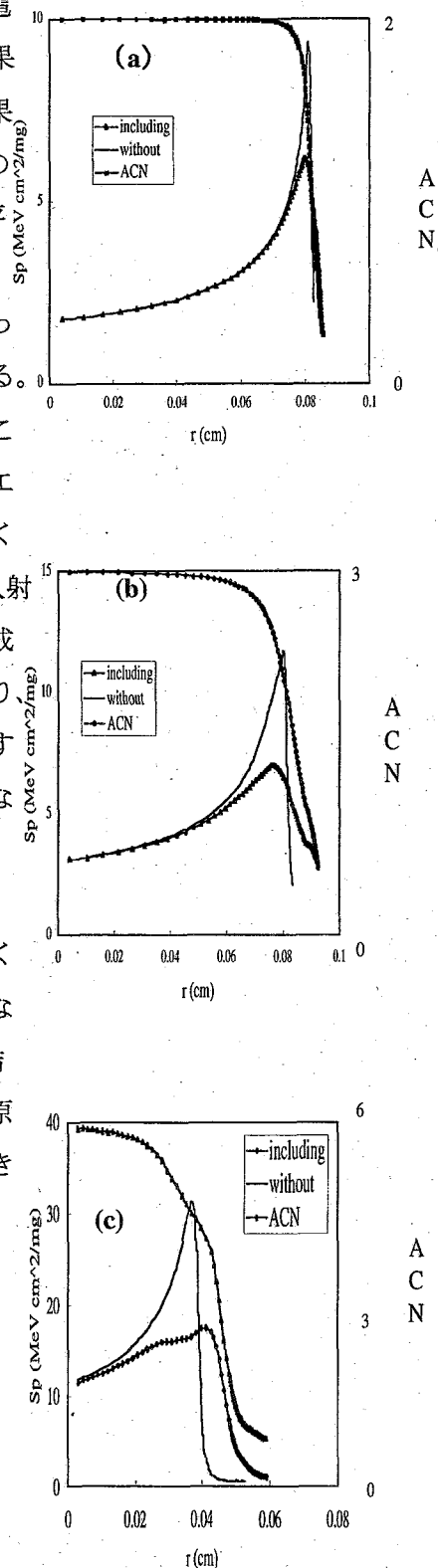
衝突電離断面積には He, Li イオンに対しては文献 [6]の実験値を C に対しては 文献[7]の反経験式[8]を用いた計算値を用いる。データの無いエネルギーの高い領域の断面積は反経験式から評価する。この過程によるエネルギーの損失は標的のイオン化エネルギーと2次電子のエネルギーの和で表すことができる。この2次電子のエネルギー分布には Rudd モデル[9]を用いる。エネルギー損失にはその平均値を用いる。

電荷移行断面積は He, Li, C イオンに対してそれぞれ文献[10], [11], [7]の実験値を用いる。イオンエネルギーの高い領域の断面積は  $\sigma_{CT} \propto E_i^{-3.5}$  の式でスケーリングする[12]。  $A^{(z-1)+}$  と標的のイオン化エネルギーをそれぞれ、  $I_A$  および  $I_B$  とすると、この過程でのエネルギー損失は  $(I_B - I_A)$  である。また、この過程が起きた後、入射粒子の質量は電子の質量だけ増やす。電子損失の断面積は文献[13]と同じスケーリング則より求める。この過程でのエネルギー損失は標的のイオン化エネルギーとする。この過程が起きた後、イオンの質量は電子の質量分だけ減らす。

#### 4. 結果と考察

図1 (a)-(c)は $r$ の関数として阻止能と平均電荷数(ACN)をそれぞれ、入射粒子He, Li, Cに対して示した。この図には、電荷数の変化を考慮したものとししないものの2通りの計算結果を示した。入射粒子がHeの場合、2通りの阻止能の計算結果の差及び平均電荷数は阻止能のピーク (Bragg peak) 付近のみで変化する。一方、入射粒子がCの場合、その差及び平均電荷の変化はBragg peakよりも手前のところで見られる。電荷数は、前述のように電荷移行過程と電子損失過程によって決定する。電荷移行反応断面積は電荷数の3乗に比例する。したがって、原子番号の大きな粒子ほど電荷移行過程は起こりやすくなる。一方、電子損失断面積は、入射粒子の束縛エネルギーの増加と共に減少する。イオンエネルギーが大きくなると文献[13]でしめされているように電荷移行によって入射粒子の電子状態は、基底状態、または、低い励起状態を形成する。それにより、入射粒子の束縛エネルギーが大きくなり、電子損失過程は原子番号が大きいほど起こりにくくなる。すなわち、原子番号が大きくなるほど束縛エネルギーが高くなり、電子損失断面積は小さくなる。すなわち、Bragg peak より手前で電荷の変化を起こしやすいということがわかる。そのことにより炭素粒子の方が電荷数の変化が起こりやすくなる。電荷数が小さくなると阻止能もそれに伴って小さくなり[2, 13]、その結果、炭素イオンで2通りの阻止能の計算結果の差が見られる。すなわち、図1で示されているように原子番号が大きくなるにつれて電荷数の阻止能への影響は大きくなること がわかる。

図1 Stopping powers ( $S_p$ ) and the averaged charge number (ACN) vs. invasion lengths ( $r$ ) for projectiles of (a) He, (b) Li, and (c) C: The two cases are treated; that is, including and without the change of the charge numbers



## 5. 結論

入射粒子He, Li, Cに対して水素分子の阻止能の電荷数依存性を研究した。原子番号が大きくなるにつれて、電荷数の変化の阻止能への影響は大きいことがわかった。これは、電荷移行と電子損失の断面積が入射粒子の原子番号と共にそれぞれ、増加、減少を起こし、原子番号が大きくなるほど、電荷数が減少しやすくなるためであるということがわかった。

## 謝辞

本研究を遂行するにあたり有用な助言をしていただきました田島俊樹所長、木村ユニット長、山極満グループリーダーをはじめとする光量子シミュレーション研究グループのメンバーの方に感謝いたします。モンテカルロ計算は、関西光科学研究所の超並列計算機 SSCMPP で実行した。

## 参考文献

- [1] Y. Kobayashi, T. Funayama, S. Wada, M. Taguchi, and H. Watanabe, Nucl. Instru. and Meth. B**210**, 308 (2003).
- [2] P. Sigmund and A. Schinner, Nucl. Instru. and Meth. B**195**, 64 (2002).
- [3] S. Uehara, L.H. Toburen, and H. Nikjoo, Int. J. Radiat. Biol., **77**, 139 (2001).
- [4] S. Uehara and H. Nikjoo, J. Phys. Chem. B, **106**, 11051 (2002).
- [5] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark, "The stopping and range of ions insolid", Pergamon press (1985).
- [6] M. B. Shah and H. B. Gilbody, J. Phys. B, **15**, 3441 (1982).
- [7] R.K. Janev, R.A. Phaneuf, and, H.T. Hunter, At. Data & Nucl. Data Tables, **40**, 249 (1988).
- [8] G.H. Gillespie, Phys. Lett. **93A**, 327 (1983).
- [9] M.E. Rudd, Y.-K. Kim, D.H. Madison, and T.J. Gay, Rev. Mod. Phys., **64**, 441 (1992).
- [10] C. F. Barnett, J. A. Ray, E. Ricci, M.I. Wilker, E.W. McDaniel, E.W. Thomas, and H.B. Gilbody., "Atomic Data for Controlled Fusion Research", published by Oak Ridge National Laboratory (1977).
- [11] M. B. Shah , T. V. Goffe and H. B. Gilbody, J. Phys. B, **11**, L233 (1978).
- [12] R. K. Janev, L. P. Presnyakov, and V. P. Shevelko, "Physics of highly charged ions", (SPRINGER SERIES IN ELECTROPHYSICS, V.13) (1985), p.178-185,
- [13] K. Moribayashi, J. Plasma Fusion Res. Series vol.7, 150 (2006).

## 6.5 高強度波形整形レーザーパルスによるエタノールの選択的化学結合切断

### Selective bond breaking of ethanol in designed intense laser fields

板倉 隆二<sup>1,2</sup>、山内 薫<sup>2</sup>、矢澤 洋紀<sup>3</sup>、塩山 正真<sup>3</sup>、神成 文彦<sup>3</sup>

<sup>1)</sup> 独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 光量子ビーム利用研究ユニット

<sup>2)</sup> 東京大学大学院 理学系研究科

<sup>3)</sup> 慶応大学大学院 理工学研究科

R. ITAKURA, K. YAMANOUCHI, H. YAZAWA, T. SHIOYAMA, F. KANNARI

<sup>1)</sup> Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

<sup>2)</sup> School of Science, University of Tokyo

<sup>3)</sup> Faculty of Science and Technologies, Keio University

The response of ethanol molecules to a train of intense laser pulses is investigated by changing parameters such as the number of pulses within a train and the chirp-rate of respective pulses. The adaptive optimal control of the selective bond breaking of the C-O and C-C bonds is also conducted. On the basis of the resultant optimal pulse shape, the mechanism of the dissociative ionization of ethanol in intense laser fields is discussed.

**Keywords:** Intense laser field, Laser pulse synthesis, Dissociative Ionization, Selective bond breaking

近年、高強度レーザーパルスの波形を整形することが技術的に可能となり、化学反応制御へ適用されるようになった。我々はこれまでに、強光子場 ( $10^{13} \sim 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ) 中におけるエタノールの解離性イオン化に関して、レーザーパルスをチャープさせることによって、C-C 結合の解離に対する C-O 結合の解離の分岐比が 5 倍近くも増加することを示した[1]。本研究では、最短時間幅が 37 fs の強レーザーパルスを用いて様々な波形整形を系統的に行い、反応分岐比の波形依存性について系統的に調べた[2]。

最初と最後のパルス間隔を 800 fs に固定してレーザーパルス列を発生させ、パルス数、およびチャープ率をパラメータとして、C-O 結合の解離と C-C 結合の解離分岐比の変化を観測した。その結果、パルス列の中のパルス数が多いほど、また、各パルスの幅が広がるほど、C-O 結合の分岐比が増加することが明らかになった。但し、得られる分岐比の最大値は、単一パルスをチャープさせることによってパルス幅を伸ばした時と同じであった。これらのことから、800 fs の時間窓の中においてレーザー場が連続的に存在し続けることが C-O 結合の切断の分岐比を増大させる主要因であることが示唆された。

一方、その分岐比を最大にするように最適化制御実験を行ったところ、チャープ化によって得られる分岐比とほぼ同じ最大値が得られた。制御実験を繰り返し行なった結果、いずれの場合もスパイク状波形を持つ最適化レーザーパルス波形が得られるものの、これらの包絡線の幅が 1 ps 程度であるということ以外に共通の特徴は見出されなかった。このことから、強レーザー場中における C-O 結合と C-C 結合との分岐は、レーザー電場の持続時間が 1 ps 程度に伸張されるかどうかによって支配されており、約 1 ps の時

間幅の中に現れるスパイク状の波形変化には影響されないことが明らかとなった。

#### 参考文献

- [1] R. Itakura et al., *J. Chem. Phys.* **119**, 4179 (2003).
- [2] H. Yazawa et al., *J. Chem. Phys.* **124**, 204314(2006).





## 6.6 1-8keV 領域用多層膜反射鏡の生成と評価

### Multilayer Mirrors for Use in the Energy Range of 1-8 keV

石野雅彦, 小池雅人

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

〒619-0215 京都府相楽郡木津町梅美台 8-1

**Masahiko ISHINO, Masato KOIKE**

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

8-1, Umemidai, Kizu, Souraku, Kyoto 619-0215, Japan

佐野一雄

島津エミット (株)

〒541-0041 大阪府中央区北浜 2-5-23

**Kazuo SANO**

Shimadzu Emit Co., Ltd.

2-5-23, Kitahama, Chuo, Osaka 541-0041, Japan

**Eric M. GULLIKSON**

Center for X-Ray Optics, Lawrence Berkeley National Laboratory

1 Cyclotron Rd. Berkeley, CA 94720-8199, U.S.A.

We have fabricated and evaluated the multilayer mirrors for use in the energy range of 1-8 keV. As a result of theoretical investigation, we have found that Co/Si and Co/SiO<sub>2</sub> multilayers show relatively high reflectivity. We have fabricated the Co/Si and Co/SiO<sub>2</sub> multilayers by means of an ion beam sputtering method, and evaluated the layer structures and optical properties of the fabricated multilayers. A simulation calculation for the Co/Si multilayer implies large inter diffusion layers. The inter diffusion layers cause the degradation of optical contrasts of the layer boundaries, so that the reflectivity of Co/Si multilayer decrease. Roughnesses of the Co/SiO<sub>2</sub> multilayer are larger than those of the Co/Si multilayer, but it is possible that x-ray reflectivity can be increased by using SiO<sub>2</sub> instead of Si.

#### 1. はじめに

1-8keV のエネルギーをもつ X 線領域には元素の吸収端が数多く存在し、物質と強く相互作用することから、磁性体や触媒の構造解析などの物性研究や、生体物質の微量元素分析や構造解析などの広い分野で利用されつつある。しかし、X 線領域では物質の直入射での反射率が極端に小さいことから[1]、全反射を利用した斜入射光学系が主流となっている。しかし、斜入射光学系では受光面積が大きくなり、特に結像光学系では収差の増大など好ましくない現象が避けられない。

一方、多層膜反射鏡は全反射を利用しない光学素子であり、斜入射角が臨界角よりも大きくなっても高い反射率を得ることができる。また、回折格子と多層膜を組み合わせることにより、適用可能なエネルギー領域を広げ、応用範囲を拡大させることも可能となる[2]。

そこで、1-8keV のエネルギー領域で機能する X 線光学素子（反射鏡、分光素子）への応用を目的として、多層膜反射鏡の設計と生成、そして評価を行った。

## 2. 多層膜成膜物質の選択

Figure 1 に 1-8keV 領域の X 線に対する多層膜の 1 次 Bragg ピークの反射率計算値[3]を示す。多層膜の周期長( $d$ )は 6.64nm、膜厚比( $\Gamma$ )は 0.4、周期数( $N$ )は 30 周期 (60 層)とし、計算では理想構造(表面および界面粗さ、界面混合層なし)を仮定している。多層膜に入射する X 線は  $s$ -偏光である。1 次 Bragg ピークの出現する斜入射角は、多層膜に入射する X 線のエネルギーにより変化し、 $\theta=0.7^\circ$  から  $5.9^\circ$  の範囲にある。

高エネルギー領域で利用されている W/C 多層膜[4]や Pt/C 多層膜[5]については、構成元素である W や Pt の  $M$  殻吸収端が 2-3keV のエネルギー領域にあることから、この領域での反射率は減少する。同様に Si を用いた多層膜では、 $K$  殻吸収端 (1.8keV) の影響により 2keV での反射率は減少するが、その他の領域では高い反射率が期待できる。Figure 1 から Co/Si 多層膜、そして Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜が 2.5keV よりも高エネルギー領域において高い反射率をもつことが期待できる。しかし、Co の  $K$  殻吸収端 (7.7keV) の影響により、8keV における反射率は減少する。

計算結果から、Co/Si 多層膜および Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜が 2.5-7.5 keV の広いエネルギー範囲において高い反射率が期待できることがわかった。しかし、Co/Si 多層膜においては多層膜界面において Co と Si が混合層を形成することが知られている[6]。混合層の形成は多層膜界面の光学的コントラストを低減し、反射率減少の原因となることから、実際に Co/Si 多層膜および Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜を成膜し、その構造と光学的特性の実験的評価を行った。

## 3. 多層膜反射鏡の生成と評価

Co/Si 多層膜および Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜の成膜はイオンビームスパッタ法により Si 基板(表面粗さ $\sim 0.3$ nm)上に行った。多層膜の設計値は、Fig. 1 の反射率計算と同じ値である ( $d=6.64$ nm,  $\Gamma=0.4$ ,  $N=30$ )。成膜した多層膜に対して、Cu- $K\alpha_1$  線 (8.05keV) による X 線回折 (反射率) 測定を行った。そして、得られた X 線反射率曲線に対して、界面拡散層を考慮した多層膜モデルを用いた X 線反射率のシミュレーション計算[7]を行い、多層膜の構造(密度、膜厚、粗さ)を評価した。計

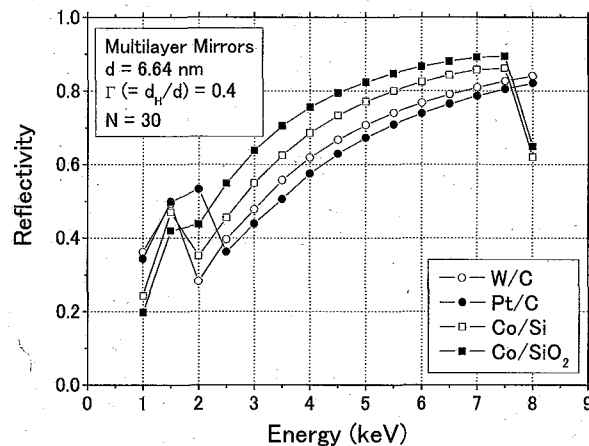


Fig. 1. Calculated 1st Bragg peak reflectivities of multilayers. Multilayers are assumed to have ideal structures.  $d$ ,  $\Gamma$  and  $N$  are represented multilayer period, thickness ratio of heavy material layer, and number of period, respectively.

算には解析ソフト[8]を用い、物理的に矛盾しない値での計算結果を多層膜構造とした。また、1keV 領域における多層膜の反射率測定を立命館大学 SR センターに設置の軟 X 線光学素子評価装置[9] および米国 Lawrence Berkeley National Laboratory の放射光施設である Advanced Light Source の BL6.3.2 Calibration and Standards Beamline [10]を用いて行った。

#### 4. 結果と考察

Figure 2 に X 線回折測定から得られた (a) Co/Si 多層膜と (b) Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜の X 線反射率曲線 (○) とシミュレーション計算結果 (—) を示す。回折角  $2\theta=16^\circ$  までの範囲で、Co/Si 多層膜では 11 次、Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜では 6 次までの Bragg ピークが確認できる。Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜より Co/Si 多層膜の方が高角度のピークまで確認することができることから、Co/Si 多層膜に比べて Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜の方が大きい粗さをもつと予想される。Bragg ピークの角度から導出した多層膜の周期長は、Co/Si 多層膜が 6.60nm、Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜が 6.64nm であった。また、Co/Si 多層膜の 1 次 Bragg ピーク反射率は 0.38、Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜は 0.50 であった。

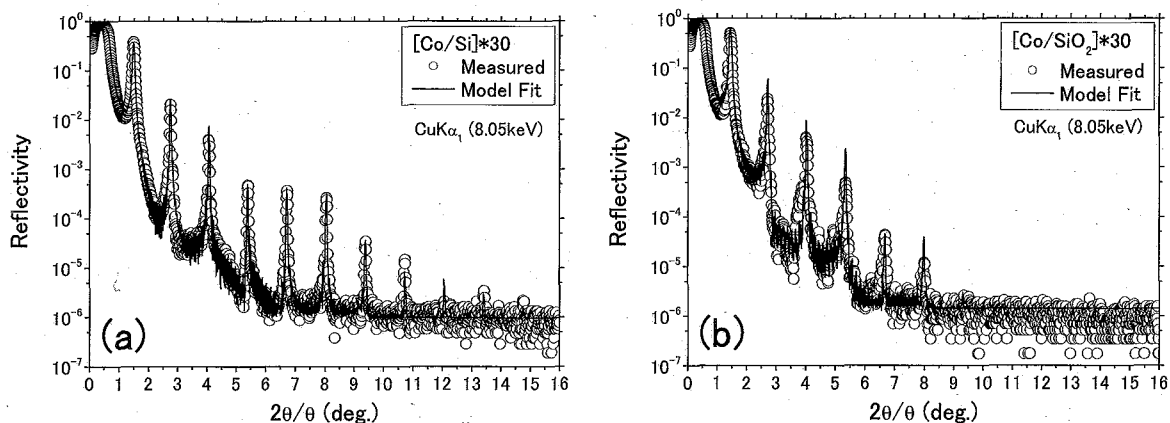


Fig. 2. X-ray reflectivity curves of (a) Co/Si multilayer and (b) Co/SiO<sub>2</sub> multilayer at Cu-K  $\alpha_1$  line.

Symbols represent the measured reflectivity curves (○) and the simulation results (—), respectively.

界面拡散層を考慮した多層膜モデル[7]によるシミュレーション計算から、Co/Si 多層膜では Si 層と Co 層の界面に 4.6-5.0g/cm<sup>3</sup> 程度の密度をもつ CoSi 混合層が形成され、Si 層のほとんどが CoSi 層となっていることを示唆する結果が得られた。このことから、Co/Si 多層膜は Co/CoSi 多層膜となっている可能性がある。また、表面および界面粗さは 0.33nm であった。一方、Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜では界面に混合層の存在を示唆する結果は得られなかったが、粗さは予想通り Co/Si 多層膜よりも大きく、0.44nm となった。

Figure 3 は放射光ビームラインを用いて測定した Co/Si 多層膜 (—) と Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜 (□) の 1keV 領域における反射率測定結果を示す。Co の L 殻吸収端が 780eV 近傍にあることから、このエネルギー領域における反射率は低下している。また、Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜の 540eV 近傍における反射率の異常は、酸素の K 殻吸収端の影響によるものである。測定から Co/Si 多層膜に比べて Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜の方が大きな反射率を得ることが可能であると確認できた。多層膜の界面で形成される混

合層は光学的コントラストを低減させることから、反射率減少の原因となる。Co/Si 多層膜では大きな混合層が形成されている可能性があることから、1keV 領域の反射率にも混合層による影響があると考えられる。

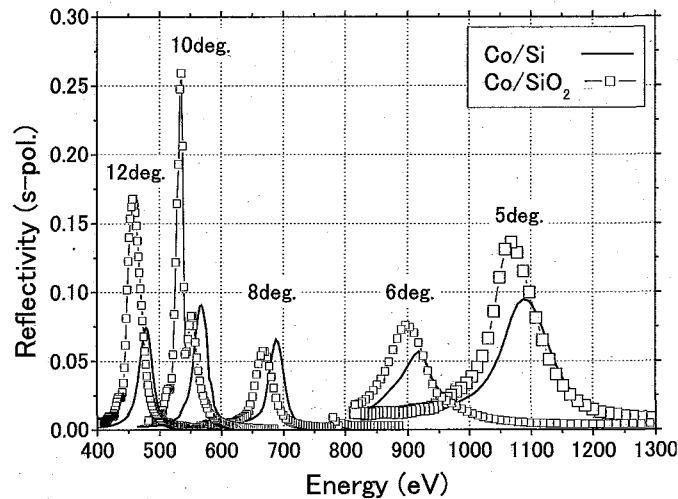


Fig. 3. Measured x-ray reflectivities in the 1 keV region of the Co/Si multilayer (—) and Co/SiO<sub>2</sub> multilayer (□), respectively. Angles shown in figure represent the grazing incidence angles of x-rays.

#### まとめ

1-8keV のエネルギー領域で機能する多層膜反射鏡として Co/Si 多層膜および Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜を選択し、X 線反射率測定と界面拡散層を考慮したシミュレーション計算による構造評価を行った。その結果、Co/Si 多層膜では大きな混合層が形成されていることを示唆する結果が得られた。また、Co/SiO<sub>2</sub> 多層膜は、Co/Si 多層膜よりも大きな表面・界面粗さを示すが、1keV 領域および 8.05keV における反射率は Co/Si 多層膜よりも高い値を示した。

#### 参考文献

- [1] W.R. Hunter, "Vacuum Ultraviolet Spectroscopy I," Experimental Methods in the Physical Sciences **31**, J.A. Samson and D.L. Ederer ed., Academic Press (1998), Chap. 11.
- [2] M. Koike, M. Ishino, and H. Sasai, Rev. Sci. Instrum. **77**, 023101 (2006).
- [3] [http://www-cxro.lbl.gov/optical\\_constants/multi2.html](http://www-cxro.lbl.gov/optical_constants/multi2.html)
- [4] N. Gurker *et al.*, Nucl. Instrum. Methods B **94**, 154 (1994).
- [5] K. Yamashita *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **63**, 1217 (1992).
- [6] 例えば J. M. Fallon, C. A. Faunce, and P. J. Grundy, J. Appl. Phys. **88**, 2400 (2000).
- [7] M. Ishino *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **41**, 3052 (2002).
- [8] X 線反射率解析ソフトウェア GXRR, 理学電機株式会社.
- [9] M. Koike *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **73**, 1541 (2002).
- [10] J. H. Underwood *et al.*, Proc. SPIE **3113**, 214 (1997).



## 6.7 真空中における BN ターゲットからのレーザーアブレーションプラーム の特性

### Properties of the laser ablation plume from a BN target in a vacuum

大場 弘則<sup>1)</sup>、佐伯 盛久<sup>1)</sup>、江坂 文孝<sup>2)</sup>、山本 博之<sup>1)</sup>、横山 淳<sup>1)</sup>

独立行政法人日本原子力研究開発機構 <sup>1)</sup>量子ビーム応用研究部門、<sup>2)</sup>原子力基礎工学研究部門

Hironori OHBA<sup>1)</sup>, Morihisa SAEKI<sup>1)</sup>, Fumitaka ESAKA<sup>2)</sup>, Hiroyuki YAMAMOTO<sup>1)</sup>

and Atsushi YOKOYAMA<sup>1)</sup>

<sup>1)</sup>Quantum Beam Science Directorate, <sup>2)</sup>Nuclear Science and Engineering Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

The laser ablation of boron nitride target at 308nm was investigated by mass spectroscopy and plasma probe in a vacuum. The velocity of ablated B<sup>+</sup> is much higher than that of B. Although <sup>10</sup>B/<sup>11</sup>B ratio of the ablated neutral boron atoms was the same as a natural abundance ratio, the enrichment of <sup>10</sup>B in the ionized boron atoms was observed even though the power density <10<sup>9</sup> W/cm<sup>2</sup>. The fractional ionization increased to several tens percent with increasing laser power density.

**Keywords:** Laser ablation, Boron nitride, Plume plasma, Mass spectroscopy, Particle fluxes

#### 1. はじめに

レーザーアブレーションは成膜から分析まで利用され、ダイヤモンド薄膜に近い優れた特性を持つ立方晶窒化ホウ素 (BN) 薄膜も製作できる<sup>[1]</sup>。ホウ素化合物に10<sup>10</sup>~10<sup>15</sup> W/cm<sup>2</sup>の超高強度レーザー光を照射すると、アブレーションにより生成したプラームプラズマ中イオンの同位体比は天然組成 (<sup>10</sup>B:19.6%, <sup>11</sup>B:80.4%) と異なることが報告されており<sup>[3,4]</sup>、最近では、同様の結果が10<sup>9</sup> W/cm<sup>2</sup>のパワー密度でも観測されている<sup>[5]</sup>。<sup>10</sup>Bは中性子吸収断面積が大きいので、<sup>10</sup>B同位体組成比制御により高感度中性子センサや、耐宇宙線半導体素子等への利用が期待される。レーザーアブレーションによる新たな高品質機能性薄膜の創製のために、アブレーション放出種特性と膜生成過程との関連を知ることは重要であり、本研究ではプラーム中イオン制御による成膜法を見出すために、真空中におけるBNアブレーション放出種の特性を調べた。

#### 2. 実験方法

アブレーションターゲットは受入れたままの焼結BN板を用いた。(20mm×20mm, Goodfellow Inc.社製) これを真空槽内に置き、パルス幅が25nsのXeClエキシマレーザー (Lamda Physik社製 LPX120i, 最大出力:100mJ) からのレーザー光を焦点距離が400mmのレンズを用いて集光させて、ターゲット表面に対して45°の角度で照射した。照射レーザー光のパワー密度はNDフィルターを用いて0.4~2.3×10<sup>8</sup> W/cm<sup>2</sup>で変化させた。ターゲットから放出したプラーム中イオンおよび中性粒子は、410mmの高さにターゲット面の法線に対して直交させて取付けた四重極型質量分析計 (QMS) (ABB Extrel社製 C-50) を用いて時間分解測定した。イオン検出はQMSフィラメントを点灯させずに四重極内に引き込んで検出し、中性粒子は電場および磁場を用いてイオン偏向させた後にQMSフィラメントを点灯させて検出した。プラーム中のイオンの割合を測定するために、イ

オンプローブと水晶振動子型膜厚計(QCM)を組み合わせた検出器をターゲットから100mmの高さに設置した。

### 3. 結果および考察

QMSで放出種を同定したところ、イオンのほとんどは $B^+$ であり、 $N^+$ 、 $N_2^+$ 、はわずかに検出されたが、 $B_2^+$ 、 $BN^+$ は検出限界以下であった。一方、中性粒子では $B$ 、 $N$ 、 $N_2$ が主に検出され、 $B_2$ 、 $BN$ は観測されない。ターゲットの $BN$ はレーザー照射により昇華分解し、分解生成した原子・分子が真空中を上昇していることを示している。Fig.1はパワー密度が $1 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ の時、QMSで測定した $B$ および $B^+$ の飛行時間波形である。 $B^+$ は中性原子の約2倍の速度で検出器に到達しており、電磁場によるイオン偏向成膜だけでなく、時間的な中性粒子とイオンとの選別による高品質成膜も可能なことを示している。Fig.2は飛行時間波形から求めた同位体比 ( $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$ ) のパワー密度依存性を示した。 $B$ ではパワー密度の増加に伴う変化はなく、ほとんど天然同位体組成で上昇している。これに対して $B^+$ の同位体比は、パワー密度の増加に伴い、天然組成からずれることが観測された。これまで、高いパワー密度 ( $> 10^8 \text{ W/cm}^2$ ) では、 $B^+$ の同位体比が天然組成比(0.247)から大きくずれることが報告されているが、今回、低いパワー密度でも天然組成から10%程度 $^{10}\text{B}^+$ が濃縮していることがわかった。今後、イオンの同位体濃縮機構を説明するために、アブレーション生成プラズマ中プラズマの挙動に着目した実験および解析が必要と思われる。

Fig.3はレーザーパワー密度が $2.5 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ の時、イオンプローブを用いてプラズマ中プラズマのイオン飛行時間から求めたエネルギー分布を示した。イオンプローブには $^{10}\text{B}^+$ 、 $^{11}\text{B}^+$ および2価以上のイオンも同時に入射するので、イオン波形は複数のピーク成分で構成される。Fig.3は仮に $^{11}\text{B}^+$ で換算して表示したものであり、並進エネルギーは0~150eVに分布し、ピークは約50eVである。また、ピークの並進エネルギー値は入射レーザーパワー密度の増加に比例して高くなることを確認した。フラックスの測定はQCM本体がイオンプローブを兼ねたもので、アブレーションターゲットの法線中心軸上に設置してイオンフラックスと全放出粒子を検出した。QCMを用いた場合、付着係数を1.0として、プローブに流入するプラズマ中のイオンおよび中性粒子を含む全フラックス  $\Gamma_{\text{total}}$  (レーザー1パルス当り、単位面を通過する粒子数) は次式から求めることができる。なお、検出器の下方にてイオン偏向させた場合は中性粒子フラックスのみが測定できる。

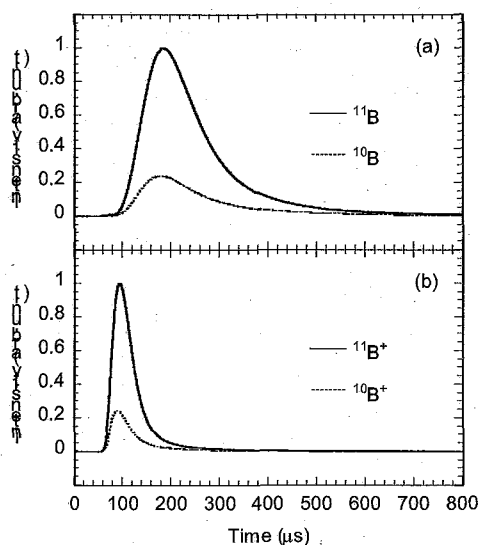


Fig.1 TOF spectra of neutral B atoms(a) and singly ionized atoms(b).

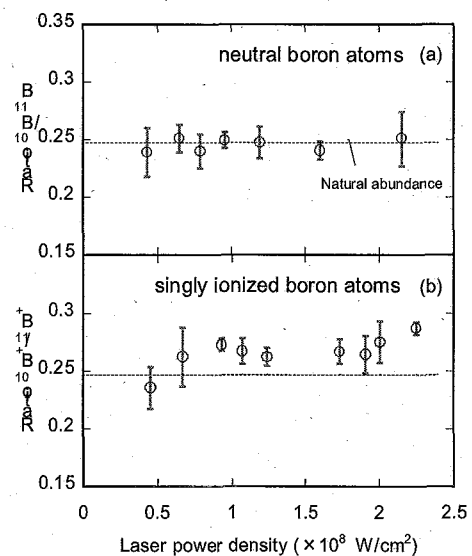


Fig.2 Dependence of laser power density on measured isotopic ratio.

$$\Gamma_{total} = \frac{N_q \rho_q}{M \cdot n} \cdot \frac{\Delta f}{f_q^2} \quad (1)$$

ここで、 $N_q$ は周波数定数、 $\rho_q$ は振動板（石英）の密度、 $f_q$ は振動板基準周波数（ $5 \times 10^6$  Hz）、 $\Delta f$ は蒸着による振動板の周波数シフト、 $M$ は原子量、 $n$ はレーザー照射数であり、蒸着による1 Hzの周波数シフトは $2.0 \times 10^{-7}$  cmの膜厚、8.5 ngの重量に相当する。一方、イオンフラックス  $\Gamma_{ion}$  は次式で求められる。

$$\Gamma_{ion} = \frac{\int i_{sat}(t) dt}{S \cdot e} \quad (2)$$

ここで、 $i_{sat}(t)$  はプローブのイオン飽和電流値、 $S$ はイオン捕集面積、 $e$ は素電荷である。これら(1)、(2)式から、Fig.4(a)にプルーム中心軸上でのレーザーパワー密度に対するQCMによるフラックス、イオンプローブによるフラックスの変化を、Fig.4(b)にはプルーム中イオンの割合をプロットした。プルーム生成量が少ない場合はほとんどが中性粒子であるが、パワー密度の増加に伴いイオンの割合も増加する。また、精密電子天秤を用いてレーザー照射前後の重量を測定し、ターゲットからのアブレーション放出量を調べた結果をFig.5に●で示した。パワー密度の増加に伴いアブレーション放出量は単調に増加し、これまでの報告例と一致する<sup>[6]</sup>。これに対して、Fig.4(a)に見られるように100 mm上方で測定したQCMによる全フラックスは、パワー密度の増加に伴い飽和の傾向を示している。アブレーション放出粒子の角度分布をQCMにより測定したところ、放出したプラズマプルームは上方に強く収束された成分と余弦則に従う成分の合成で表せることがわかった。これを基にアブレーション放出の積分量を推定した結果をFig.5に示した。レーザーパワー

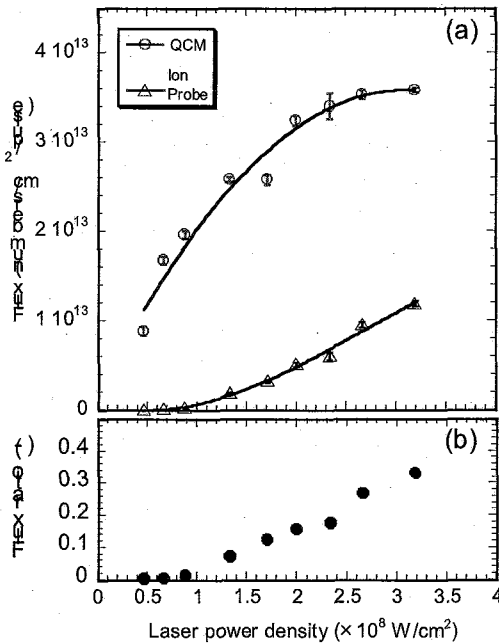


Fig.4 Absolute total and charge flux in dependence on the laser power density. (a) particle fluxes, (b) flux ratio of charges to total emitted particles.

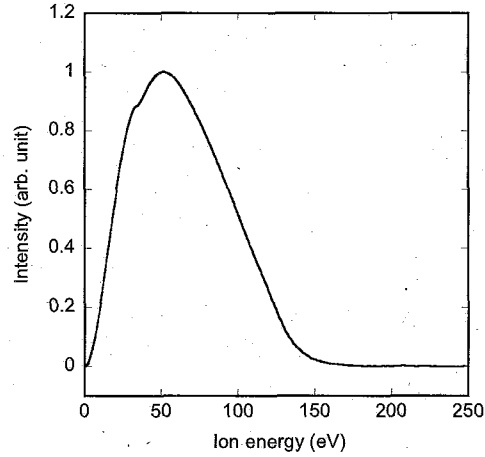


Fig.3 Ion energy distribution measured with the adapted quartz crystal resonator for the ion probe.

密度の増加に伴うアブレーション放出量の変化はターゲット重量測定と一致する。このことから、レーザーパワー密度の増加に伴うフラックスの飽和は角度分布の変化に起因するものと考えられる。ターゲット

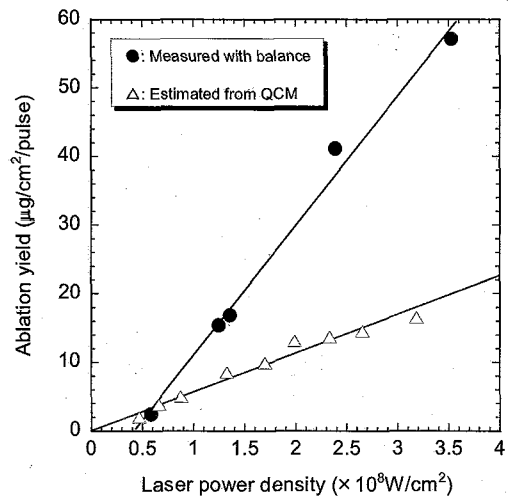


Fig.5 Ablation yield for the total emission as a function of the laser power density.

ト重量測定によるアブレーション放出量とQCMから推定した放出量では数十 $\mu\text{g}$ のオーダーで一致している。絶対値では推定値の方が少ないが、これは、付着率低下や、角度分布のレーザー入射方向依存性などの影響と思われる。一方で、イオンフラックスはレーザーパワー密度の増加に伴い飽和の傾向を示さない。アブレーションイオンの生成には入射レーザーパワー密度に対して閾値があることは良く知られている。また、 $<1\times 10^8\text{ W/cm}^2$ のQMS測定では、2価以上のBイオンは検出限界以下であったが、エキシマレーザーによる高いレーザーパワー密度領域では、2価イオンが生成してイオンプローブでの見かけのイオン量が増加すると考えられる。これらのことが、レーザーパワー密度に対するQCMによるフラックス変化とは異なる要因であろう。Fig.4(b)ではイオンの割合はレーザーパワー密度増大に伴い、30%を超えることを示しているが、2価イオンの生成を考慮すると、10~20%が妥当と思われる。

照射後、QCMの振動板を取出して蒸着膜のSIMS分析を行ったところ、ホウ素の同位体比はほぼ天然組成比であった。蒸着したプルム中イオンが中性粒子に比べて少ないためと考えられる。今後はイオン軌道制御による薄膜作製の試み、同位体イオン濃縮機構の解明を進める予定である。

#### 参考文献

- [1] J. T. Cheung, Chapter 1 in :D.B. Chrisey, G.K.Hubler(Eds.), *Pulsed Laser Deposition of Thin Films*, Wiley, NewYork, 1994.
- [2] Li-Chyng Chen, Chapter 6 in :D.B. Chrisey, G.K.Hubler(Eds.), *Pulsed Laser Deposition of Thin Films*, Wiley, NewYork, 1994.
- [3] P. D. Gupta, R. Bhatnager, D. D. Bhawalkar: J. Appl. Phys.51,3422 (1980).
- [4] P. P. Pronko, P. A. VanRompay, Z. Zhang, J.A.Nees: Phys. Rev. Lett. 83, 2596 (1999).
- [5] M. Joseph, P. Manoravi: Appl. Phys. A 76, 153 (2002).
- [6] L. Torrisi, S. Gammino, L. Ando, V. Nassisi, D. Doria, A. Pedone, Appl.Surf. Sci.210, 262 (2003).





## 6.8 斜入射励起法による X 線レーザーの高効率化

Highly efficient x-ray laser generation with the grazing incident pumping method

長谷川登、河内哲哉、岸本牧、助川鋼太、田中桃子、越智義浩、

錦野将治、山谷寛、国枝雄一、永島圭介

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 X 線レーザー利用研究グループ

Noboru HASEGAWA, Tetsuya KAWACHI, Maki Kishimoto, Kouta SUKEGAWA,  
Momoko, TANAKA, Yoshihiro OCHI, Masaharu NISHIKINO, Hiroshi YAMATANI,  
Yuichi KUNIEDA, Keisuke NAGASHIMA.

X-ray laser research group Quantum Beam Science Directorate Japan Atomic Energy Agency

Recently, the improvement of the x-ray laser can generate the applicable x-ray laser, such as the high intense spatial and temporal coherent x-ray laser. We studied about the high efficient x-ray laser for the next improvement, that is, the high repetition-rate x-ray laser with a compact pumping source. The optical system of the grazing incident pumping<sup>1)</sup> controls the electron density at the pumping laser energy deposition region ( $= n_{e, de}$ ).  $n_{e, de}$  is described by the grazing incident angle to the target surface ( $= \theta$ );  $n_{e, de} \sim n_{e, cr} \sin^2 \theta$ .

The maximum output energy of the Ni-like Mo x-ray laser was measured to be 0.33  $\mu$ J at the total irradiation energy of 4.0 J. From this result, the energy of the pumping laser was reduced compared with the previous work ( $\sim 9$  J) and the conversion efficiency of the x-ray laser was about  $10^{-7}$ , it was not improved. In order to improve the conversion efficiency, we considered the spatial profile of the electron density ( $n_e$ ) and the temperature ( $T_e$ ) by the 1-D hydrodynamic simulation code; HYADES. The larger suitable region for the x-ray laser was obtained under the condition that the pulse separation was 2.0 ns. In the next experiment, we will optimize the pumping pulse condition to improve the conversion efficiency of the x-ray laser.

**Keywords: X-ray laser, Grazing incident pumping**

### 1. 概略

日本原子力研究開発機構関西光科学研究所では、X線レーザーを用いた応用研究を推進している。X線レーザーの応用実験をより円滑に行うには、小型励起レーザーによる高繰り返し発振が必要であり、発振の高効率化は、そのための有効な手段である。従来、レーザー励起方式によるX線レーザーでは、反転分布の形成される電子密度が励起レーザーの吸収される電子密度よりも低いため、反転分布の形成される領域を直接加熱することは不可能であった。近年考案された斜入射集光光学系 (Grazing Incident Pumping : GRIP)<sup>1)</sup>は、励起レーザーをターゲットに対して斜めに入射する事で励起レーザーの吸収電子密度を低密度側にシフトさせ、吸収領域と反転分布領域の電子密度を一致させることを可能とした。更に、従来階段ミラー等を用いて生成していた疑似的な進行波<sup>2)</sup>を自然に形成することが出来るため、プラズマの加熱領域を空間・時間的に制御する事が可能である。本研究では、ニッケル様モリブデンによるX線レーザー (波長 18.9nm) を対象として、斜入射励起光学系の設計製作及び、X線レーザーの発振実験を行った。

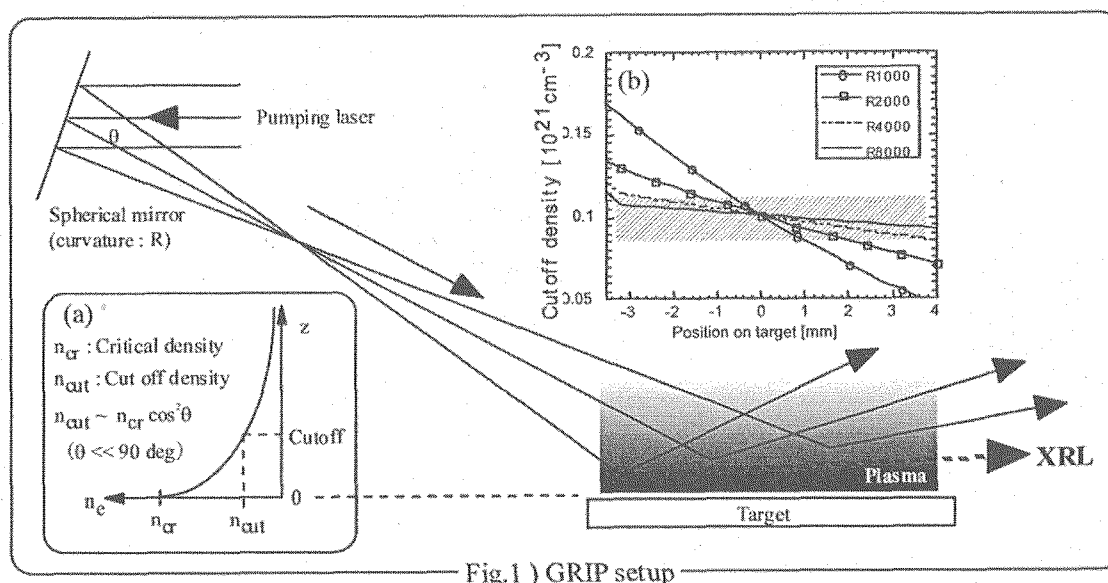


Fig.1) GRIP setup

## 2. 斜入射励起光学系の設計

GRIP の概略を Fig. 1 に示す。球面ミラーに斜め入射することによる収差を利用して、線状の集光を行う。この際に、入射角と F ナンバー（励起レーザービーム径 & 球面鏡の曲率）を調整することにより、線集光の軸方向にほぼ光速の進行波が形成される。プラズマ中での励起レーザーの吸収（反射）ポイントは、電子密度に換算して、 $n_e \sim n_{cr} \cos^2(90 - \theta)$  と表すことができる（ $n_{cr}$  は直入射の場合の臨界密度。波長  $1\mu\text{m}$  の時  $10^{21}/\text{cm}^3$ , Fig. 1(a)）。故に、入射角により到達密度を調整することが可能である。本実験では、Ni-like Mo を主眼において  $18^\circ$  ( $n_e \sim 10^{20}/\text{cm}^3$ ) に設定した。ただし、厳密には線集光は有限の長さを持つため、線集光の各位置で入射角が異なる（線集光の下流に行くに従い、入射角が小さくなる）。故に、励起レーザーの到達電子密度が線集光の軸にそって次第に密度の低い側にシフトするため、X 線レーザーの伝搬が妨げられる。集光系の F ナンバの増大に従い、この差は小さくなるが、実際には装置全体の大型化と線幅方向の集光能力の低下を招くため、最適化が必要である。軸外し角を  $18^\circ$ 、励起レーザーのビーム径を  $100\text{mm}$ 、プラズマのスケール長を  $30\mu\text{m}$  とした場合での、線集光の各位置における到達電子密度と F ナンバー（球面鏡の曲率）の関係を Fig. 1(b) に示した。曲率半径を  $4000\text{mm}$  とする事により、 $7\text{mm}$  の線集光長さの両端において到達電子密度の差を 1.5 倍以下（Fig2 斜線部分）に抑制する事ができる。以上から、斜入射光学系の設計を、軸外し角： $18^\circ$ 、ビーム径： $100\text{mm}$   $\phi$ 、鏡面鏡曲率： $4000\text{mm}$  とした。

## 3. X 線レーザーの発振実験

前章で設計した光学系を用いて、ニッケル様モリブデンを用いた X 線レーザーの発振実験を行った。励起レーザーは、ターゲットをイオン化するためのプリパルスと、イオンを励起するためのメインパルスから成り、それぞれのパルス幅は半値幅  $5\text{ps}$  であり、間隔は  $1.07\text{ns}$ 、強度比は  $\text{Pre} : \text{Main} = 1 : 4$  とした。線集光長さ及び線幅は、ターゲット表面のレーザー入射跡から、それぞれ  $8\text{mm}$ 、 $60\mu\text{m}$  と観測された。X 線レーザーの観測は  $1/1200\text{mm}$  の回折格子を持つ斜入射分光器を用いて行った。励起レーザーエネルギーと

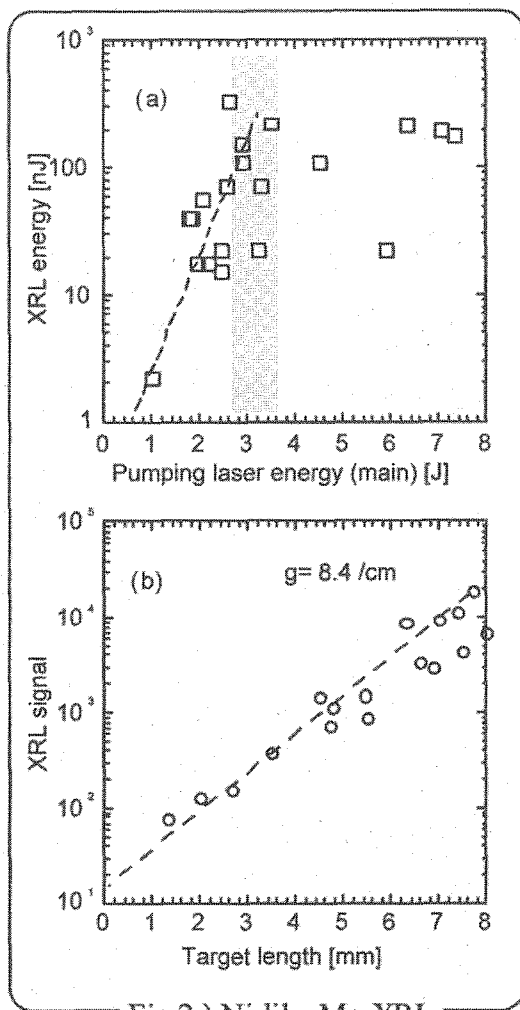


Fig.2 ) Ni-like Mo XRL

X線レーザーの出力の関係を Fig. 2(a)に示す。ターゲット上での照射エネルギー3.5 J (pre 0.7 J + main 2.8 J)の時に最大 330nJ (S/N > 1000)が得られており、直入射の場合<sup>2)</sup>と比較して約 1/3 の励起エネルギーに抑える事に成功した。照射エネルギーを 3.5 J に固定した場合での X 線レーザーの利得計測の結果を Fig. 2(b)に示す。計測された利得及び利得長積は、 $g=8.4$  /cm、 $gl=6.7$  ( $l=8$ mm)であり、直入射型のX線レーザー ( $g>20$ )と比較すると利得が小さく、また、飽和増幅に至っていない。また、出力としては 1/3 程度であり、励起エネルギーの低減は確認されたが、効率の向上は見られなかった。この事から、本実験では、低い利得を持ったプラズマが広範囲に渡って存在していると考えられる。励起レーザーの照射強度は、プリパルス  $3.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>、メインパルス  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> であり、メインパルスの照射強度については、過去に行われた GRIP の実験<sup>3)</sup>と同等であるが、プリパルスについては本実験が一桁大きいことから、照射条件の最適化が必要であると言える。加えて、本実験での線集光幅は、約 60  $\mu$ m であり、集光幅を改善する事により、励起エネルギーの低減が期待できる。

励起レーザーの照射条件の最適化のために、1 次元流体コード HYADES による実験条件の再現及び、

励起パルス条件の変化によるプラズマ状態の計算を行った。各プロット共に、横軸はターゲットからの垂直方向の距離を示し、各ラインは、メインパルスの強度ピークを 0 時刻とし、20 ps 後、40 ps 後の電子密度 (Ne)、電子温度 (Te) 示している。

Fig. 3(a) :  $3.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> +  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>、パルス間隔 1.1 ns、各パルス幅 5 ps (実験条件と同じ)

メインパルスの入射の瞬間 (パルスのピーク時刻、図中の 0 ps) での密度形状から、励起レーザーの吸収がほぼ電子密度  $2 \times 10^{20}$  cm<sup>-3</sup> の領域で行われている事が分かる。また同時刻では、電子温度が Ni 様イオンを生成するのに十分な温度 (イオン化ポテンシャル  $\sim 230$ eV) が保たれている。発振の予想される時間帯 (20 ~ 40 ps) に、発振に必要な電子密度 ( $8 \times 10^{19}$  cm<sup>-3</sup> < Ne <  $1.2 \times 10^{20}$  cm<sup>-3</sup>) と電子温度 (Te  $\sim 300$  eV) を満たす領域はターゲットから約 55  $\mu$ m から 65  $\mu$ m の範囲 (図中の  $\leftrightarrow$  の範囲) であった。

Fig. 3(b) :  $3.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> +  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>、パルス間隔 2.0 ns、各パルス幅 5 ps

メインパルスの入射直後での励起レーザーの吸収は(a)と比較して若干低い電子密度  $1 \times 10^{20}$  cm<sup>-3</sup> で行われている。(a)と比較して密度勾配が緩やかであり、結果として、発振領域は(a)の 2 倍の約 20  $\mu$ m の大きさが得られている。故に X 線レーザーの出力の増大及び、広がり角等の品質向上に有効であると考えられる。

Fig. 3(c) :  $3.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> +  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>、パルス間隔 0.5 ns、パルス幅プリ 5 ps、メイン 1 ps

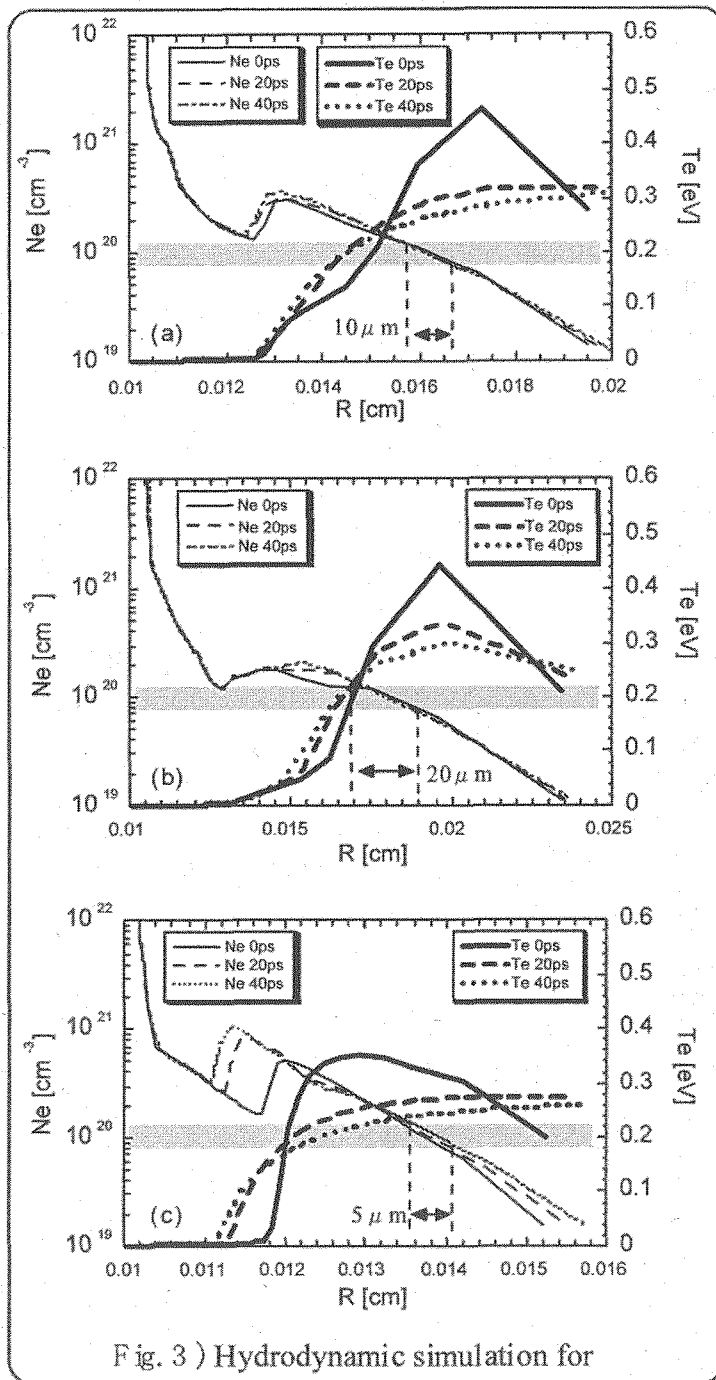


Fig. 3) Hydrodynamic simulation for optimization of the pumping laser pulse.

(a)と比較して密度勾配が急峻であるが、メインパルスが 1 ps の場合(メインパルスのエネルギー1/5)においても発振に必要な電子密度が得られている。発振可能な領域は小さい( $\sim 5\mu\text{m}$ )が、発振の閾値の低減に有効であると考えられる。

#### 4. 結論

X 線レーザーの高効率化を目指して、励起レーザーの吸収密度領域の制御が可能である「斜入射励起光学系」の設計製作を行い、ニッケル様モリブデンによる X 線レーザーの発振実験を行った。測定結果から、直入射の場合と比較して広範囲にわたり利得が発生していることが示された。広範囲に渡る利得の発生は X 線レーザーの出力増大及び広がり角の低減に繋がるため、更なる X 線レーザーの最適化が期待される。パルス照射条件の最適化を行うために流体シミュレーションを行うことにより、X 線レーザーの出力向上及び発振に必要な励起レーザーエネルギーの低減の可能性が示された。

#### 参考文献

- 1) R. Keenan *et al.* SPIE proc. Vol. 5197, 213 (2003).
- 2) Y. Li *et al.* Opt. Soc. Am. B Vol. 17, No. 6, June 2000.
- 3) B. M. Luther, *et al.*, Opt. Lett., **30**, 165 (2005).



## 6.9 Observation of density dip in a pre-formed plasma : Toward axial pumping X-ray laser

T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Nishikino, Y. Ochi, M. Tanaka, T. Utsumi, and A. Sasaki

X-ray Laser Group, Quantum Beam Science Directoratee,

Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

8-1 Umemidai, Kizu, Kyoto, 619-0215, Japan

We report the observation of electron density dip in a laser-produced molybdenum plasma pumped by double laser pulses which are linearly focused on the molybdenum slab target. The observed density dip was clearly formed at the time of 1~1.5ns after the second pulse, and the electron density of the dip was around  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  to  $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . The probe beam injected into the plasma column in the longitudinal direction was guided with the plasma length of up to 4.3 mm. The experimental result implies that the obtained plasma can be used as the pre-formed plasma for the axial pumping x-ray laser scheme.

Keywords: x-ray lasers, plasma physics, laser interferometer

### 1. Introduction

Several years ago, Ozaki et al [1]. reported demonstration of directional x-ray laser beam at a wavelength of 18.9 nm of the nickel-like molybdenum ions, in which a molybdenum slab target was irradiated by line-focused pre-pulse of the laser in the normal direction, and the following main (heating) pulse with 150fs-duration, an energy of 150 mJ was injected into the plasma column in the direction of longitudinal axis. Their explanation of the experimental result was that an electron density dip could be generated in the pre-formed plasma, and the main (heating) pulse in the longitudinal direction could be guided in the pre-plasma to achieve substantial gain-length product. However, the existence of the density dip or flat region was not verified experimentally yet. Since the axial pumping scheme extends the possibility of x-ray lasers with very narrow beam divergence and improves the pumping efficiency of the GRIP (grazing incidence pumping) scheme [2], it is valuable to investigate the possibility of generating electron density dip in a pre-formed plasma. In this report, we employed the methods of interferometer and back lighting imaging to diagnose the pre-formed plasma, and found the electron density dip could be generated under double-pulse irradiation.

Before the description of the details of the experiment, the related former works are described. The waveguiding of the pumping pulse has been studied intensively in the research fields of x-ray lasers and laser acceleration: In the laser-driven plasmas, Milchberg et al. found "light pipe" was generated in the

gas target irradiated by double pulse irradiation. In this experiment, the first pulse makes density dip in the radial direction, and the following second pulse was guided by the plasma channel [3,4]. In the discharge plasmas, Hosokai et al. demonstrated waveguiding of the terawatt laser pulse in the capillary discharge plasma column [5]. In the x-ray laser research, quite recently, Tomassini et al., measured density profile of the pre-formed plasma pumped by line-focused single pulse of TiS laser. However, no density dip could be observed under the single pulse irradiation [6].

## 2. Experiment and Discussion

Experimental set up is shown in Fig. 1. JAEA CPA Nd:glass laser provides double pulses: pre-pulse and the main pulse. The maximum total output energy of this laser is 20 J with 1 ps duration, however, since our objective is to diagnose the pre-formed plasma, we used only the pre-amplifier of this system to control the output energy to be 200 mJ ~ 500 mJ. The duration of the pre- and the main pulse was 10 ps, separated by 1.3 ns, and the energy ratio of the pre-pulse to the main pulse was 1:3.3. A portion of the uncompressed laser pulse was used as the probe beam: the duration was ~ 500 ps (bandwidth of 1.9 nm), and the energy was ~ 2 mJ. The probe beam was injected into the plasma in the longitudinal direction. The diameter of the probe beam was adjusted to be 5 mm at the position of the plasma. Then probe beam went through the imaging lens, changed the polarization direction to 45 degree with respect to the horizontal axis by the first polarizer, was divided into two polarization components by Wollaston prism, WP, and changed the polarization direction again to the horizontal direction by the second polarizer. Then the two components were merged by the steering mirror at the focal position of the imaging lens, where the portion of the probe beam including the information of the plasma and that went through the vacuum region made interference pattern, and we could obtain the phase information of the probe beam at the edge of the pre-formed plasma. In this set up, the magnification factor was around 9, which was assured by use of 120 micron diameter copper wire as the test sample. The spatial resolution was ~ 10 micron.

We set the delay line in the optical path of the probe beam, and adjust the timing of the probe beam with respect to the pumping pulse. It should be noted that by cutting one of the probe beam of the interferometer, we could obtain the backlighting image of the plasma. In the following context, the time of the probe beam was measured from the peak of the second pumping pulse.

Figure 2 shows the interferometer patterns together with the backlighting image of the pre-formed plasma at the timing of  $t = -300$  ps; (a),  $t = +1000$ ps; (b) and  $t = +1500$ ps; (c), respectively. The total pumping laser energy was set to be 190-210 mJ, *i.e.*, the pre-pulse energy and main-pulse energy was ~ 45-53mJ and 145-157mJ, respectively, which corresponds to the intensity on the target of  $4 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> and  $1.2 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, respectively.

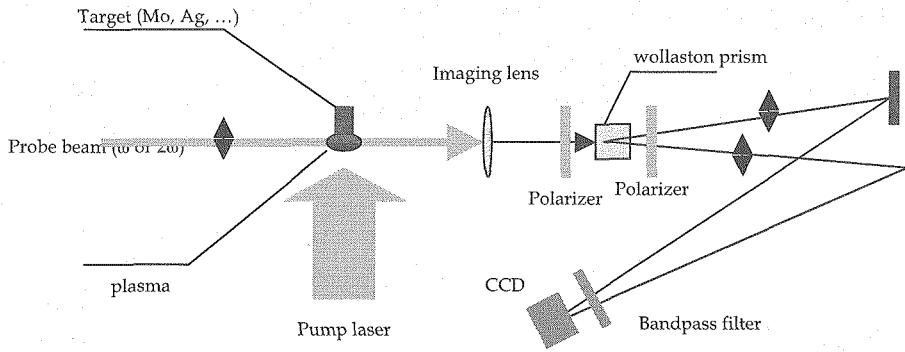


Fig.1 Experimental set-up.

In Fig.2 (a), the plasma image is the same with that pumped by single pulse [See ref. [6]]. The interference pattern shows no unique feature in the density gradient, whereas at  $t = -1000 \sim 1500$  ps, complicated patterns are shown in the interference patterns. The backlighting images at the same timing show the probe beam was guided in the plasma with the length of 1 mm. In order to assure the waveguiding, we changed the thickness of the target from 1 mm to 4.3 mm, and the probe beam was clearly guided in the plasma as shown in Fig. 3.

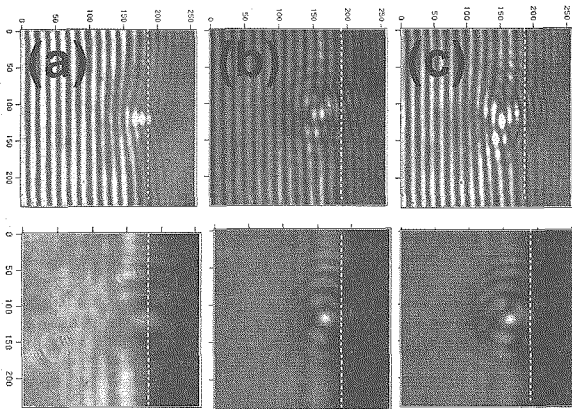


Fig.2 The image of the plasma taken by the interferometer. Upper column is the interference pattern and the lower is the back lighting image.

The data analysis showed that at  $t = +1500$  ps, the density dip is generated: the electron density of the bottom of the dip is  $\sim 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ , and that of the outer region was around  $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . Experimental interference patterns at  $t = +1000$  ps is more complicated than that at  $t = +1500$  ps, which indicates that the density dip may be generated in higher density region by at least one-phase shift, however, the density is higher than the range of the present interferometer.

We estimate the possibility of axial pumping x-ray laser by using this pre-formed plasma. Consider the situation that the circularly polarized axial pumping (heating) laser pulse is injected into the pre-formed plasma. If the intensity of the axial pumping pulse is sufficiently high, the ions increase their ionization stage up to the nickel-like ( $z = 14$ ). Our 1D hydrodynamics simulation (HYADES) shows the average of the charge state of the ions in the pre-formed plasma at the time of  $t = +1500$  ps is  $z \sim 3$ ,

therefore the after the axial pumping pulse, the electron density of the pre-formed plasma is increased up to around  $\sim 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . This electron density is not so high compared with optimum electron density for the nickel-like molybdenum laser ( $> 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ), however is enough to obtain substantial lasing in the nickel-like molybdenum laser at 18.9 nm. In order to obtain the strong lasing in this scheme, the axial pumping pulse should be injected in earlier timing: Indeed hydrodynamics simulation shows that after the second (heating) pulse, plasma expands in the vacuum with keeping its spatial profile, therefore in earlier time region, electron density of the dip is expected much higher than that at  $t = +1500 \text{ ps}$ . This tendency is consistent with present result, at  $t = 1000 \text{ ps}$ , the electron density of the dip is higher than that at  $t = +1500 \text{ ps}$ . In order to use earlier time region, it is required that the precise control of the intensity of the pumping pulses and their homogeneity on the target.

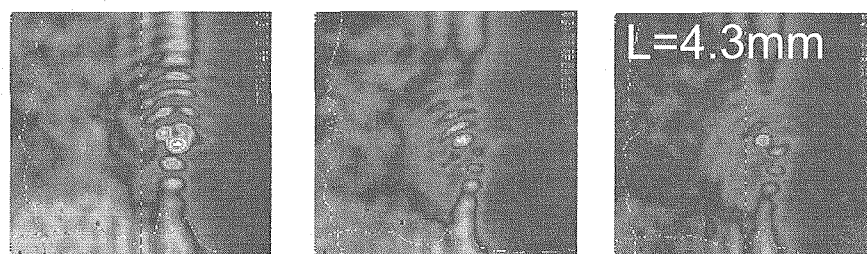


Fig.3 The backlighting images for various plasma lengths. The probe beam is guided in the pre-formed plasma with the plasma length up to 4.3 mm.

In summary, we have demonstrated to generate electron density dip in the pre-formed plasma by use of double pulses irradiation. The plasma parameter at the time of  $t = 1.5 \text{ ns}$  measured from the second pre-pulse timing, electron density and the ionization stage of the ions, indicate that the axial pumping x-ray laser in the nickel-like molybdenum ions is possible.

This work is auspices by Japan Society for the Promotion of Science (JSPS).

## References

1. T. Ozaki, R. A. Ganeev, A. Ishizawa, T. Kanai, and H. Kuroda, Phys. Rev. Lett. 89, 253902 (2002).
2. B. M. Luther et al., Opt. Lett. 30, 165 (2005).
3. C. G. Durfee III and H. M. Milchberg, Phys. Rev. Lett. 71, 2409-2412 (1993).
4. T.R. Clark and H. M. Milchberg, Phys. Rev. Lett. 78, 2373 (1997).
5. T. Hosokai, M. Kando, H. Dewa, H. Kotaki, S. K. N. Hasegawa, K. Nakajima and K. Horioka, Opt. Lett., 25, 10 (2000).
6. R. Tommasini, K. Eidmann, T. Kawachi and E. E. Fill, Phys. Rev. E 69, 066404 (2004).





## 6.10 レーザー/CVDハイブリッド制御法によるアドバンスセラミックス合成

### Advanced ceramics synthesis controlled by the hybrid method of laser/CVD

山内俊彦<sup>a</sup>、中垣圭太<sup>b</sup>、管野善則<sup>b</sup>、三枝幹雄<sup>c</sup>、古川 勝敏<sup>a</sup>、小林清二<sup>d</sup>、山崎和彦<sup>b</sup>

a;日本原子力研究開発機構 (〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4),

b;山梨大学大学院医工総合研究部 (〒400-8511 甲府市武田4丁目3-11)

c;茨城大学工学部 (〒0294-38-5004 日立市中成沢町4丁目12-1)

d;高度情報科学技術研究機構 (〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4)

Toshihiko Yamauchi<sup>a</sup>、Keita Nakagaki<sup>b</sup>、Yoshinori Kanno<sup>b</sup>、Mikio Saigusa<sup>c</sup>、Katsutoshi

Furukawa<sup>a</sup>、Seiji Kobayashi<sup>d</sup>、Kazuhiko Yamasaki<sup>a</sup>

a;Japan Atomic Energy Agency, b;Yamanashi Univ.,c;Ibaraki Univ.,d;RIST

It is very interesting for the synthesis of advanced ceramics to use the method of CVD (chemical vapor deposition) and to apply the laser. The first characteristics of this synthesis is the control of the particles (molecular, atom, cluster etc.) in diffusion layer by laser. The second characteristics is the application of the hybrid-type synthesis using laser, or nucleation on the substrate in CVD. The experiment of laser or CVD and calculation by the code named of PHASE have been started.

**Keywords:** CVD, laser control, ceramics synthesis, diamond, DLC

#### 1. まえがき

アドバンスセラミックスの中でダイヤモンドに関しては、高温・高圧合成法[1]や低圧気相合成法が、原子力への窓やハードコーティングの有用性から注目されている[2,3]。この低圧気相合成法にはおおむねCVD法とイオンビーム・スパッタリング蒸着の2つの流れがあり、我々はより将来性のあるCVD法を採用した。このCVD法による合成研究は複雑でまだ理論的に解明されて無い点も多く、興味深い。更にレーザーをメタンガス等の拡散層に吸収させクラスター、分子及び原子等を活性化させることにより合成をコントロールするアイデアが試されようとしている。また、レーザー合成(PLD—Pulsed Laser Deposition)法による核生成は、CVD法の前処理としての適用も考えている[4]。

理論的な計算は、単位結晶の外側を全て水素原子で終端し Gaussian03 コードでエネルギーの計算を行う手法がある[4]。さらに最近は東大生研で開発された PHASE コードを使うことによりダイオキシンなどの多原子分子よりもっと分子数の多いたんぱく質やSi結晶などの複雑な分子構造の解析が可能となり、我々も利用を進めており、興味ある結果が見られる。

ここでは大学との共同研究で進めて来たCVD装置開発、及びこれまでのレーザー法によるダイヤモンド合成の実験結果について述べる。

#### 2. ダイヤモンドの特性と原子力への応用

ダイヤモンドは天然ダイヤモンド、結晶質ダイヤモンド及び非晶質ダイヤモンド(DLC—Diamond Like Carbon)に分けられる。前者の2つは炭素原子のみからなるダイヤモンド構造の単結晶あるいは多結晶である。一方、DLCは炭素原子( $sp^2$  及び  $sp^3$  結合)と水素原子から成

るアモルファス構造の物質である。これらの最も大きな物理的違いの一つは熱拡散率である。DLCが $2.3\sim 2.4\text{ cm}^2/\text{s}$ に対し天然ダイヤモンドは約10倍も大きな値であり優れた熱特性を持つ。その中間が結晶質ダイヤモンドである。これらは、銅の熱拡散率 $1.1\text{ cm}^2/\text{s}$ の約20倍も大きい。

我々はパルスレーザーによる熱拡散率の測定装置を開発しつつあり、減衰時間から瞬時に局所的な計測ができる特徴を持つ。ところでダイヤモンドは、強い放射線耐性を持つため原子力への利用、広い波長範囲にわたる高い光透過性により紫外線用窓材や核融合のマイクロ波入射用窓材への利用がある。その他、抵抗率などの物性値を表1に示す。

表1. 結晶質と非結晶質ダイヤモンドの物性比較

物性	天然ダイヤモンド	結晶質ダイヤモンド	非晶質ダイヤモンド
ヤング率 (Pa)	$12\times 10^{11}$	$11.46\times 10^{11}$	$6\times 10^{11}$
密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	3.5	3.3	1.8
音速 (m/s)	18,500	18,600	18,300
熱拡散率 ( $\text{cm}^2/\text{s}$ )	22 (II の型)	6~10	2.3~2.4
抵抗率 ( $\Omega\text{-cm}$ )	$10^{13}\sim 10^{16}$	$10^7\sim 10^8$	$10^{11}\sim 10^{12}$
結晶構造	ダイヤモンド	ダイヤモンド	アモルファス
硬度 (K8/mm)	~10000	~10000	3000~5000

### 3. PLD及びCVD実験

#### 3. 1 PLDにおける素過程と因子との関係

PLDにおける素過程とPLD因子を図1に示す。同図の素過程は、まずレーザーをターゲット板に照射することによりカーボンが蒸発しプラズマ化する。プラズマは少し離れた基板に到達し結晶成長する。その成長の制御を基板の温度制御等により行う。即ちレーザーにより基板上の任意の場所に微小な核或は膜を生成する。この核生成基板をCVD装置に移動し成長させての合成の可能性を探る。

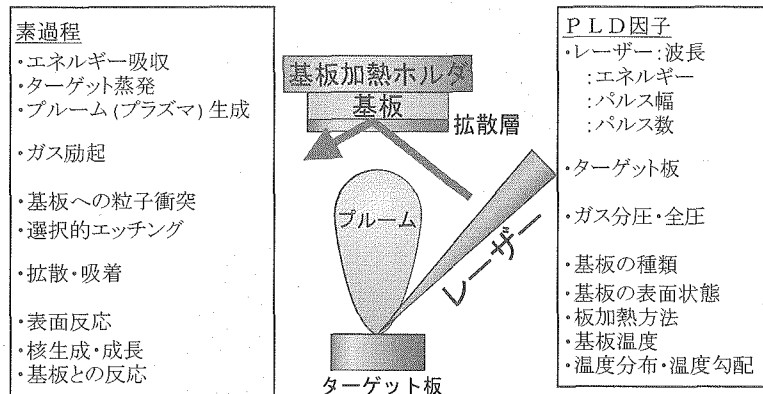


図1 PLDにおける素過程と因子

#### 3. 2 ハイブリッドCVDの素過程と因子との関係

ハイブリッドCVDとは図2に示すように、RF加熱CVDにレーザーを組み合わせ、拡散層にあるラジカル粒子等を制御しようとする新しい試みである。実験ではメタンガス、アルゴンガス、水素ガスなどを用いるため、拡散層の分子を解離し膜の生成或いは結合し、水素分子となり排気除去、或いは水素原子衝突がダイヤモンドになりきれないカーボンを除去し、CH、

$\text{CH}_2$ ,  $\text{CH}_3$  或いは  $\text{CH}_4$  となり排気される。

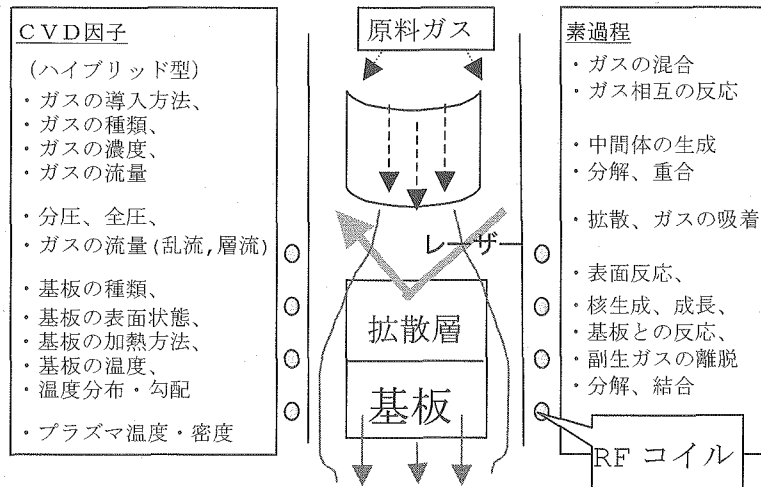


図2 CVDにおける素過程と因子

$\text{CH}_4 + \text{H} \cdot \rightarrow \text{CH}_3 \cdot + \text{H}_2$ 、水素分子が生成・排気除去される。そしてメタンラジカルがダイヤモンドの水素が抜けた後に結合しようとする計算結果を示す (Gaussian03 のコード使用: 詳細は別の論文に投稿予定)。

図3はダイヤモンド表面の水素原子とメタンガスの水素原子が、拡散層にある水素ラジカルにそれぞれ引き抜かれ( $\text{XH} + \cdot \text{H} \rightarrow \text{X} \cdot + \text{H}_2$  (Xはダイヤモンド結晶)及び

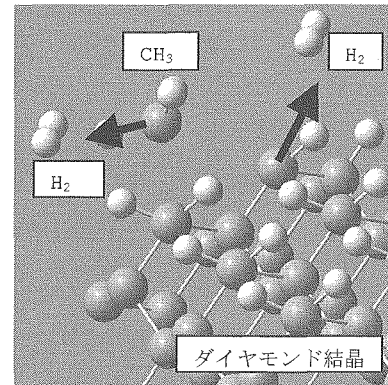


図3  $\text{CH}_3$  ラジカルの生成および結晶表面水素の引き抜き反応

#### 4. ダイヤモンド薄膜の熱拡散率

表1に示したようにダイヤモンドを3種に区別した場合、熱拡散率で区別できる。天然ダイヤモンドと非晶質ダイヤモンドでは10倍の違いがある。そこで我々はレーザー照射法による熱拡散率の実験値を求めるための条件を明確にしつつある。

シリコン基板上にダイヤモンド薄膜を合成した二層材の場合、全体の熱拡散率を求めると、

$$D = (c_1 D_1 d_1 + c_2 D_2 d_2) / (c_1 d_1 + c_2 d_2) = (D_1 d_1 + D_2 d_2) / (d_1 + d_2) \quad (1)$$

$$d_{1,2} < (\sqrt{2 D / \omega})^{0.5} \quad (2)$$

となる。ここで、 $c$ は熱容量、 $d$ は膜厚、及び1, 2はそれぞれダイヤモンド、シリコンの物理定数を示す。(1)式の2番目から3番目への近似は、熱容量が物質によらず $\sim 2 \text{ J cm}^{-3} \text{ K}^{-1}$ との仮定に基づく。実験ではレーザー熱の減衰時間 $t$ を $d = \sqrt{(D \cdot t)}$ に代入することにより $D$ が決まり、 $D_2$ は既知であるから(1)式により $D_1$ が求まる。

#### 5. 実験結果

我々のCVD装置は全くハンドメイドである。ガスボンベからチャンバー内(の石英管から)に噴射し、RFアンテナコイル(4ターン)によりガ

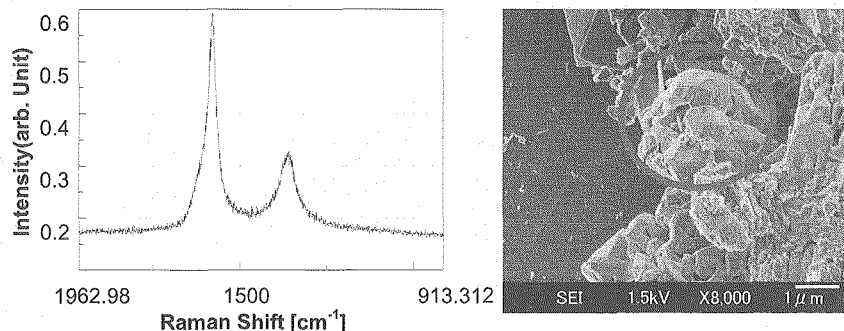


図4(a) KrF エキシマレーザー照射によるターゲット表面とラマンスペクトル信号

ス加熱されプラズマ化する。このRFコイルの周波数は27.12 MHz、最大出力は1 kWである。このプラズマはチャンバー内の板上辺で球形をしている。ここを通過したガスは、ロータリーポンプ及びターボポンプで排気される。

一方、これまでのレーザー照射によるダイヤモンド合成実験結果を図4(a)及び(b)に示す。ここでは、ターゲット基板のグラファイトがDLCに変わっている結果が得られた(PLDの結果は別の論文に投稿予定)。同図(a)は紫外レーザー光(KrFエキシマレーザー、248 nm,  $3.2 \times 10^3 \text{ J/m}^2$ , 250 パルス)を照射した場合であり、写真からダイヤモンドらしきものが生成しているといえる。ラマン散乱の測定結果では、ダイヤモンド下のグラファイトターゲットからのラマン散乱信号も同時に観測されている為に、 $1333 \text{ cm}^{-1}$ と $1550 \text{ cm}^{-1}$ の2本のスペクトル線が観測されたと考えられる。一方、同図(b)はルビーレーザー光( $694.3 \text{ nm}$ ,  $2.8 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ , 500 パルス)をパイログラファイトターゲットに照射した所のラマン散乱測定結果と表面の写真である。同図からターゲットがDLCに変わっていると判断できる。これは水素原子雰囲気中の結果である。

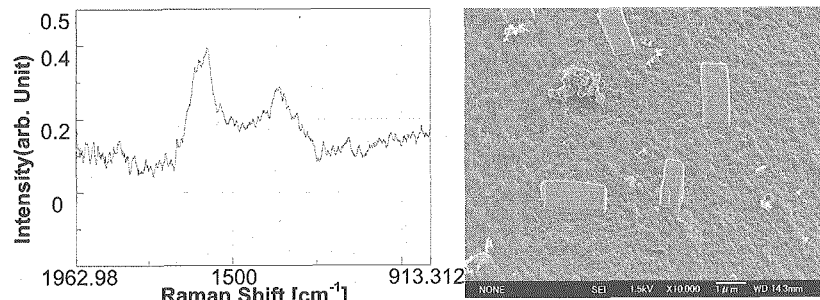


図4(b) PLDによるターゲット表面とラマン散乱スペクトル(Ruby レーザー)

## 6. まとめ

セラミックス合成研究、特にダイヤモンド合成に注目し、分子や原子等のレーザー制御による効率的な合成研究を開始した。これまで予定通りハンドメイドRF加熱CVD装置がほぼ完成した。これは大学(山梨大学及び茨城大学)との共同研究の下、共同で組み立てた。他方、レーザーによる合成研究は、同様の協力により研究が進展した。

レーザーをパイログラファイトターゲットに照射したところ、ダイヤモンド或いはDLCがうまく合成できていることが分かった。今後、ターゲット或いは基板にダイヤモンドの核を規則的に合成し、CVD実験の基板として利用を進める計画である。

**謝辞** CVD用部品提供などに関して、多くの人々の協力があり感謝している。特に元先端基礎研究センター荒殿氏及び元JFT2M試験室長山本氏に感謝する。また、RF電源に関して光量子利用研究木村ユニット長の協力に対し感謝する。

## 参考文献

- [1] F.P. Bundy, H.P. Bovenkerk, H.T. Hall, H.M. Strong, R.H. Wentorf Nature **184** (1959) 1094.
- [2] W.G. Eversole; U.S. Patent **3030187 3030188** (1958).
- [3] B.V. Derjaguin et al; J. Cryst. Growth **2** (1968) 380.
- [4] 山内、管野、高島; 特願 **2006-31049** (2006).
- [5] 川原、津川、星野、大泊; 第5回ダイヤモンドシンポジウム講演予稿集 (1991).22.



## 6.11 Nuclear parity violation in photo-nuclear resonance scattering at SPring-8

K. Kawase, H. Akimune<sup>a</sup>, M. Fujiwara, H. Hashimoto, T. Hayakawa<sup>b</sup>, M. Itoh, M. Itou<sup>c</sup>, T. Kodo<sup>c</sup>, K. Nakanishi, H. Ohkuma<sup>c</sup>, S. Okumura, Y. Sakurai<sup>c</sup>, T. Shizuma<sup>b</sup>, S. Suzuki<sup>c</sup>, K. Tamura<sup>c</sup>, H. Toyokawa<sup>c</sup>, M. Uchida<sup>d</sup>

*Reserch Center for Nuclear Physics, Osaka University*

<sup>a</sup>*Konan University*

<sup>b</sup>*Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency*

<sup>c</sup>*Japan Synchrotron Radiation Institute*

<sup>d</sup>*Tokyo Institute of Technology*

**Keywords:** Parity Nonconservation, Nuclear Resonance Fluorescence, Synchrotron radiation

### Abstract

We performed the asymmetry measurement of the nuclear resonance fluorescence(NRF) with circularly polarized photons to study nuclear parity nonconservation(PNC). The NRF asymmetry for left- and right- circularly polarized  $\gamma$ -rays is caused by weak mixing between a parity doublet, which is a set of two states which are energetically closed and have same spin and opposite parity. In this study, we measured PNC asymmetry in exciting the first excited  $\frac{1}{2}^-$  state in  $^{19}\text{F}$  by using high intensity elliptically polarized synchrotron radiations generated by elliptical multipole wiggler at SPring-8.

## 1 Introduction

Nuclear parity violation is caused by the weak interactions on the nucleon-nucleon (NN) interactions in nuclei. In the picture of meson exchange discription, one meson-nucleon vertex is coupled to the other nucleon mediated by weak interaction. Parity doublets in nuclei are mixed with each other by this PNC NN interaction [1]. In the picture of the first order perturbation, the mixed state  $|\tilde{\phi}_\pi\rangle$  is written as

$$|\tilde{\phi}_\pi\rangle = |\phi_\pi\rangle + \frac{\langle\phi_{-\pi}|V_{PNC}|\phi_\pi\rangle}{E_\pi - E_{-\pi}}|\phi_{-\pi}\rangle, \quad (1)$$

where  $|\phi_\pi\rangle$  is parity pure state,  $E_\pi$  is the excitation energy of the level,  $\pi$  denotes the parity of the level, and  $V_{PNC}$  is the PNC-NN potential derived from the PNC interaction.

In case of  $^{19}\text{F}$ , the set of the ground ( $J^\pi = \frac{1}{2}^+$ ) and 110 keV ( $J^\pi = \frac{1}{2}^-$ ) excited states is a parity doublet. Hence they are written as [2]

$$\begin{aligned} |\text{g. s.}\rangle &= |+\rangle - \epsilon|+\rangle, \\ |110\rangle &= |-\rangle + \epsilon|-\rangle, \end{aligned} \quad (2)$$

where

$$\epsilon = \frac{\langle-|V_{PNC}|+\rangle}{(110 \text{ keV})}. \quad (3)$$

In our new method, the parity mixing is studied by NRF using a circularly polarized photon beam. The NRF with circularly polarized photons to the parity doublet nuclei drives scattering

asymmetry  $A_\gamma$  written by the cross sections  $\sigma_\pm$  for each photon helicity as

$$A_\gamma = \frac{\sigma_+ - \sigma_-}{\sigma_+ + \sigma_-}. \quad (4)$$

As a result of the calculations of electromagnetic transitions for NRF of  $^{19}\text{F}$  [3],

$$A_\gamma(\theta) = (1 + \cos \theta) \langle A_\gamma \rangle, \quad (5)$$

with

$$\langle A_\gamma \rangle = 2\epsilon \operatorname{Re} \left( \frac{\mu}{\langle E1 \rangle} \right), \quad (6)$$

where  $\theta$  is scattering angle,  $\mu$  is the magnetic moment of the ground state of  $^{19}\text{F}$ , and  $\langle E1 \rangle$  is the  $E1$  transition matrix element.

## 2 experiment

The experiment has been carried out using hard x-ray synchrotron radiations (SR) from the elliptical multipole wiggler (EMPW) at SPring-8 [4]. Note that "elliptically polarized photon" means partial-circularly polarized photons. Photon intensity is about  $10^{12}$  (photons/sec 0.1% b.w.) at 100 keV region. EMPW consists of three magnetic arrays. Central array produces vertical magnetic fields for storage electrons as a normal wiggler and both side arrays produce horizontal ones. The side arrays move along the beam axis. Photon polarization is changed by sliding the side arrays (Fig. 1) [5, 6, 7].

In the NRF experiment on  $^{19}\text{F}$ , photons produced from EMPW were monochromated to 109.89 keV by a Si(400) monochromator and bombarded to a PTFE target ( $\text{C}_2\text{F}_2$ , 3 mm thickness). Scattered photons via the NRF and Compton scattering processes were detected by 19-pixel Ge detector [8]. The schematic layout of the experimental setup is shown in Fig. 2.

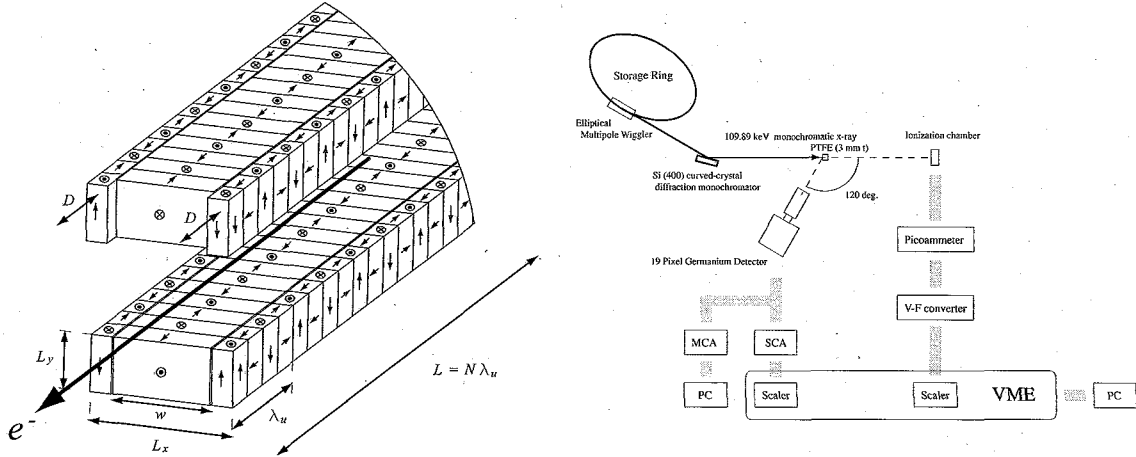


Figure 1: Schematic diagram of the EMPW. Figure 2: Schematic layout of the detector setup.

Counting rate is estimated much high since Compton scattering events from the target are dominant detections. Then multichannel analyzers (MCA) are not suitable because of their dead time. Therefore we chose single channel analyzers (SCA). For the NRF peak region we set two SCA gates. The one was a narrow gate. The other was a wide gate (Fig. 3). Both SCA signals were counted by VME scalars. To reduce the counts of Compton background relative to NRF, we put absorbers of Au and W with a thickness of  $100 \mu\text{m}$  in front of the detector. Additionally, we took MCA data of sample detectors to monitor the experimental conditions. Typical detection spectrum taken during the experiment is shown in Fig. 4. In order to normalize the NRF events,

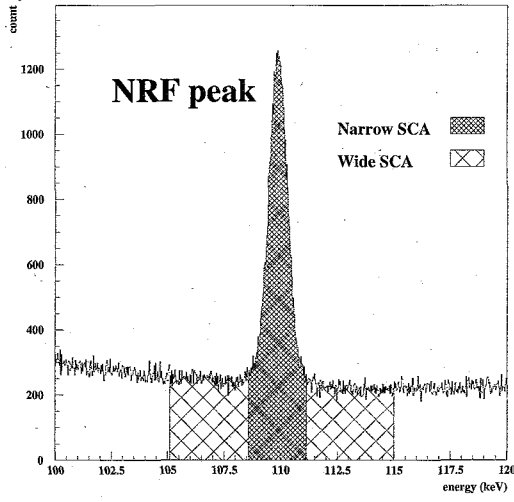


Figure 3: NRF peak spectrum and SCA gate setting.

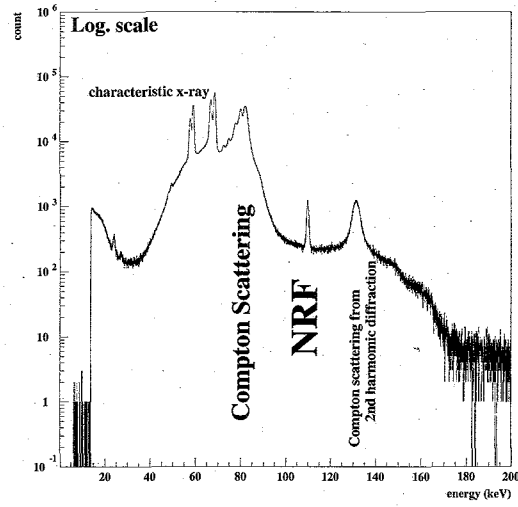


Figure 4: Typical detection spectrum.

we also measured the incident photon flux by using an ionization chamber (IC). The current signal of IC was converted to the frequency and counted by a scaler.

About five minutes were needed for changing the photon polarization by sliding the side magnetic arrays. Thus, we took each polarization data for NRF countings with turning the polarity about every three hours.

### 3 Analyses and Preliminary results

Since the counting data with narrow and wide gate SCA's contained NRF events and backgrounds (Fig. 3), we extracted the net counts of NRF events. The background spectrum was approximately flat shape. The net counts of NRF  $N_{net}$  were calculated by using the following equation,

$$N_{net} = N_{narrow} - \frac{N_{wide} - N_{narrow}}{w_{wide} - w_{narrow}} w_{narrow}, \quad (7)$$

where  $N_{narrow}$  and  $N_{wide}$  is the SCA counts of narrow gate and wide gate, and  $w_{narrow}$  and  $w_{wide}$  is the width of narrow and wide SCA gate, respectively.

By taking into account of the polarization degree of incident photons the NRF asymmetry is written as

$$A_\gamma = 2 \times \left[ \frac{\sigma_+ + \sigma_-}{\sigma_+ - \sigma_-} (p_+ - p_-) - (p_+ + p_-) \right]^{-1}, \quad (8)$$

where  $\sigma_\pm$  is the NRF cross section for photons with left-handed and right-handed each polarization, and  $p_\pm$  is the polarization degree of incident photons. The cross section is written by using the total NRF net counts for each polarization  $N_\pm$  and the total count of IC data  $I_\pm$  as

$$\sigma_\pm = \alpha \frac{N_\pm}{I_\pm}, \quad (9)$$

where the constant  $\alpha$  contains common parameter, for instance, the target number, the solid angle of the detector, and they are not sensitive to the asymmetry. The polarization degrees for each polarization was measured before NRF counting experiment. The results are  $|p_+| = 0.338 \pm 0.005$  and  $|p_-| = 0.324 \pm 0.003$  [9].

As a result of preliminary analyses, we got  $A_\gamma = (-1.07 \pm 0.50) \times 10^{-3}$ . At present, the main component of error is statistical one ( $\sim 70\%$ ). The remainder is the error from the fitting for the correction of long-time dependence. This correction is not depend on each photon polarization. The value of the asymmetry on this work is still by one order larger than the results of the two previous  $^{22}\text{Ne}(\vec{p}, \alpha)^{19}\text{F}^*$  experiments [2, 10].

## 4 Summary

We performed a new method for PNC study by using NRF with circularly polarized photons. As mentioned above, the result now do not consist to the other experiments. We need more to take account of other factors causing this large asymmetry, for instance, photon beam instability, detector instability, geometrical asymmetry. To obtain the acceptable result, the data analyses are in progress.

## References

- [1] E. G. Adelberger and W. C. Haxton, *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.* 35(1985), 501.
- [2] E. G. Adelberger, H. E. Swanson, M. D. Cooper, J. W. Tape, and T. A. Trainor *Phys. Rev. Lett.* 34(1975), 402.
- [3] A. I. Titov, M. Fujiwara, and K. Kawase, *J. Phys. G* 32(2006), 1097.
- [4] Y. Sakurai, H. Yamaoka, H. Kitamura, X. M. Maréchal, K. Ohtomo, T. Mochizuki, Y. Kashihara, T. Harami, Y. Tanaka, H. Kawata, N. Shiotani, N. Sakai, *Rev. Sci. Instrum.* 66(1995), 1774.
- [5] H. Kitamura and S. Yamamoto, *Rev. Sci. Instrum.* 63(1992), 1104.
- [6] X. M. Maréchal, T. Tanaka, and H. Kitamra, *Rev. Sci. Instrum.* 66(1995), 1937.
- [7] X. M. Maréchal, T. Hara, T. Tanabe, T. Tanaka, and H. Kitamra, *J. Synchrotron Rad.* 5(1998), 431.
- [8] H. Ohyanagi, M. Martini, M. Saito, *Nucl. Instr. and Meth. A* 403(1998), 58.
- [9] K. Kawase, H. Akimune, M. Fujiwara, H. Hashimoto, T. Hayakawa, M. Itoh, M. Itou, T. Kudo, K. Nakanishi, H. Ohkuma, S. Okumura, Y. Sakurai, T. Shizuma, S. Suzuki, K. Tamura, H. Toyokawa, M. Uchida, *SPring-8 User Exp. Rep.* 15(2005), 62.
- [10] K. Elsener, W. Grüebler, V. König, P. A. Schmelzbach, J. Ulbricht, D. Singy, Ch. Forestner, W. Z. Zhang, and B. Vuaridel *Phys. Rev. Lett.* 52(1984), 1476.





## 6.12 透明素材のレーザーによる電子励起過程の第一原理計算

### First-principle calculation for electron excitation of transparent material under the intense laser field

乙部 智仁、矢花一浩<sup>A</sup>、岩田潤一<sup>A</sup>、中務孝<sup>A</sup>、G. F. Bertsch<sup>B</sup>

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

光量子シミュレーション研究グループ

<sup>A</sup>筑波大学 計算科学研究センター

<sup>B</sup>ワシントン大学

Tomohito OTOBE, Kazuhiro YABANA<sup>A</sup>, Junichi IWATA<sup>A</sup>, Takashi NAKATSUKASA<sup>A</sup>, and G. F. Bertsch<sup>B</sup>

Photon simulation group, Quantum Beam Science Directorate,  
Japan Atomic Energy Agency

<sup>A</sup>Center for Computational science, University of Tsukuba

<sup>B</sup>Washington University

Electron excitation in the bulk system by the intense laser field is the key process to understand the interaction between laser and the materials. We calculate the electron dynamics in the diamond employing the Time-Dependent Density Functional Theory (TD-DFT) with real-space and real-time method. We found that breakdown of dielectric occurs under the intense laser field and the diamond behaves like a metal. We also found the plasma oscillation of excited electron after the laser pulse.

**Keywords: Laser, Ultra short pulse, High intensity, Crystal, First-principle calculation,**

#### 1. はじめに

現在、レーザーによる表面の非熱加工、透明素材の誘電崩壊等、固体とレーザーの相互作用を利用した物質制御及び加工技術の発展は目覚ましいものがある。しかし、固体中電子の励起過程の理論的研究は Keldysh によって提案された解析的モデル[1]でしか行われてこなかった。Keldysh の方法ではバンドギャップのみが意味を持つモデルであり、結晶構造、バンド構造、電子励起によるバンドの変化等が考慮されていない。

本研究では、多電子系ダイナミクスを記述する第一原理的手法である時間依存密度汎関数法[2] (TD-DFT)を用いて大強度レーザー中にあるダイヤモンドの電子励起過程を記述および理解することを目的としている。

#### 2. 計算方法

ダイヤモンドは透明である為、集光点を固体内部にすることが可能である。よって計算は結晶中の1単位胞について計算すればよい。計算はブロッホの定理を用いて行うため、空間的な周期性を持たないレーザー場を電場として扱うことはできない。固体電子のダイナミクスを記述する為に外場及び電子移動に

伴う内部電場をベクトルポテンシャルとして扱い、Kohn-Sham 方程式

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\vec{r}, t)}{\partial t} = \left[ -\frac{\hbar^2}{2m} \left( \nabla - \frac{e}{c} \vec{A}_{laser} - \frac{e}{c} \vec{A}_{induced} \right)^2 + V[\rho(\vec{r}, t)] \right] \psi(\vec{r}, t)$$

を解く。  $\vec{A}_{laser}$  はレーザーによるベクトルポテンシャル、  $\vec{A}_{induced}$  は外場により起こる電子移動に起因する自己場である。  $V[\rho(\vec{r}, t)]$  はイオンからのクーロンポテンシャル、ハートリーポテンシャル、相関交換ポテンシャルから成る平均場である。  $\rho(\vec{r}, t)$  は電子密度である。実際はこの式をブロッホの定理を使って計算した。自己場は

によって計算される。式の詳細については参考文献[3]を参照していただきたい。この式を空間的に離散化し、高次差分法を用いることで基底関数を用いない実空間法による計算を行った。時間発展についてはテイラー展開の4次

$$\psi(\vec{r}, t + \delta t) = \sum_{n=1}^4 \frac{(-i)^n}{n!} H_{KS}^n[\rho(\vec{r}, t)] \psi(\vec{r}, t)$$

で近似した。

### 3. 計算結果

図1及び図2にピーク強度  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 、 $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  のレーザー中にあるダイヤモンド結晶中の電場を示した。レーザーのパルス幅は 8fs とした。実線で示したものが実際結晶中にある電場、外場であるレーザー電場を破線でしめした。レーザーの強度が弱いとき ( $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ) 結晶電子の応答は外場に追従している。これはダイヤモンドの透明性を示すもので、励起電子が少なく誘電崩壊を起こしていないことが分かる。一方電場が強いつき ( $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ ) 内部電場は次第に外場に追従せず自発的な振動を始める。これは電子がエネルギーを吸収することで誘電率が崩壊し、金属的になっていることが分かる。また図2ではレーザー通過後も電子が振動し、内部電場が発生しているのが分かる。

図3にレーザー強

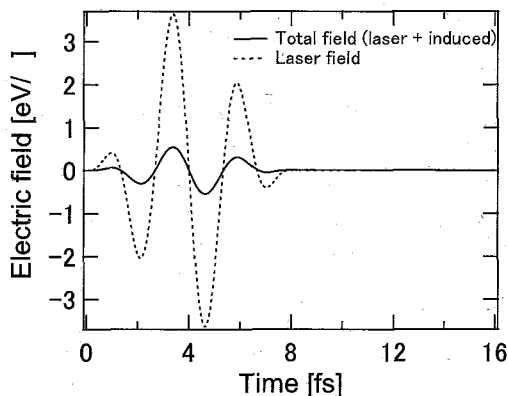


図1 レーザー電場（破線）と実際に結晶内部の電場（実線）。パルス幅は 8fs、ピーク強度は  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$

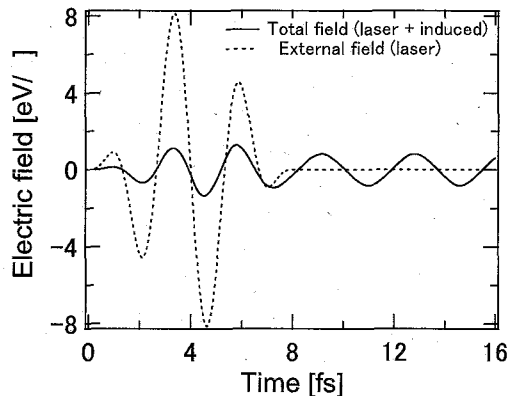


図2 レーザー電場（破線）と実際に結晶内部の電場（実線）。パルス幅は 8fs、ピーク強度は  $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

度  $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$  の時の励起電子数を示す。励起電子数は

$$\sum_{n=occ} occ(n, k) \left| \langle \psi_{n,k}(\vec{r}, t) | \phi_{n',k}(\vec{r}) \rangle \right|^2$$

で定義した。

励起電子数の大きな振動は電子励起と共にベクトルポテンシャルによるブロッホ関数の位相がずれることを含んでいるため、励起電子数の振動の最小値が物理的な意味を持っている。この図から電子は 1 単位胞当たり約 0.25 個励起状態にあることが分かる。

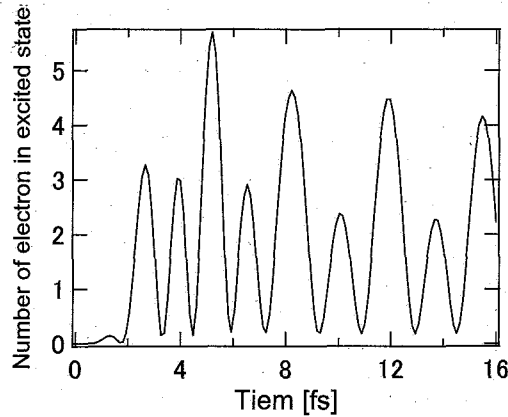


図 2 1 単位胞あたりの励起電子数の時間変化。ピーク強度は  $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$

図2の 8fs 以降の振動からその振動数を計算すると約 1.18eV となる。この振動数を一般的なプラズマ振動の式

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{4\pi m \epsilon}}$$

に当てはめてみる。このとき  $\epsilon$  とはダイヤモンドの誘電率、N は電子密度である。この式から導かれる電子数は約 0.256 個となり図2での励起電子数にほぼ一致する。この結果はレーザーによる誘電崩壊後の固体中励起電子はダイヤモンドの中でプラズマ振動する自由電子に等しいことが分かった。

#### 4. まとめ

本研究において、固体とレーザーの相互作用を初めて第一原理的に計算した。電子励起によるダイヤモンドの誘電崩壊過程とそれに伴う励起電子のプラズマ振動が起きることが分かった。これからさらに研究を進めていき、電子励起過程とそれによる固体の制御・加工の可能性を探っていく予定である。

#### 参考文献

- [1] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965)
- [2] E. Runge, E. K. U. Gross, Phys. Rev. Lett. **52** (1984) 997
- [3] G. F. Bertsch, J.-I. Iwata, Angel Rubio, and K. Yabana, Phys. Rev. B **62** (2000) 7998



## 6.13 言語情報技術を活用し技術資料・論文から データベースを構築するソフトウェア開発

Development of databases from scientific and technological  
articles using language processing technology

佐々木明<sup>1</sup>、上島豊<sup>1\*</sup>、山極満<sup>1</sup>、村田真樹<sup>2</sup>、白土保<sup>2</sup>、井佐原均<sup>2</sup>

原子力機構・量子ビーム応用研究部門・光量子シミュレーション研究グループ<sup>1</sup>

情報通信研究機構・知識創成コミュニケーション研究センター<sup>2</sup>

A. Sasaki<sup>1</sup>, Y. Ueshima<sup>1\*</sup>, M. Yamagiwa<sup>1</sup>, M. Murata<sup>2</sup>, T. Shirado<sup>2</sup>, H. Isahara<sup>2</sup>

Japan Atomic Energy Research Agency<sup>1</sup>

The National Institute of Information and Communications Technology<sup>2</sup>

We present a new computer program which recognizes expressions of atomic and molecular states in scientific articles. It is shown that the program can be applied to the automatic collection of atomic data. Concept of another software to collect and analyze information from academic meetings to match seeds and needs between basic science and application of is also discussed.

Keywords: atomic data base, data mining, natural language processing

### 1. はじめに

現在、基礎研究の成果の産業・医療分野への応用、応用研究において、基礎研究の成果の活用を効率的に進めることが重要と考えられている。原子分子データは重要な基礎データの一つであるが、多くの分野で利用されるようになるためには、科学論文の形で発表されるデータを効率的に収集、データベース化することが重要と考えられている。本報告では、原子分子データの自動的な収集の要素技術の研究について述べる。また、基礎研究の応用のニーズ・シーズの効率的な発見を目指した学会情報の収集、解析ソフトウェアの研究についても述べる。

### 2. 論文中の原子分子データを特徴付ける表現の認識、抽出の研究

原子分子データの収集の対象になる科学論文中には、必ず原子分子の状態の情報が記述されているはずであり、それを認識することはデータ収集の自動化、データベースの自動的な構築のために役立つと期待される[1]。

論文の中では、原子分子の状態の情報は決まった形式で記述されている。例えば原子・イオン種は、Hydrogen、H、He、H-like Al、Al<sup>12+</sup>、Al XIII などのように記述される。すなわち、記号（元素記号やローマ数字の並び）や上下付文字を使用することや、同じものを表現するために複数の

記述方法があるなどのため、しばしば専門家以外の人にとっては理解が難しいものであるが、電子文書中では、記述の規則を定義することができる。

例えば、 $1s^2 2s^2 2p^6$  のような電子配置を表す文字列は、

「数字あってもよい s/p/d/f/g 上下付文字あってもよい」の1回以上の連続 (1)

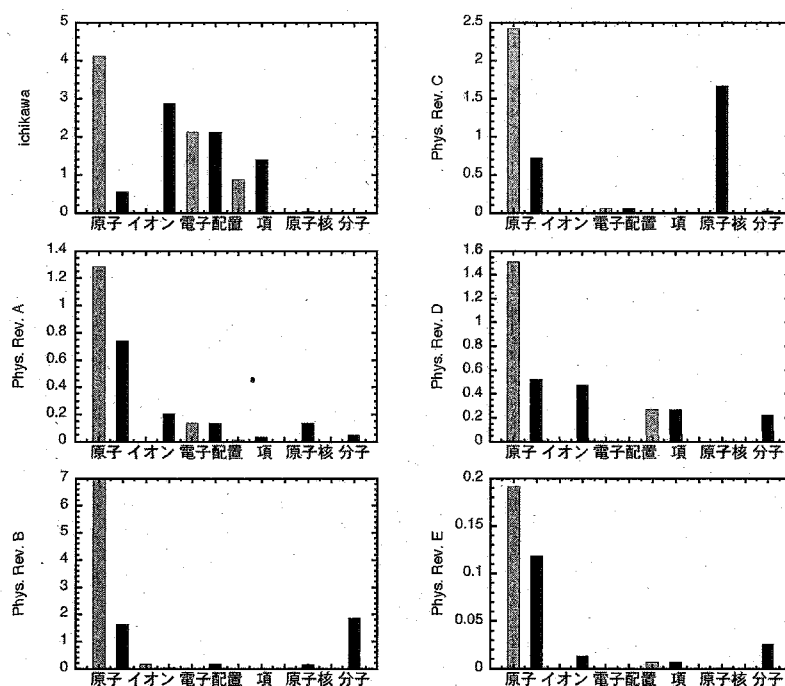
と表すことができ、電子文書での記述は、perl 言語などの正規表現で処理することができる。

本研究では、まず原子・イオン種、電子配置、スペクトル項の表現の規則を定義し、市川によって収集された原子分子データに関する論文 [2] と、Phys. Rev. A-E 誌の一号分の論文のアブストラクトからの表現の認識を試みたところ、論文中に出現する原子・イオン種の表現の 98% を認識できることが分かった。さらに、元素記号を含む表現のもつ詳細な特徴、すなわち  $S^{10+}$  のように右肩字を持つ表現はイオン種、 $^{32}S$  のように左肩字を持つ表現は核種、 $H_2SO_4$  のように原子の表現が連続するものは分子の表現であることに注目し、原子、イオン種、電子配置、スペクトル項、核種、分子への分類を行い、各雑誌での出現数を比較した結果を図 1 に示す。

初期の 3 分類の結果は、原子の表現が各雑誌にまんべんなく出現することを示すのに対し、6 分類の結果は、原子分子データを含む論文はイオン種、電子配置、スペクトル項の表現を多く含むことを示すと同時に、凝縮系物理を扱う Phys. Rev. B 誌は分子の表現を、原子核物理を扱う Phys. Rev. C 誌は原子核の表現を多く含むことを示し、分野の特徴が明瞭になることが分かった。

原子分子データを初めとする専門分野の論文には、分野特有の用語が頻繁に現れると考えられる。従来、物理学事典のような専門用語辞書の作成は人手によって行われていたが、文書中の出現頻度の統計的な分析による自動的な抽出が試みられている。専門用語の多くは合成語であり、いろいろな語と結びついて合成語を作る語がその分野で重要な語であるという考えで開発された termex ソフトウェア [3] を、原子分子の電子衝突による電離、励起過程のデータを含む論文に適用したところ、ionization、excitation、ion などの単語に加えて、electron impact、cross section のような合成語とさらにそれが他の語と結びついた ionization cross section、electron impact ionization のような連語が抽出された。

このようにして抽出された原子分子の状態の表現と、専門用語が、論文のアブストラクト中にある一定個数以上含まれることを判断基準とすると、Phys. Rev. A 誌の 42-61 巻中の原子分子データを含む論文の 90% を抽出できる（再現率 90%）ことが分かった。ただし、これだけの情報では抽出された論文の確かにデータが含まれる論文の割合（適合率）が 50% 程度以下と不十分であり、現在論文に付与されている分類番号のような詳しい書誌情報を利用したり、機械学習アルゴリズムを内容の分析に適用したテキスト分類技術を用いた精度の向上を進めている [4]。



(図1) 原子分子の状態の情報を3分類および6分類して抽出した場合の、原子分子データを含む論文および Phys. Rev. A-E 各誌における出現数の比較

### 3. 学会情報の収集、解析ソフトウェア (i 予稿集) の研究

科学研究やビジネスを効率的に進めるためには、正確な情報をいかに速く集めるかが重要である。学会は、成果発表、討論、情報収集などの科学研究のための重要な機会であるが、大きな学会では数千件の発表がある上に、現在では日本国内に 1000 以上の学会があると言われている。異分野から新しい科学やビジネスのニーズ、シーズを相互に見つけることの重要性が言われ、このような多くの情報源を活用することが重要になっている。現在では、学会のプログラムなどの情報はインターネット上に公開されており、コンピュータを使った自動的な情報収集や、人間による分析を支援するソフトウェアの可能性が考えられている。

多くの学会では、今も紙に印刷したプログラムや予稿集が使われている。紙の予稿集は携帯するにも検索するにも不便であるが、データの量としては 1000 件の講演に対して 1MB 程度と今日の基準ではわずかであることから、適切な可視化インターフェースや、検索分析機能を提供するソフトウェアが、実現可能かつ有用ではないかと考えた。XML 技術を使うことによって、ひとつの学会の時系列の複数の会合のデータや、複数の学会のデータを、コンピュータによって一括して処理が可能な形式で収集することができる。

「i 予稿集」は、このような学会のデータを、画面上で検索、編集、一覧表示するソフトウェアである。図2は開発中のソフトウェアの表示画面の例を示す。注目した研究者がどのような課題

に関心を持っているか（興味や関心の調査）、ある課題の研究がどのように進展しているか（研究動向の調査）、研究者がどのようなグループを構成しているか（利害関係の調査）を、学会に参加した研究者がその場で判断できるようにし、学会、イベントへの参加を支援する。

「i 予稿集」を実用化するためには、多くの学会のデータをリアルタイムで収集することが必要である。そのためには、対象の学会、Web サイトを発見することが必要である。また、それぞれの学会の情報は異なる HTML フォーマットで記述され、解釈の規則を人手で逐一決めることが困難であることから、現在機械学習によるデータ抽出手法について検討を行っている。

番号	発刊	時間	タイトル	著者	所属
A01a	09:00		相対論と高エネルギー天体現象	長池重博	京大基研
A02a	09:30		ブラックホールの影の観測と強重力場での一般相対論的効果	高橋秀太, 大須賀健, 加藤...	京大基研, 立教大
A03a	09:45		ブラックホール磁気圏とブラックホール回転エネルギー抽出機構	高橋真樹	慶知教育大
A04a	10:00		高エネルギー宇宙線	森正樹	東大宇宙線研
A05a	10:30		CALETによる高エネルギー宇宙線電子、ガンマ線観測計画	吉田健二, 鳥居祥二, 梶野...	神奈川大工, ISAS/JAXA, 芝工大
A06a	10:45		超新星からの高エネルギーニュートリノ	安藤真一郎, John F. Bea...	東大理, オハイオ州立大物理天
A07a	13:00		重力崩壊とブラックホール形成	柴田大	東大総合文化
A08a	13:30		非対称超新星爆発と相対論	岡武蔵, 山田章一, 佐藤...	東大理, 早稲田理工
A09a	13:45		重力波検出器 (TAMA300) の現状	辰巳大輔, 他 TAMA colla...	国立天文台, 京大基研, 高工研
A10a	14:00		相対論と観測的宇宙論	松浦隆彦	名古屋大
A11a	14:30		Sloan Digital Sky Surveyにおける重力レンズクエーサーの探索	稲田直久, 大葉真実, Joe ...	東大天文センター, プリンストン
A12a	14:45		一般相対論と超高精度位置天文学	福島豊志夫	国立天文台・天文情報公研セン
A13c			磁場による中性子星の固有速度	澤井秀樹, 岡武蔵, 山田章...	早大理工, 東大理
A14c			吸込みのorion-neutron star wind	伊藤裕貴, 山田章一, 長瀬...	早稲田大学, 京都大学

(図2) 開発中の i 予稿集ソフトウェアの検索出力表示例

#### 4. まとめ

原子分子の状態の情報の抽出の研究において、言語処理技術に原子分子物理学の知識を組み合わせ、専門分野の研究開発に役立つ情報ツールが開発出来ることを示した。今回示した手法は、物理シミュレーションで原子分子データを扱う際にも役立つと考えられる。i 予稿集の構想においても、基礎研究、産業応用を進める上での情報処理、言語処理技術の役割について検討した。

謝辞 本研究を行うにあたり受けた協力について、核融合科学研究所加藤隆子教授、奈良女子大学城和貴教授、国際基督教大学 Lukas Pichl 講師を初めとする皆様に感謝します。本研究は一部科学研究費基盤研究 C「原子分子論文抄録読解データベースの研究」の支援を受けて行われた。

#### 参考文献

- [1] 佐々木明他, プラズマ・核融合研究, 81, 717-722 (2005).
- [2] Y. Itikawa, ADNDT 80, 117 (2002).
- [3] <http://gensen.dl.itc.u-tokyo.ac.jp/termextract.html>.
- [4] A. Sasaki, et al., Proc. ITC-14 & ICAMDATA 2004, JPFR series, vol. 7 pp. 348 (2006).



## 6.14 Simultaneous imaging with a proton beam and an x-ray driven by a fs intense laser

Satoshi ORIMO, Akifumi YOGO, Koichi OGURA, Akito SAGISAKA, Zhong LI,

Alexander Pirozhkov, Michiaki MORI, Hiroyuki DAIDO, Shu NAKAMURA<sup>A</sup>,

Toshiyuki SHIRAI<sup>A</sup>, Yoshihisa IWASHITA<sup>A</sup>, Akira NODA<sup>A</sup>, Yuji OISHI<sup>B</sup>, Koshichi NEMOTO<sup>B</sup>,

Il-Woo CHOI<sup>C</sup>, Jae-Hee SUNG<sup>C</sup>, Kyong-Ham HONG<sup>C</sup>, Jung-Hoon KIM<sup>C</sup>, Tae-Jun YU<sup>C</sup>,

Hyung-Taek KIM<sup>C</sup>, Tae-Moon JEONG<sup>C</sup>, Young-Chul NOH<sup>C</sup>, Do-Kyeon KO<sup>C</sup>, Jongmin LEE<sup>C</sup>

Advanced Photon Research Center, Japan Atomic Energy Agency

Institute for Chemical Research, Kyoto University<sup>A</sup>

Central Research Institute of Electric Power Industry<sup>B</sup>

Gwangju Institute of Science and Technology, Korea<sup>C</sup>

**Keywords:** laser ion source, femto-second laser x-ray imaging,

We are investigating an intense fs-laser driven MeV proton source using a thin foil, and its applications. Simultaneous imaging using a proton beam and x-rays having a pico-second duration is demonstrated using a few TW Ti:Sapphire laser system. By generating a short-pulse proton beam and x-rays, an intense laser irradiates a 5  $\mu\text{m}$  thickness copper tape target with an having off-axis parabolic mirror an f number 6 giving an intensity of intensity  $6 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ . We performed first experiments of simultaneous imaging of a Cu mesh pattern by laser produced MeV proton and x-rays.

At present, a fs high intensity table-top CPA (chirped pulse amplification) laser system is commonly used for high intensity physics experiments. We found rapidly growing research area of ion and proton generation and its application to the high field science. The proton beam and x-rays produced at a target by the laser irradiation are simultaneously observed. The proton beam driven by high intensity fs laser has the outstanding feature. The pulse duration is below  $\sim\text{ps}$ , and protons are generated from a small area (point source whose effective diameter is  $\sim 10 \mu\text{m}$ ), energy is more than  $\sim\text{MeV}$ , and the beam has small divergence of 10 degrees. Similarly the x-ray produced by a high intensity femto-second laser has a few 100fs, small source size of  $10 \mu\text{m}$ .

We have demonstrated shadowgraphs of a Cu mesh having a periodically structured pattern by laser-produced proton beam and x-ray. The experimental set up is shown in Fig.1. The pumping laser has  $\sim 800\text{nm}$  wavelength, the pulse duration is 100 fs at full width at half maximum (FWHM), the pulse energy is 680 mJ, and the intensity ratio of the  $\sim\text{ns}$  pre-pulse, which is due to the leakage from the regenerative amplifier, to the main pulse is  $10^{-5-6}$  and the constant ratio of an amplified spontaneous emission (ASE to the main pulse) is  $10^{-5}$  and ASE duration is  $\sim 2\text{ns}$ . A p-polarized laser pulse with 50 mm diameter is onto the copper tape target at 45 degree incident angle with focal length of 238 mm (F/4.8). The copper tape was 5 micron in thickness and 20 mm in width. The target system supplies a fresh surface to the focus spot at every shot. The measured focus spot size and the main pulse duration were  $15 \mu\text{m}$  diameter (FWHM) and 105 fs, giving an intensity of  $\sim 3 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ .

First, we detected the proton signal at the target normal direction by using the time of flight (TOF) proton detector (S. Nakamura et al., J. J. Appl. Phys. Part2, 45(33-36), pp. L913-916 (2006)). According to the TOF proton signal which is on-line real time signal, we can optimize the target position and laser pulse duration as well as duration of the amplified spontaneous emission. This



TOF technique is very convenient. After the optimization of the target position and ASE from the laser, we obtained the maximum proton energy of  $>2$  MeV with  $10^{11}$  protons per shot. (Fig.2(a))

We measured the angular distribution of the proton beam at specific energy ranges, such as,  $>0.8$  MeV,  $>1.2$  MeV,  $>1.9$  MeV, by placing the CR39 nuclear track detector with the mylar range filters whose thicknesses are determined for detecting the protons in each energy range. The beam divergence of the proton beam is measured with a CR39 with range filters. Each energy range is measured by single shot. The divergence angles are 10 degrees (vertical) and 13 degrees (horizontal) for protons with energy of  $>1.9$  MeV, 17 degrees (vertical) and 20 degrees (horizontal) for  $>1.2$  MeV and 26 degrees (vertical) for  $>0.8$  MeV. A divergence of the vertical axis of over 0.8 MeV cannot be estimated. (Fig.2 (b))

The pulse duration of the accelerated protons is less than a pico-second at the source. X-ray transmission spectrum of a Cu mesh is shown in Fig.2(c). Contrast is falling this time for the projection image in the wavelength of an arrow. By choosing K-alpha line emission of Cu, the source of X-rays can improve in both short pulse and high contrast.

The peculiarity of this measurements, is that we have performed first experiments of simultaneous shadowgraph by laser produced MeV proton and x-rays as shown Fig. 3. The projection image of a Cu mesh pattern by the proton (a) and x-rays (b). It is 30 times the projection magnification of a Cu mesh pattern of this. The proton image was measured with CR39 nuclear track detector. The x-ray image was measured with the imaging plate. Each projection image is based on the single shot, and the simultaneous measurement is carried out. The line of a mesh and O characters can be checked in great numbers from a projection. The x-ray image (b) has faded compared with the proton line image (a). Since one of the reasons has too thick CR39, it is that x-rays dispersion increased. What is made thin ( $\sim 100$  micrometers) is possible for the thickness of CR39. Z-number of target material and a pattern mesh is not made suitable other causes are generated. In order to obtain the high projection X-ray image of contrast more, it is desirable to use short  $K\alpha$  line emission also in time.

The source of ions and x-rays of laser generation can catch the phenomenon of a short ( $\sim$ ps) domain in time. Since there are many protons in one irradiation, a projection can be obtained by one shot. It is the first demonstration this times, the static copper mesh was used. The driven laser ion can made a snapshot of fast transient phenomenon. The resolution of this simultaneous measurement is about 10 micrometers.

The simultaneous probing of a using a  $\sim$ MeV electron and proton beams, THz -wave, and the laser itself that branched further is possible. It is possible to apply to the pump-probe measurement for the transient phenomena in the micro-structures from combined these. A proton beam can made a image of the configuration of an electromagnetic field inside a sample.

We would like to thank T. Tajima and T. Kimura for fruitful discussion. And this work partly supported by Ministry of Education, Culture, Sports, Science, and Technology of Japan. (The three-country joint research of Japanese-South Korean-China)

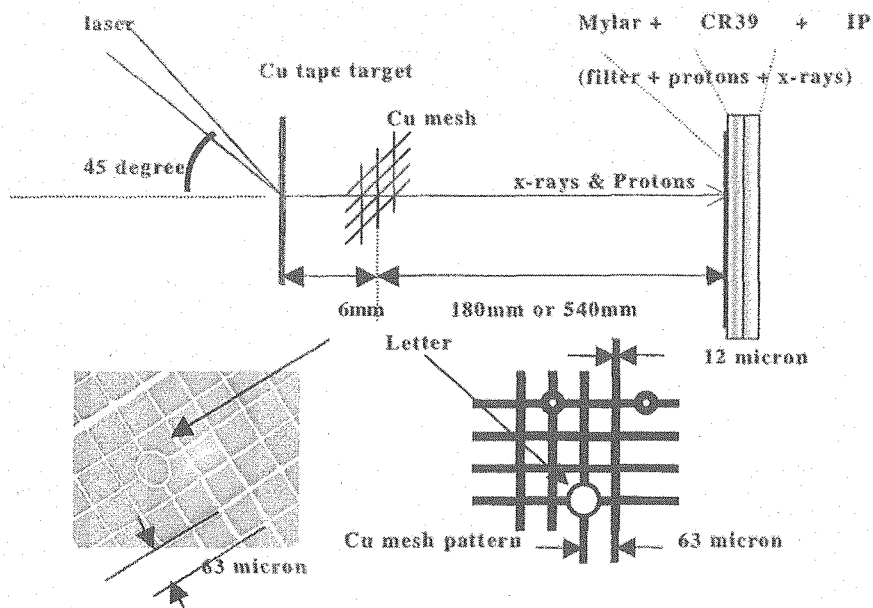


Figure 1. An experimental set up of simultaneous shadowgraph obtained a Cu-mesh pattern by the  $\sim$ MeV proton and an x-ray. The p-polarized laser light has an  $\sim$ 800nm wavelength, the pulse duration of 100 fs at FWHM, the pulse energy of 600 mJ at the laser irradiates Copper tape target 45degree incident angle with a focal length of 238 mm (F/4.1). The distance between target and mesh is 6mm. The mesh to CR39 track detector and an x-ray imaging plate with range filter are 180mm and 540mm lengths. Magnifications of shadowgraph are 30 (180mm) and 90 (540mm).

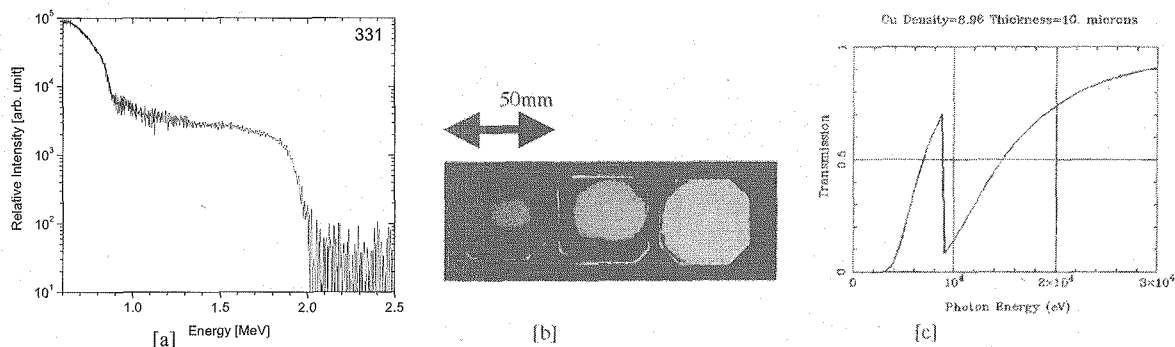


Figure 2

- [a] The proton spectrum obtained by a TOF (time of flight) spectrometer which composed of plastic scintillation. The proton number plateau was observed by energy=1.5MeV domain. The maximum energy is observed by  $\sim$ 2 MeV.
- [b] The angular distribution of the drive protons ( $> 0.8$ ,  $> 1.2$ ,  $> 1.9$ MeV) measured using a CR39 with the mylar range filters. A higher energy beam is better collimated.
- [c] An x-ray transmission rate of the dominant x-ray component of the Cu mesh image is a few MeV.

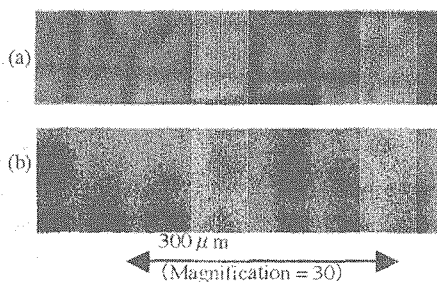


Figure 3 The projection image of Cu mesh pattern by the proton (a) and x-rays (b). The proton image was measured with CR39 nuclear track detector. The x-ray image is measured with the imaging plate. Each projection image is obtained simultaneously during single laser shot.

# 付録 出席者名簿

原子力機構外からの出席者(姓ABC順)	所属
1 AZUMA Hirozumi 東博純	TOYOTA Central R&D Labs. Inc. (株)豊田中央研究所 材料物性研究室
2 BOLTON Paul R.	SLAC, Stanford Univ. USA 米国スタンフォード大学 スタンフォード線形加速器センター
3 CHA Jongpyo	APRI GIST, Korea 韓国光州科学技術院 量子科学研究所
4 ENDO Akira 遠藤彰	GIGAPHOTON Inc. ギガフォトン(株)
5 FUCHS Julien S.	Ecole Polytechnique-Univ. Paris VI, France 仏国エコールポリテクニク パリ第6大学
6 FUJIMOTO Masatoshi 藤本正俊	Hamamatsu Photonics K.K. 浜松ホトニクス(株) 中央研究所第3研究室
7 FUJITA Masayuki 藤田雅之	Institute for Laser Technology (財)レーザー技術総合研究所
8 FUJITA Shuichi 藤田修一	Mitsubishi Electric Co. 三菱電機(株) 伊丹製作所
9 FUJIWARA Mamoru 藤原守	Osaka Univ. 大阪大学 核物理研究センター
10 FUJIWARA Tatsuyoshi 藤原 喜義	Shimadzu Co. (株)島津製作所 民生品部
11 HOSODA Makoto 細田 誠	Osaka City Univ. 大阪市立大学 大学院工学研究科
12 ICHINOSE Nobuyuki 一ノ瀬 暢之	Kyoto Inst. of Technology 京都工業繊維大学 工学科学研究科物質工学部門
13 Iwai Nobuyuki 岩井 信之	Shimadzu Co. (株)島津製作所
14 IWAMAE Atsushi 岩井 敦	Kyoto Univ. 京都大学 大学院工学研究科機械理工学専攻
15 KAMIYA Nobuo 神谷 信雄	TOYOTA Central R&D Labs. Inc. (株)豊田中央研究所 材料物性研究室
16 KAWANAKA Junji 河仲 隼二	Osaka Univ. 大阪大学 レーザーエネルギー学研究室
17 KAWASE Keigo 川瀬 啓悟	Osaka Univ. 大阪大学 核物理研究センター
18 KIM Hyungtaek 金 興澤	APRI GIST, Korea 韓国光州科学技術院 量子科学研究所
19 KIM Chuie Woong 金 宇英	APRI GIST, Korea 韓国光州科学技術院 量子科学研究所
20 KITAMOTO Kenji 北本 健二	HOC Co. (有)HOC新事業担当
21 KO Do-Kyeong 高 道敬	APRI GIST, Korea 韓国光州科学技術院 量子科学研究所
22 MIYAUCHI Shinji 宮内 真二	Shimadzu Co. (株)島津製作所 設計技術センター
23 MOCHIZUKI Takayasu 望月 孝晏	Univ. of Hyogo 兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所 電気系工学専攻
24 MORIHIRO Kazuko 森弘 和子	Nara Women's Univ. 奈良女子大学 共生科学研究センター
25 MURAI Kensuke 村井 健介	AIST (独)産業技術総合研究所 光技術研究部門
26 NAKANO Masafumi 中野 正文	NAT 日本アドバンステクノロジー(株)
27 NAMBA Shinichi 難波 馨一	Hiroshima Univ. 広島大学 大学院工学研究科
28 NAMIKAWA Kazumichi 並河 一寛	Tokyo Gakutei Univ. 東京学芸大学 自然科学系
29 NASHIMA Shigeki 菜嶋 茂喜	Osaka City Univ. 大阪市立大学 大学院工学研究科
30 NEMOTO Koshichi 根本 孝七	CRIEP (財)電力中央研究所
31 NISHIOKA Hajime 西岡 正一	Univ. of Electro-Communications 電気通信大学 レーザー新世代研究センター
32 NODA Akira 野田 章	Kyoto Univ. 京都大学 化学研究所
33 OGATA Atsushi 小方 厚	Osaka Univ. 大阪大学 産業科学研究所
34 OHNUKI Somei 大貫 毅明	Hokkaido Univ. 北海道大学 大学院工学研究科 材料科学専攻
35 OISHI Yuji 大石 祐嗣	CRIEP (財)電力中央研究所 電力技術研究所
36 SAKABE Shuji 阪部 周二	Kyoto Univ. 京都大学 化学研究所 附属先端エームナノ科学センター
37 SANO Kazuo 佐野 一雄	Shimadzu Emit Co. Ltd. 島津エミット(株)
38 SASAI Hiroyuki 笹井 浩行	Shimadzu Co. (株)島津製作所 民生品部 開発課
39 SHENG ZhengMing 程 正名	IOP, China 中国科学院物理研究所
40 SHIBATA Yutaka 柴田 穰	Nagoya Univ. 名古屋大学 大学院理学研究科

41	SHIRAI	Masanobu	白井 正伸	Kyoto Univ.	京都大学 大学院理学研究科
42	SUZUKI	Masayuki	鈴木 将之	Univ. of Tokyo	東京大学 物性研究所
43	TAKAHASHI	Toshiharu	高橋 俊晴	Kyoto Univ.	京都大学 原子炉実験所
44	TAKENAKA	Hisataka	竹中 久貴	NTT Advanced Technology Co.	NTTアドバンステクノロジ(株)
45	TAMOTSU	Satoshi	保 智己	Nara Women's Univ.	奈良女子大学 大学院人間文化研究科
46	TANAKA	Kazuo A.	田中 和夫	Osaka Univ.	大阪大学 大学院工学研究科
47	TERAUCHI	Masami	寺内 正己	Tohoku Univ.	東北大学 多元物質科学研究所
48	URAKAWA	Junji	浦川 順治	KEK	(独)高エネルギー加速器研究機構 加速器研究施設
49	YAMANOUCHI	Kaoru	山内 薫	Univ. of Tokyo	東京大学 大学院理学系研究科
50	YASUDA	Keiko	安田 恵子	Nara Women's Univ.	奈良女子大学 理学部生物科学科

原子力機構の出席者				所属			
51	Shikou	KIYOTA	清田 史功	JAEA	(独)原子力機構	敦賀本部 新型転換炉ふげん発電所 環境技術開発課	
52	Yasuyuki	NAKAMURA	中村 保之	JAEA	(独)原子力機構	敦賀本部 新型転換炉ふげん発電所 環境技術開発課	
53	Satoshi	MIYAJIMA	宮島 恒史	JAEA	(独)原子力機構	システム計算科学センター シミュレーション技術開発室	
54	Akira	NAGASHIMA	長島 亨	JAEA	(独)原子力機構	関西科学研究所	
55	Noboru	TSUCHIDA	土田 昇	JAEA	(独)原子力機構	関西科学研究所	
56	Taji	HOSHIYA	星屋 泰二	JAEA	(独)原子力機構	関西科学研究所	
57	Shuhei	KANAZAWA	金沢 修平	JAEA	(独)原子力機構	関西科学研究所	
58	Shuji	KONDO	近藤 修司	JAEA	(独)原子力機構	関西科学研究所	
59	Yoshiaki	KATO	加藤 義章	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
60	Toshiki	TAJIMA	田島 俊樹	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
61	Atsushi	YOKOYAMA	横山 淳	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
62	Hirovuki	DAIDO	大道 博行	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
63	Shunichi	KAWANISHI	河西 清一	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
64	Sayaka	HARAYAMA	原山 香	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
65	Ichiro	YAMASAKI	山崎 一郎	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
66	Miho	TANAKA	田中 美保	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
67	Sachio	ITO	伊藤 幸代	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
68	Miho	YAMAGUCHI	山口 美保	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
69	Yuji	NAKAAZE	中俣 優次	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
70	Jun'ichiro	MIZUKI	水木 純一郎	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
71	Toyoaki	KIMURA	木村 豊秋	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
72	Keisuke	NAGASHIMA	永島 圭介	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
73	Maki	KISHIMOTO	岸本 牧	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
74	Tetsuya	KAWACHI	河内 哲哉	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
75	Momoko	TANAKA	田中 桃子	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
76	Noboru	HASEGAWA	長谷川 登	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
77	Yoshihiro	OCHI	越智 義浩	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
78	Masaharu	NISHIKINO	錦野 将元	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
79	Kota	SUKEGAWA	助川 顕太	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
80	Hiroshi	YAMATANI	山谷 寛	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
81	Yuichi	KUNIEDA	國枝 雄一	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	
82	Toshiniko	YAMAUCHI	山内 俊彦	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	

83	Hironori	大場弘則	OHBA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
84	Akihiko	西村昭彦	NISHIMURA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
85	Keiichi	横山啓一	YOKOYAMA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
86	Hiroshi	赤木浩	AKAGI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
87	Morihisa	佐伯盛久	SAEKI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
88	Hiroshi	村上洋	MURAKAMI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
89	Ryuji	坂倉隆二	ITAKURA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
90	Yukihiko	島田幸洋	SHIMADA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
91	Hidetaka	山田秀尚	YAMADA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
92	Akihiro	杉田明宏	SUGITA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
93	Kohei	清水広平	SHIMIZU	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
94	Koichi	小倉浩一	OGURA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
95	Satoshi	轉茂隆	ORIMO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
96	Akito	勾坂明人	SAGISAKA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
97	Hironitsu	桐山博光	KIRIYAMA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
98	Michiaki	森渥昭	MORI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
99	Yoshiki	中井善基	NAKAI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
100	Toshiki	浅井利紀	ASAI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
101	Atsushi	坪敦	AKUTSU	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
102	Jinglong	馬貴龍	MA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
103	Alexander	PIROZHKO	PIROZHKO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
104	Akifumi	余諒文	YOGO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
105	Norihisa	吉村憲久	YOSHIMURA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
106	Sergey V.	Bulanov	Bulanov	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
107	Takehito	早川岳人	HAYAKAWA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
108	Hideyuki	小瀧秀行	KOTAKI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
109	Yukio	林田紀雄	HAYASHI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
110	Masaki	神門正城	KANDO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
111	Takayuki	本間隆之	HOMMA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
112	Yuji	福田祐仁	FUKUDA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
113	Izuru	大真出	DAITO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
114	Liming	陳黎明	CHEN	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
115	Masato	小池雅人	KOIKE	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
116	Akira	杉山偉孝	SUGIYAMA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
117	Masataka	加道雅庸	KADO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
118	Yoji	鈴木庸氏	SUZUKI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
119	Masahiko	石野雅彦	ISHINO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
120	Takashi	今國孝志	IMAZONO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
121	Ryoichi	久保亮一	KUBO	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
122	Yuichi	清水雄一	SHIMIZU	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
123	Mitsuru	山極満	YAMAGIWA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
124	James K.	甲賀シエムズ	KOGA	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
125	Akira	佐々木エ	SASAKI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
126	Kengo	森林健浩	MORIBAYASHI	JAEA	(独)	原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット

127	Kanji	SAITO	斎藤 寛二	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
128	Toshiaki	MORITA	守田 利昌	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
129	Timur Zh.	ESIRKEPOV		JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
130	Tomohito	OTOBE	乙部 智仁	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
131	Eisuke	MINEHARA	峰原 英介	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
132		YAMAKAWA	山川 孝一	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
133	Makoto	AOYAMA	青山 誠	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
134	Atsushi	AKAHANE	赤羽 温	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
135	Koichi	TSUJI	辻 公一	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
136	Ryoichi	HAJIMA	羽島 良一	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット
137	Nobuyuki	NISHIMORI	西森 信行	JAEA	(独)原子力機構	量子ビーム応用研究部門	量子ビーム利用研究ユニット

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質の量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	メートル <sup>-1</sup>	m <sup>-1</sup>
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
質量体積 (比体積)	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ (物質量の) 濃度	アンペア毎メートル	A/m
輝度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
屈折率	カンデラ毎平方メートル (数の) 1	cd/m <sup>2</sup> 1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクログラム	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
	名称	記号		
平面角	ラジアン <sup>(a)</sup>	rad		m・m <sup>-1</sup> =1 <sup>(b)</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(a)</sup>	sr <sup>(c)</sup>		m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> =1 <sup>(b)</sup>
周波数	ヘルツ	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m・kg・s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg・s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事	ジュール	J	N・m	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup>
工率, 放射	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup>
電荷, 電気量	クーロン	C		s・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V	m <sup>-2</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>3</sup> ・A <sup>2</sup>
磁束	ウェーバ	Wb	V・s	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(d)</sup>	°C		K
光エネルギー	ルーメン	lm	cd・sr <sup>(c)</sup>	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・cd=cd
照度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> ・m <sup>-4</sup> ・cd=m <sup>-2</sup> ・cd
(放射性核種の) 放射能	ベクレル	Bq		s <sup>-1</sup>
吸収線量, 質量エネルギー分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>
	シーベルト	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup>

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときいくつかの用例は表4に示されている。
- (b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
- (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
- (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		SI 基本単位による表し方
	名称	記号	
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa・s	m <sup>1</sup> ・kg・s <sup>-1</sup>
表面張力	ニュートン毎メートル	N・m	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup>
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg・s <sup>-2</sup>
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s <sup>2</sup>	m・m <sup>-1</sup> ・s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg・s <sup>-3</sup>
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎平方メートル	J/K	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/(kg・K)	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
熱伝導率	ジュール毎メートル毎ケルビン	J/kg	m <sup>2</sup> ・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m・kg・s <sup>-3</sup> ・K <sup>-1</sup>
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> ・kg・s <sup>-2</sup>
体積電荷	ボルト毎メートル	V/m	m・kg・s <sup>-3</sup> ・A <sup>-1</sup>
電気変位	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> ・s・A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> ・s・A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>-3</sup> ・kg <sup>-1</sup> ・s <sup>4</sup> ・A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m・kg・s <sup>-2</sup> ・A <sup>-2</sup>
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup> ・mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-2</sup> ・K <sup>-1</sup> ・mol <sup>-1</sup>
吸収線量	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> ・s・A
放射強度	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> ・s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>4</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup>
	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> ・sr)	m <sup>2</sup> ・m <sup>-2</sup> ・kg・s <sup>-3</sup> =kg・s <sup>-3</sup>

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648000) rad
リットル	l, L	1l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	B	1B=(1/2) ln10(Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1eV=1.60217733(49)×10 <sup>-19</sup> J
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 <sup>-27</sup> kg
天文単位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 <sup>11</sup> m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	里	1 海里=1852m
ノット	ノット	1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1 a=1 dam <sup>2</sup> =10 <sup>2</sup> m <sup>2</sup>
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=10 <sup>-10</sup> m
バイン	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm <sup>2</sup> =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> /s=10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> /s
ガウス	G	1 G=10 <sup>4</sup> T
エルステッド	Oe	1 Oe=(1000/4π)A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx=10 <sup>-8</sup> Wb
スチルブ	sb	1 sb=1cd/cm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> cd/m <sup>2</sup>
ホト	ph	1 ph=10 <sup>4</sup> lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm/s <sup>2</sup> =10 <sup>-2</sup> m/s <sup>2</sup>

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
X線単位	1X unit	1X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 <sup>-26</sup> W・m <sup>-2</sup> ・Hz <sup>-1</sup>
フェルミ	fm	1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット	metric carat	1 metric carat=200 mg=2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	
ミクロン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m