JAEA-Conf 2008-007



日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 第8回光量子科学研究シンポジウム 論文集 2007年6月4日~5日、木津

Proceedings of JAEA-KPSI 8th Symposium on Advanced Photon Research June 4th-5th, 2007, Kizu, Kyoto, Japan

(編)シンポジウム事務局

(Ed.) Secretariat of JAEA-KPSI-APRC Symposium

量子ビーム応用研究部門 関西光科学研究所

Quantum Beam Science Directorate Kansai Photon Science Institute

日本原子力研究開発機構

August 2008

Japan Atomic Energy Agency

本レポートは独立行政法人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(<u>http://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。

独立行政法人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
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

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, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 第8回光量子科学研究シンポジウム 論文集 2007年6月4日~5日、木津

> 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 関西光科学研究所 (編)シンポジウム事務局

(2008年6月18日受理)

平成19年6月4日~5日の2日間にわたり、「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開催した。本論文集にはそこで行われた講演およびポ 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。

Proceeding of JAEA-KPSI 8th Symposium on Advanced Photon Research June 4th-5th, 2007, Kizu, Kyoto, Japan

(Ed.)Secretariat of JAEA-KPSI-APRC Symposium

Quantum Beam Science Directorate Kansai Photon Science Institute Japan Atomic Energy Agency Kizugawa- shi, Kyoto

(Received June 18, 2008)

JAEA-KPSI-APRC 8th Symposium on Advanced Photon Research was held at Kansai Photon Research Institute, Japan Atomic Energy Agency (JAEA-KPSI) in Kizu, Kyoto on June 4th – 5th, 2007

This report consists of contributed papers for the speeches and poster presentations in JAEA-KPSI-APRC 8th Symposium.

Keywords: Simulation, Laser Chemistry, Nuclear Physics, High Field, Laser Acceleration, Laser Processing, Light Source, Device

目 次

1.	はじめ	ちに	1
2.	概要		2
3.	講演		
	3.1	"J-KAREN" 高強度レーザー 桐山 博光(原子力機構)他	13
	3.2	X線レーザーの利用研究及び高繰り返し化の現状について 長谷川登(原子力機構)他	17
	3.3	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 難波 愼一 (広島大学) 他	21
	3.4	軟X線平面結像型分光器用多層膜不等間隔溝球面回折格子の開発 小池 雅人(原子力機構)他	25
	3.5	ナノスケールX線発光分析の新展開 -X線多層膜回折格子の応用 寺内 正己(東北大学)他	29
	3.6	Laser Generated Protons and Applications Oswald WILLI (Institute for Laser and Plasmaphysic, Heinrich Heine University Duesseldorf) 他	33
	3.7	連携融合研究「ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学」の現状 西村 博明 (大阪大学)	39
	3.8	ERL 用大電流超伝導加速器の開発	42
	3.9	Development of a High-Intensity Few-Cycle Optical Parametric Chirped-Pulse Amplification System 青山 誠 (原子力機構) 他	46
4.	ポスタ	7一発表	
	【シミ=	ュレーション】	
	4.1	分子における強レーザー場中の電子・イオンダイナミクスの第一原理計算 川下 洋輔(筑波大学)他	53
	4.2	EUV 光源の原子過程モデル 佐々木 明(原子力機構)	57
	4.3	モンテカルロ法による粒子線の核散乱の計算 森林 健悟 (原子力機構)	61

【物質制御】

4.4	2,3-ジヒドロピランの同位体選択的赤外多光子解離を用いた酸素同位体分離 横山 淳(原子力機構)他	65
4.5	エチレンジアミン四酢酸を修飾した亜鉛ミオグロビンの光ダイナミックス 高島 弘 (奈良女子大学) 他	69
4.6	液相レーザーアブレーションによるセリウムナノ化合物粒子の作成 大場 弘則(原子力機構)他	73
4.7	Observation of ICP mode Transition from CCP mode with Inside RF Antenna 山内 俊彦 (原子力機構) 他	77
4.8	超短パルス高強度レーザーによる高強度テラヘルツ波発生 菜嶋 茂喜(大阪市立大学)他	81
4.9	量子制御のための中赤外 FEL パルス計測 飯島 北斗(原子力機構)他	85
【核物理	里】	
4.10	表面プラスモン共鳴を用いた放射線検出器の開発 國枝 雄一 (原子力機構) 他	89
4.11	レーザープラズマX線源におけるX線コンバータ効果の評価 大石 祐嗣(()財)電力中央研究所)他	93
4.12	UV Fluorescence from Zinc Oxide Excited by X-ray Laser 古川 裕介 (大阪大学) 他	97
【高強周	度場】	
4.13	位相回転によるレーザー生成イオンビームの高品位化 野田 章 (京都大学) 他	101
4.14	High Energy Proton Generation from Thin-foil Targets with a High Intensity Laser 匂坂 明人 (原子力機構) 他	104
4.15	Shadowgraphy for Laser Plasma Investigation 馬 景龍(原子力機構)他	108
【レーキ	デー加速】	
4.16	キャピラリ放電管によるレーザープラズマ電子加速 亀島 敬 (原子力機構) 他	112
4.17	Plasma Density Scale Length Effects on the Electron Injection into the Acceleration Regime via the Wake Wave Breaking Andrei V. BRANTOV (P.N.Lebedev Physics Institute, Russian Academy of Science) 他	115

【レーザー加工】

4.1	8 関西光科学研究所におけるパルスレーザーを用いた分析加工技術の新展開 島田 幸洋(原子力機構)他	119
4.1	9 レーザー溶接・蒸発によるFBR熱交換器検査技術の高度化 西村 昭彦(原子力機構)他	123
4.2	0 原子炉構造材料における脆化メカニズム解明のための研究 野際 公宏(原子力機構)他	127
4.2	1 フェムト秒レーザー蒸発を施したオーステナイト系ステンレス鋼 304L 表面内部残 「四にカハケ	
	留心刀分布 菖蒲 敬久(原子力機構)他	131
4.2	2 高輝度フェムト秒レーザー照射による新規材料創生	135
【光浪	原】	
4.2	3 次世代半導体露光光源の実用化 遠藤 彰(ギガフォトン(株))他	139
4.2	4 Observation of Four-fold Azimuthal Angle Dependence in the Terahertz Radiation Power of (100) p-InAs 斎藤 繁喜 (大阪大学) 他	143
【デ	「イス】	
4.2	5 Co/SiO2多層膜の耐熱性評価	147
4.2	6 軟X線領域における偏光評価解析装置の開発	151
4.2	7 高 Yb2O3添加ガラスの分光特性 久保 亮一(原子力機構)他	155
4.2	8 Fabrication of SiN-membrane-based Zirconium Filter for Separating Coherent EUV Beam from Collinear Visible Laser Beams 竹中 久貴 (NTT アドバンステクノロジ (株)) 他	158
付録	出席者名簿	169
		100

Contents

1.	Intro	duction	1
2.	Outli	ne	2
3.	Spee 3.1	ches "J-KAREN" –High Intensity Laser Hiromitsu KIRIYAMA (JAEA) et al.	13
	3.2	Development of the Applied Studies with the X-ray Laser and 0.1Hz Repetition Rate X-ray Laser Noboru HASEGAWA (JAEA) et al.	17
	3.3	Photoabsorption and Ionization Processes in Xe Cluster Plasma Produced by Coherent X-ray Laser Shinichi NAMBA (Hiroshima Univ.) et al.	21
	3.4	Development and Application of Soft X-ray Multilayer VLS Spherical Gratings for a Flat-field Spectrograph Masato KOIKE (JAEA) et al.	25
	3.5	A New Trend in Soft-X-ray Emission Spectroscopy Based on TEM Masami TERAUCHI (Tohoku Univ.) et al.	29
	3.6	Laser Generated Protons and Applications Oswald WILLI (Institute for Laser and Plasmaphysic, Heinrich Heine University Duesseldorf) et al.	33
	3.7	Present Status of Joint Research on Mono-energy Quantum Beam Science with PW Lasers Hiroaki NISHIMURA (Osaka Univ.)	39
	3.8	Development for High Current Superconducting Accelerator for ERL Masaru SAWAMURA (JAEA)	42
	3.9	Development of a High-Intensity Few-Cycle Optical Parametric Chirped-Pulse Amplification System Makoto AOYAMA (JAEA) et al.	46

4. Poster Presentations

[Simulation]

4.1	First-principles Calculation for Electron-ion Dynamics of Molecules Under Intens Laser Field Yosuke KAWASHITA (University of Tsukuba) et al.	53
4.2	Atomic Modeling of the Plasma EUV Source Akira SASAKI (JAEA)	57
4.3	Nuclear Scattering Calculation of Particles by Using Monte-Carlo Method	61

Kengo MORIBAYASHI (JAEA)

[Laser Chemistry]

4.4	Oxygen Isotope Separation by Isotopically Selective Infrared Multiphoton Dissociation of 2,3-dihydropyran Atsushi YOKOYAMA (JAEA) et al.	65
4.5	Photo-dynamics of Zinc-Myoglobin Modified with Ethylenediaminetetraacetic Acid Hiroshi TAKASHIMA (Nara Women's Univ.) et al.	69
4.6	Preparation of Cerium Compound Nanoparticles by Laser Ablation in Liquid Phase Hironori OHBA (JAEA) et al.	73
4.7	Observation of ICP Mode Transition from CCP Mode with Inside RF Antenna Toshihiko YAMAUCHI (JAEA) et al.	77
4.8	Generation of Intense Terahertz Radiation by Ultrashort High Power Lasers Shigeki NASHIMA (Osaka City Univ.) et al.	81
4.9	Measurement of Mid-infrared FEL Pulses for an Optical Quantum Control Hokuto IIJIMA (JAEA) et al.	85

[Nuclear Physics]

4.10	Development of Radiation Detector using Surface Plasmon	
	Resonance (SPR)	89
	Yuichi KUNIEDA (JAEA) et al.	
4.11	Estimation of X-ray Converter Effect in Laser Plasma X-ray Sources Yuji OISHI (Central Research Institute of Electric Power Industry) et al.	93
4.12	UV Fluorescence from Zinc Oxide Excited by X-ray Laser Yusuke FURUKAWA (Osaka Univ.) et al.	97

[High Field]

4.13	High Quality Laser-Produced Proton Beam Created by Phase Rotation	101
	Akira NODA (Kyoto Univ.) et al.	
4.14	High Energy Proton Generation from Thin-foil Targets with a High	
	Intensity Laser Akito SAGISAKA (JAEA) et al.	104
4.15	Shadowgraphy for Laser Plasma Investigation Jinglong. MA (JAEA) et al.	108

[Laser Acceleration]

4.16	Laser Plasma Electron Acceleration with Capillary Discharge	112
	Takashi KAMESHIMA (JAEA) et al.	
4.17	Plasma Density Scale Length Effects on the Electron Injection into the	
	Acceleration Regime via the Wake Wave Breaking	115
	Andrei V. BRANTOV (P.N.Lebedev Physics Institute, Russian Academy of	
	Science) et al.	

[Laser Processing]

4.18	New Broader Approach by Pulse Laser Application in JAEA-KANSAI Yukihiro SHIMADA (JAEA) et al.	119	
4.19	Improvement of Sensing Technology for FBR Heat Exchanger by Laser Welding and Ablation Akihiko NISHIMURA (JAEA) et al.	123	
4.20	Study of Radiation Hardening in Reactor Pressure Vessel Steels Kimihiro NOGIWA (JAEA) et al.	127	
4.21	Residual Stress Distribution of Austenitic Stainless Steel 304L with Femtosecond Laser Ablation Takahisa SHOBU (JAEA) et al.	131	
4.22	New Material Creation by High-intense fs-pulse Laser Irradiation Nobuo KAMIYA (TOYOTA Central R&D Labs. Inc.)	135	
[Light Source]			

4.23 Laser-produced Plasma EUV Light Source for Next Generation Lithography...... 139 Akira ENDO (Gigaphoton Inc.,) et al.

4.24	Observation of Four-fold Azimuthal Angle Dependence in the Terahertz	
	Radiation Power of (100) p-InAs	143
	Shigeki SAITO (Osaka Univ.) et al.	110

[Device]

4.25	Heat Stability Evaluations of Co/SiO ₂ Multilayers Masahiko ISHINO (JAEA) et al.	147
4.26	Development of an Apparatus for Polarization Analysis in Soft X- Ray Region Takashi IMAZONO (JAEA) et al.	151
4.27	Spectroscopic Properties of High Yb ₂ O ₃ Doping Glass Ryouichi KUBO (JAEA) et al.	155
4.28	Fabrication of SiN-membrane-based Zirconium Filter for Separating Coherent EUV Beam from Collinear Visible Laser Beams Hisataka TAKENAKA (NTT Advanced technology cooperation) et al.	158

Appendix	Participants List	163
----------	-------------------	-----

This is a blank page.

1. はじめに Introduction

平成 19 年 6 月 4 日~5 日の 2 日間にわたり、「第 8 回光量子科学研究シンポジウム」 (The 8th Symposium on 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。

光量子科学研究シンポジウムは、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、および研究ネットワークの拡大と強化に資することを目的として、旧日本原子 力研究所であった平成11年度から当研究所で開催しているものであり、今回が第8 回目である。プログラムを3~6ページに示す。

今回はテーマを「科学技術研究、産業・医療分野へのレーザーの利用拡大」とし、 レーザーの産業・医療への展開、レーザー駆動量子ビームの学術利用などについて広 く討論した。2日間で機構外からの参加者 59 名(うち国外から 3 名)を含む 144 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19年6月4日(月) ~ 6月5日(火)

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 量子ビーム応用研究部門/関西光科学研究所

協賛:社団法人レーザー学会、社団法人日本原子力学会関西支部

2. 概要 Outline

はじめに木村 豊秋光量子ビーム利用研究ユニット長による「原子力機構における 光量子科学研究」と題する基調講演が行われた。続いて「科学技術研究、産業・医療 分野へのレーザーの利用拡大」の観点から、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。

特に招聘講演では、Do-Kyeong Ko 教授(韓国光州科学技術院光量子科学研究所) から、光州科学技術院光量子科学研究所における最近の活動と新しい光量子科学研究 施設の整備計画の報告がなされ、また、寺内 正己教授(東北大学多元物質科学研究 所)からは新しいX線多層膜回折格子の報告がなされた。Oswald Willi教授(独国ハ インリッヒ・ハイネ デュッセルドルフ大学レーザープラズマ物理研究所)からは、 レーザーを用いた陽子発生とその応用に関する講演がなされた。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の各グループから活動報告が行われた。ま た、ポスターセッションでは、機構内外から計50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、産業界との連携の拡大を含め、光 量子科学研究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。特に高強 度レーザーの医療応用、X線レーザーによる時間相関計測、テラヘルツ分光など、最 新の成果は光量子科学研究の今後の展開を導く刺激的なものとして評価された。

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、光量子科学研究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。

第8回光量子科学研究シンポジウム プログラム

6月4日(月)第1日目 13時~

13:00-13:20	(20)	開会挨拶
		基調講演「 原子力機構における光量子科学研究」
		木村 豊秋(光量子ビーム利用研究ユニット)
		座長:大道 博行(量子ビーム応用研究部門)
13:20-13:45	(25)	Demonstration of the Relativistic Flying Mirror with Two Colliding Lasers
		神門 正城(レーザー電子加速研究グループ)
13:45-14:10	(25)	「"J-KAREN"高強度レーザー」
		桐山 博光(高強度場利用研究グループ)
14:10-14:50	(40)	招待講演「Current Activities and Future Plan of APRI for the Construction of Ultrashort
		Quantum Beam Facility and Photon Science Researches
		Do-Kyeong Ko(韓国光州科学技術院光量子科学研究所)
14:50-15:00	(10)	休憩
		座長:横山 淳(量子ビーム応用研究部門)
15:00-15:25	(25)	「強レーザー場反応制御研究」
		山内 薫(東京大学大学院理学研究科)
15:25-15:50	(25)	「強レーザー場中における固体電子の励起過程の第一原理シミュレーション」
		乙部 智仁(光量子シミュレーション研究グループ)
15:50-16:00	(10)	休憩
16:00-18:00	(120)	ポスターセッション
18:30-		懇親会(交流棟食堂、参加費4千円)
6月5日(火)第	第2日目	9時~
	(1.0)	

9:00- 9:10	(10)	原子力機構理事 野田 健治 挨拶
		座長:永島 圭介(X線レーザー利用研究グループ)
9:10- 9:35	(25)	「X線レーザーの利用研究及び高繰り返し化の現状について」
		長谷川 登(X線レーザー利用研究グループ)
9:35-10:00	(25)	「高コヒーレント軟 X 線レーザー分光法の実験的研究」
		並河 一道(東京学芸大学自然科学系)
10:00-10:25	(25)	「コヒーレントX線レーザー照射によるキセノンクラスターの光吸収・電離過程の解明」
		難波 慎一(広島大学大学院工学研究科)
10:25-10:35	(10)	休憩
		座長:横山 淳(量子ビーム応用研究部門)
10:35-11:00	(25)	[Development and Application of Soft X-ray Multilayer Gratings in the 1-8 keV Region]
		小池 雅人(先端光量子機能デバイス開発研究グループ)
11:00-11:40	(40)	招待講演「ナノスケール X 線発光分析の新展開~X 線多層膜回折格子の応用」
		寺内 正己(東北大学多元物質科学研究所)

11:40-12:05	(25)	「フェムト秒レーザーを用いた時間分解分光研究:テラヘルツ電磁波から X 線まで」
		村上 洋(レーザー物質制御研究グループ)
12:05-13:15	(70)	昼食
		座長:Sergei V. Bulanov(レーザー電子加速研究グループ)
13:15-13:55	(40)	招待講演「Laser Generated Protons and Applications」
		Oswald Willi (Institute for Laser and Plasmaphysic,
		Heinrich Heine University Duesseldorf, Germany)
13:55-14:20	(25)	「レーザー駆動陽子線の医学利用」
		大道 博行(高強度場利用研究グループ)
14:20-14:45	(25)	「連携融合研究「ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学」の現状」
		西村 博明(大阪大学レーザーエネルギー学研究センター)
14:45-14:55	(10)	休憩
		座長:野田 章(京都大学化学研究所)
14:55-15:20	(25)	Stable High-quality Electron Beam Generation via Counter-crossing Injection
		小瀧 秀行(レーザー電子加速研究グループ)
15:20-15:45	(25)	[Laser Wake-field Acceleration by λ^3 Pulses]
		Alexei Zhidkov((財)電力中央研究所電力技術研究所)
15:45-16:10	(25)	「ERL 用大電流超伝導加速器の開発」
		沢村 勝(ERL 光量子源開発研究グループ)
16:10-16:35	(25)	「高強度・数サイクル光パラメトリック増幅システム」
		青山 誠(高強度レーザー開発研究グループ)
16:35-16:45	(10)	まとめと閉会挨拶
16:45-		実験棟見学(希望者、見学者窓より)

	,	
13:00-13:20	(20)	Opening remark
		Keynote speech "Advanced Photon Research at JAEA"
		Toyoaki Kimura (JAEA)
		Chair: Hiroyuki Daido (JAEA)
13:20-13:45	(25)	"Demonstration of the Relativistic Flying Mirror with Two Colliding Lasers"
		Masaki Kando (JAEA)
13:45-14:10	(25)	""J-KAREN" High Intensity Laser"
		Hiromitsu Kiriyama (JAEA)
14:10-14:50	(40)	Invited talk "Current Activities and Future Plan of APRI for the Construction of
		Ultrashort Quantum Beam Facility and Photon Science Researches"
		Do-Kyeong Ko (Gwangju Institute of Science and Technology, Korea)
14:50-15:00	(10)	Break
		Chair: Atsushi Yokoyama (JAEA)
15:00-15:25	(25)	"Reaction Control in Intense Laser Fields"
		Kaoru Yamanouchi (University of Tokyo)
15:25-15:50	(25)	"First-principle Calculations for the Electron Excitation in the Condensed Matter
		under the Intense Laser Field"
		Tomohito Otobe (JAEA)
15:50-16:00	(10)	Break
16:00-18:00	(120)	Poster session
18:30-		Banquet (in Cafeteria, 4,000yen)
June 5th (Tu	e) 9:00 -	
9:00- 9:10	(10)	Welcome remark of Kenji Noda, Executive Director of JAEA
		Chair: Keisuke Nagashima (JAEA)

The 8th Symposium on Advanced Photon Research Program

June 4th (Mon) 13:00 -

9:00- 9:10 (10) Welcome remark of Kenji Noda, Executive Director of JAEA
Chair: Keisuke Nagashima (JAEA
9:10-9:35 (25) "Development of the Applied Studies with the X-ray Laser and 0.1Hz Repetition Rate
X-ray Laser"
Noboru Hasegawa (JAEA
9:35-10:00 (25) "Experimental Status of a Novel Solid State Spectroscopy by Use of Plasma Based X-ray
Laser"
Kazumichi Namikawa (Tokyo Gakugei University
10:00-10:25 (25) "Photoabsorption and Ionization Processes in Xe Cluster Plasma Produced by Coheren
X-ray Laser"
Shinichi Namba (Hiroshima University
10:25-10:35 (10) Break
Chair: Atsushi Yokoyama (JAEA

10:35-11:00	(25)	"Development and Application of Soft X-ray Multilayer Gratings in the 1-8 keV Region"
		Masato Koike (JAEA)
11:00-11:40	(40)	Invited talk "A New Trend in Soft-X-ray Emission Spectroscopy Based on Electron
		Microscopy"
		Masami Terauchi (Tohoku University)
11:40-12:05	(25)	"Studies by Time-resolved Spectroscopy Using a Femtosecond Laser: from THz
		Electromagnetic Wave to X-ray"
		Hiroshi Murakami (JAEA)
12:05-13:15	(70)	Lunch
		Chair: Sergei V. Bulanov (JAEA)
13:15-13:55	(40)	Invited talk "Laser Generated Protons and Applications"
		Oswald Willi (Heinrich-Heine University Duesseldorf, Germany)
13:55-14:20	(25)	"Laser Driven Proton Beam and Its Medical Application"
		Hiroyuki Daido (JAEA)
14:20-14:45	(25)	"Progress of the Joint Project on "PW Laser Driven Mono-energetic Quantum Beam
		Science""
		Hiroaki Nishimura (Osaka University)
14:45-14:55	(10)	Break
		Chair: Akira Noda (Kyoto University)
14:55-15:20	(25)	"Stable High-quality Electron Beam Generation via Counter-crossing Injection"
		Hideyuki Kotaki (JAEA)
15:20-15:45	(25)	"Laser Wake-field Acceleration by λ^3 Pulses"
		Alexei Zhidkov (Central Research Institute of Electric Power Industry)
15:45-16:10	(25)	"Development for High Current Superconducting Accelerator for ERL"
		Masaru Sawamura (JAEA)
16:10-16:35	(25)	"Development of High-intensity Few-cycle Optical Parametric Chirped-pulse
		Amplification System"
		Makoto Aoyama (JAEA)
16:35-16:45	(10)	Closing speech and farewell remark
16:45-		Laboratory tour (by requests, through windows)

第8回 光量	子科学研究シンポジウム	ポスター	-発表タイ	^ トル
--------	-------------	------	-------	------

ポスター 番号	題目	氏名	所属	発表 時間
P01	分子における強レーザー場中の電子・イ オンダイナミクスの第一原理計算	川下 洋輔	筑波大学	А
P02	EUV 光源の原子過程モデル	佐々木 明	原子力機構 光量子シミ ュレーション研究グループ	В
P03	モンテカルロ法による粒子線の核散乱の 計算	森林 健悟	原子力機構 光量子シミ ュレーション研究グループ	A
P04	2,3-ジヒドロピランの同位体選択的赤外 多光子解離を用いた酸素同位体分離	横山 淳	原子力機構 量子ビーム 応用研究部門	В
P05	強光子場中での位相制御によるカリウム 原子の状態選択的励起	杉田 明宏	原子力機構 レーザー物 質制御研究グループ	А
P06	エチレンジアミン四酢酸を修飾した亜鉛ミ オグロビンの光ダイナミックス	高島 弘	奈良女子大学理学部化 学科	В
P07	液相レーザーアブレーションによるセリウ ムナノ化合物粒子の作成	大場 弘則	原子力機構 レーザー物 質制御研究グループ	Α
P08	ICPプラズマによるボール状ダイヤモンド 合成とRFパワーの改善	山内俊彦	原子力機構 レーザー物 質制御研究グループ	В
P09	アルカリ金属のスピン-軌道コヒーレント 状態を用いたアト秒レーザーパルス計測 法	板倉 隆二	原子力機構 レーザー物 質制御研究グループ	A
P10	Effect of Plasma-cathode Electrons on Hard-X-ray-pulse Generation in a Femtosecond-laser-driven X-ray Tube	山田 秀尚	原子力機構 レーザー物 質制御研究グループ	В
P11	超短パルス高強度レーザーによる高強度 テラヘルツ波発生	菜嶋 茂喜	大阪市立大学	А
P12	量子制御のための中赤外 FEL パルス計 測	飯島 北斗	原子力機構 ERL 光量子 源開発研究グループ	в
P13	レーザー逆コンプトンガンマ線による軽核 の光核反応断面積測定	静間 俊行	原子力機構 レーザー電 子加速研究グループ	A
P14	0.1Hz 繰り返し X 線レーザー装置開発の 現状	越智 義浩	原子力機構 X 線レーザ 一利用研究グループ	В
P15	X線レーザーを利用したX線スペックル時 間相関計測法の開発	岸本 牧	原子力機構 X線レーザ 一利用研究グループ	А

ポスター 番号	題目	氏名	所属	発表 時間
P16	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と高出力化研 究	錦野 将元	原子力機構 X線レーザ 一利用研究グループ	В
P17	レーザーガイディングによるプラズマの局 所加熱	河内 哲哉	原子力機構 X線レーザ 一利用研究グループ	A
P18	表面プラズモン共鳴を用いた放射線検出 器の開発	國枝 雄一	原子力機構 X線レーザ 一利用研究グループ	В
P19	レーザープラズマX線源におけるX線コン バータ効果の評価	大石 祐嗣	(財)電力中央研究所	A
P20	発光性有機分子 PTCDA の構造と蛍光計 測	山谷寛	原子力機構 X線レーザ 一利用研究グループ	В
P21	軟X線顕微鏡による細胞内小器官及び 生理現象の可視化	保智己	奈良女子大学	A
P22	単色硬X線照射による放射線増感剤の 細胞死滅効果とラジカル生成	岡野 泰彬	大阪大学 レーザーエネ ルギー学研究センター	В
P23	UV Fluorescence from Zinc Oxide Excited by X-ray Laser	古川 裕介	大阪大学レーザーエネル ギー学研究センター	A
P24	位相回転によるレーザー生成イオンビー ムの高品位化	野田章	京都大学化学研究所	В
P25	レーザー駆動高エネルギープロトン発生 時の装置線量	小倉 浩一	原子力機構 高強度場利 用研究グループ	A
P26	High Energy Proton Generation from Thin-foil Targets with a High Intensity Laser	匂坂 明人	原子力機構 高強度場利 用研究グループ	В
P27	10fs 超高速光パルス生成とその応用	森 道昭	原子力機構 高強度場利 用研究グループ	A
P28	オンライン飛行時間分析による高強度レ ーザー加速陽子線の発生特性評価	余語 覚文	原子力機構 高強度場利 用研究グループ	В
P29	フェムト秒レーザープラズマ駆動プロトン・ X 線同時イメージング	西内 満美 子	原子力機構 高強度場利 用研究グループ	A
P30	Shadowgraphy for Laser Plasma Investigation	馬 景龍	原子力機構 高強度場利 用研究グループ	В

ポスター 番号	題目	氏名	所属	発表 時間
P31	Morphology of the Wakefield Accelerated Relativistic Electron Bunches	大東 出	原子力機構 レーザー電 子加速研究グループ	A
P32	遠赤外レーザーによる MeV 領域の逆コン プトンガンマ線の生成	川瀬 啓悟	原子力機構 レーザー電 子加速研究グループ	в
P33	シングルショット航跡場電子加速診断装 置の開発	福田祐仁	原子力機構 レーザー電 子加速研究グループ	A
P34	High Contrast Laser-driven Ar X-ray Source and Its Imaging Application	陳 黎明	原子力機構 レーザー電 子加速研究グループ	В
P35	Laser Plasma Electron Acceleration with Capillary Discharge	亀島 敬	総合研究大学院大学高エ ネルギー加速器科学研究 科	A
P36	Plasma Density Scale Length Effects on the Electron Injection into the Aacceleration Regime via the Wake Wave Breaking	Andrei V. Brantov	P.N.Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Science	В
P37	関西光科学研究所におけるパルスレーザ 一を用いた分析加工技術の新展開	島田 幸洋	原子カ機構 レーザー物 質制御研究グループ	A
P38	レーザー溶接・蒸発によるFBR熱交換器 検査技術の高度化	西村 昭彦	原子力機構 レーザー物 質制御研究グループ	В
P39	原子炉構造材料における脆化メカニズム 解明のための研究	野際 公宏	原子カ機構 レーザー物 質制御研究グループ	А
P40	フェムト秒レーザー蒸発を施したオーステ ナイト系ステンレス鋼 304L 表面内部残留 応力分布	菖蒲 敬久	原子力機構 量子ビーム 応用研究部門 放射光科 学研究ユニット 放射光技 術開発グループ	В
P41	高輝度フェムト秒レーザーによる新規材 料創成	神谷 信雄	豊田中央研究所	A
P42	高繰り返し・高出力 半導体励起フェムト 秒アンプ	仁司 忠鋭	株式会社 日本レーザー	В
P43	次世代半導体露光光源の実用化	遠藤 彰	ギガフォトン株式会社	A
P44	フェムト秒・アト秒パワーフォトニクス用広 帯域増幅技術	末田 敬一	大阪大学レーザーエネル ギー学研究センター	В
P45	高強度フェムト秒レーザー照射アルゴンク ラスターからの電磁波放射	長島 健	大阪大学 レーザーエネ ルギー学研究センター	A

ポスター 番号	題目	氏名	所属	発表 時間
P46	Observation of Four-fold Azimuthal Angle Dependence in the Terahertz Radiation Power of (100) p-InAs	斎藤 繁喜	大阪大学レーザーエネル ギー学研究センター	В
P47	Co/SiO₂多層膜の耐熱性評価	石野 雅彦	原子力機構 先端光量子 機能デバイス開発研究グ ループ	А
P48	軟X線領域における偏光評価解析装置の 開発	今園 孝志	原子力機構 先端光量子 機能デバイス開発研究グ ループ	
P49	高 Yb ₂ O ₃ 添加ガラスの分光特性	久保 亮一	原子力機構 先端光量子 機能デバイス開発研究グ ループ	
P50	Development of Zr/SiN Filter for Separating EUV Beam from Collinear Visible Laser Beam	竹中 久貴	NTT アドバンステクノロジ (株)	

A グループ:16:00~16:40 に発表

B グループ:16:40~17:20 に発表

3. 第8回光量子科学研究シンポジウム 講演

 $JAEA\text{-}KPSI \ 8th \ Symposium \ on \ Advanced \ Photon \ Research-Speeches$

This is a blank page.

3.1 "J-KAREN" 高強度レーザー

"J-KAREN" -High Intensity Laser

桐山 博光、森 道昭、中井 善喜、下村 拓也、田上 学、圷 敦、岡田 大、本村 朋洋、近藤 修司、 金沢 修平、匂坂 明人、小倉 浩一、織茂 聡、西内 満美子、アレキサンダー ピロゾコフ、馬 景龍、 余語 覚文、神門 正城、小瀧 秀行、福田 祐仁、陳 黎明、大東 出、川瀬 啓悟、本間 隆之、 亀島 敬、林 由起雄、早川 岳人、静間 俊行、藤原 守、セルゲイ ブラノフ、大道 博行、 木村 豊秋、田島 俊樹 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 Hiromitsu KIRIYAMA, Michiaki MORI, Yoshiki NAKAI, Takuya SHIMOMURA, Manabu TANOUE, Atsushi AKUTSU, Hajime OKADA, Tomohiro MOTOMURA, Shuji KONDO, Shuhei KANAZAWA, Akito SAGISAKA, Koichi OGURA, Satoshi ORIMO, Mamiko NISHIUCHI, Alexander PIROZHKOV, Jinglong MA, Akifumi YOGOMasaki KANDO, Hideyuki KOTAKI, Yuji FUKUDA, Liming M. CHEN, Izuru DAITO, Keigo KAWASE, Takayuki HOMMA, Takashi KAMESHIMA, Yukio HAYASHI, Taketo HAYAKAWA, Toshiyuki SHIZUMA, Mamoru FUJIWARA, Sergei V. BULANOV, Hiroyuki DAIDO, Toyoaki KIMURA, Toshiki TAJIMA Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

We report on a high peak power, high contrast laser system, based on both optical parametric chirped-pulse amplification (OPCPA) and conventional Ti:sapphire chirped-pulse amplification techniques. The laser system produces a peak power of 80 TW with 19 fs pulse duration at a 10 Hz repetition rate. With the use of OPCPA, the temporal contrast is enhanced to $\sim 10^{-9}$ within a few picoseconds before the main pulse. This contrast is better than those of conventional systems by three to four orders of magnitude. By cooling the crystal in the final power amplifier down to 77 K, a thermal focal length of about 4 km and the near diffraction-limited beam are obtained under the maximum pumping condition. The present system is applied to electron acceleration with relativistic effects. We demonstrate the production of 140 MeV high-energy quasi-monoenergetic electron beams using laser-plasma accelerators.

Keywords: Ultra-high intensity lasers, optical parametric chirped-pulse amplifiers, solid-state lasers, ultrafast optics, high field science

1. はじめに

近年の高強度レーザー技術の進展に伴い、これまでレーザー核融合研究用の大型ガラスレーザー でしか生成されていなかった高エネルギー電子、イオン、X線などが、テーブルに載るサイズの比較的小 型レーザーシステムで容易に発生できるようになりつつある[1]。レーザーを用いた高エネルギー粒子生 成は、極めてコンパクトであり、様々な産業・医療技術への応用が期待されている[2]。

しかし、高強度レーザーより出力されるレーザーパルスの時間構造において、メインパルスに先立って 数桁強度の低い背景光 (Amplified Spontaneous Emission; ASE) が存在する。一般的なレーザーシステ ムにおいて、メインパルスとASE の強度比(コントラスト)は 5~6 桁程度である[3]。メインパルスの集光強度が10¹⁸W/cm²の場合、ASEの光強度は10¹²~10¹³W/cm²となり、高強度を有するメインパルスが固体物質と相互作用する前にターゲット上にプリプラズマが形成され、メインパルスは膨張しつつある低い密度のプラズマと主として相互作用し、メインパルスと高密度物質との相互作用が実現出来ない。このため、プリパルスによりプリプラズマが形成されないようなレーザーの時間制御技術開発が重要である。

また、高いピーク出力を有するレーザーパルスを得るためには高エネルギーまで増幅をする必要があ り、最終段のチタンサファイア結晶は高い平均出力の励起レーザーにより励起される。このため、チタン サファイア結晶に蓄積された熱に起因する応力によりレーザーの波面が歪み、集光性能が劣化し、集光 強度が低下する。従って、レーザー媒質の熱歪みにより、ビーム品質が劣化しないようなレーザーの空間 制御技術開発が必要である。

原子力機構・光量子ビーム利用研究ユニットでは、レーザー駆動粒子加速器などの利用研究に必要 不可欠な高出力、高安定、高コントラスト、高ビーム品質を有する J-KAREN(J-KAREN; JAEA Kansai <u>A</u>dvanced <u>R</u>elativistic <u>ENgineering</u>)高強度レーザーシステムが開発されてきた。本稿では、ピーク出力 80TW(1.5J, 19fs)、かつ 10Hz で動作するレーザーシステムにおける制御技術(高コントラスト化、高ビー ム品質化)の開発について議論する。

2. J-KAREN レーザーシステム

システムの構成を Fig.1 に示す。パルス幅 8.4fs の光パルスを発生できるモード同期チタンサファイア レーザー(Femtolasers, Synergy)を発振器として使用し、パルス拡張器によりパルス幅を 1ns まで伸張し、 シード光とした。シード光は、まず、原理的に背景光の発生が少ない光パラメトリックチャープパルス増幅 器(OPCPA: Optical Paremetric Chirped-Pulse Amplifier)[4-6]にて増幅される。その後、2 つの 4 パスチ タンサファイアチャープパルス増幅器により増幅される。最終段のチタンサファイア結晶は、熱歪みを低 減するために低温に冷却されている。これらの 3 つの増幅器はそれぞれ、出力エネルギー290mJ、800mJ、 6.5J で 10Hz の繰り返しで動作する Nd:YAG グリーンレーザーで励起される。増幅されたレーザー光は最 後にパルス圧縮器により再圧縮される。



Fig.1 Diagram of the J-KAREN laser system.

2. 実験結果

発振器からの出力光を OPCPA、2 段のチタンサファイアチャープパルス増幅器で段階的に増幅する ことにより、2.9Jの出力エネルギーが 10Hzの繰り返し動作、±2%以下の安定性で得られた。この増幅光 をパルス圧縮器により再圧縮することにより、19fsのパルス幅が得られた。パルス圧縮器のスループットは 54%であるので、本レーザーにより出力されるピークパワーは80TW に達する。Fig.2 にクロスコリレーター による増幅ビームのコントラスト特性を示す。メインパルスに対してバックグラウンド成分は 7x10⁻⁹であり従 来よりも 3~4 桁改善された高いコントラストを有していることが分かった。使用したクロスコリレーターには、 λ/2 板、ポラライザー、結晶などの透過媒質があり、今回はその媒質の分散補償は行っていない。これら を考慮すると、実際の出力パルスのコントラストは~10⁻⁹であると考えられる。

Fig.3 に出力ビームの近視野像を示す。空間的に強度の均一な良好なビームパターン(フィリングファ クター: ~1.5)が得られた。このビームを集光することにより、ほぼ回折限界の集光径が得られた。本レー ザーを用いた利用実験として、電子加速実験を行った。Fig.4 に測定した電子のスペクトルを示す。準単





Fig.2 Third-order cross correlation.

Fig.3 Near-field spatial profile.



Fig.4 Measured electron spectrum.

色構造を持つ140MeVの高エネルギー電子ビーム発生に成功した。

3. まとめ

高強度レーザーは世界各国で精力的に研究開発が成されている。レーザーシステムの高強度化が 進むとともに、実際の応用に向けての研究開発に課題が移行しつつある。課題とされているのは、出力レ ーザーパルスの時間構造の改善や空間構造の向上である。

本研究における OPCPA 技術及び結晶冷却技術などの開発により、今までにない時間・空間特 性が向上し、高い時間・空間エネルギー集中性を持つレーザー光の生成が可能となった。

高出力(80TW; 19fs/1.5J)、高安定(±2%)、高コントラスト(〜10⁻⁹)、高ビーム品質(〜D.L.) を有する J-KAREN レーザーにより、小型・高エネルギー粒子発生などの研究がより一層進展す るものと期待される。

謝辞

この研究は文部科学省科学技術振興調整費「光医療産業バレー拠点創出」の一環として実施した。

参考文献

- [1] D. Umstadter, Phys. Plasmas 8, pp.1774-1785 (2001).
- [2] Y. Kitagawa, A. Ogata, E. Miura, K. Koyama, S. Kato, and H. Daido, J. Plasma Fusion Res. 81, pp.240-244 (2005).
- [3] M. Nantel, J. Itatani, A. Tien, J. Faure, D. Kaplan, M. Bouvier, T. Buma, P. V. Rompay, J. Nees, P. Pronko, D. Umstadter, and G. Mourou, IEEE J. Select. Topic. Quantum Electron., 4, pp.449-458 (1998).
- [4] A. Dubietis, G. Jonusaukas, and A. Piskarskas, Opt.Commun. 88, pp.437-440 (1992).
- [5] I. N. Ross, P. Matousek, M. Towrie, A. J. Langley, and J. L. Collier, Opt.Commun. 144, pp.125-133 (1997).
- [6] H. Kiriyama, M. Mori, Y. Nakai, Y. Yamamoto, M. Tanoue, A. Akutsu, T. Shimomura, S. Kondo, S. Kanazawa, H. Daido, T. Kimura, and N. Miyanaga, Opt. Lett. 32, pp.2315-2317 (2007).

3.2 X線レーザーの利用研究及び高繰り返し化の現状について

Development of the applied studies with the x-ray laser and 0.1Hz repetition rate x-ray laser.

 長谷川登、河内哲哉、岸本牧、田中桃子、越智義浩、錦野将元、助川鋼太、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, Momoko TANAKA, Yoshihiro Ochi, Masaharu NISHIKINO, Kouta SUKEGAWA, Hiroshi YAMATANI, Yuichi KUNIEDA, and Keisuke NAGASHIMA.

Quantum Beam Science Directorate, X-ray laser research Group, Japan Atomic Energy Agency.

This paper gives an overview of recent progress of x-ray laser research in Japan Atomic Energy Agency (JAEA). The fully spatial coherent x-ray laser beam at a wavelength of 13.9nm is used for the several applications such as the x-ray speckle measurement in ferroelectric substance. For the purpose of further application experiments, 0.1 Hz-repetition rate x-ray laser driver is being developed, which is based on a Nd:glass zigzag slab amplifier with two beam lines. 0.1 Hz operation of the driver laser and the generation of the x-ray laser at a wavelength of 13.9 nm was succeed.

keyword: Applied studies with the x-ray laser, 0.1Hz repetition rate x-ray laser.

1.概略

日本原子力研究開発機構(JAEA)では、空間コヒーレンスに優れるX線レーザー(XRL:波 長 13.9nm)の発振に成功している[1]。XRL は他のX線光源と比較して、短パルス性(<10ps)、 単色性(d λ/λ <10⁻⁴)、輝度(>10²⁶ photons/s/mm²/mrad²/0.01%BW)に優れた光源であ る。JAEA では、XRL を応用研究に利用するためのビームラインの整備を行い、これまで に「強誘電体(BaTiO₃)のスペックル像の瞬間撮像[2,3]」、「X線干渉計を用いた高密度プラ ズマの計測[4]」等の応用研究を行ってきた。近年では、XRL 装置を外部供用施設とし、外 部研究機関との協力により、「XRL 照射によるクラスターターゲットの新しいイオン化過程 の解明(広島大学)[5]」、「X線スペックル時間相関計測法の開発(JST CREST)」、「XRL 照射による物質の蛍光分光(大阪大学)、(奈良先端科学技術大学院大学)」等と、その応用 の幅を広げている。利用研究を効率的に行うには、XRL の繰り返し性が重要であるが、現 在供用施設として利用している XRL では、励起光源である Nd:glass レーザーの繰返し数 (1 shot / 15 min.)によりその繰り返し性に制限を受けている。JAEA では、利用研究と 並行して XRL の高繰り返し化(1 shot / 10s)に関する研究も重点的に行っている[6]。本文で は、現在利用実験に供給している XRL、応用のための要素技術、高繰り返し XRL の開発の 現状について報告する。



Fig.1) Spatial coherent x-ray laser.

2.コヒーレントX線レーザー装置

図1にコヒーレント XRL 発生の概念図を記す。XRL は固体ターゲットに線状に集光した 励起レーザー(Nd:glass laser)を照射する事により生成される多価イオンをレーザー媒質と して発生する。発振波長は、ターゲット材質の原子番号とイオン化価数によって異なり、 現在主に発生させている波長 13.9nm の XRL では Ni 様銀(原子番号 47、価数 19)を使用し ている。第一ターゲットから発生した XRL は第二ターゲット上の媒質により更に空間コヒ ーレントな成分が増幅される。つまり、第二媒質は増幅率を有する空間フィルターとして 機能する。これにより、出力1µJ、パルス幅 7ps、ビーム広がり角 1mrad 以下の空間コヒ ーレントな XRL が得られている。

図 2 に XRL 実験室の全体図を記す。XRl 装置は幅 15m、長さ 30m の実験室内に配置され、利用実験用に 2 つの専用ポート(スペックル計測用、非線形現象観測用)、2 つの汎用 ポートが用意されている。XRL は Mo/Si の多層膜反射鏡により引き回され、任意のポート



Fig.2) X-ray laser transport line.

から地面に対して垂直の偏光を有する状態で出射される。

3.X線レーザーの応用技術

XRL を用いた利用実験については本論文集の T02&P15(強誘電体の表面構造の観測)、 T03(Xe クラスターの光吸収電離過程の解明)、P18(時間空間分解X線検出器の開発)、 P20(PTCDA分子の発光特性の評価)P23(ZnOの軟X線に対するシンチレーション特性 の評価)にそれぞれの詳細が記されているので、ここでは利用に関する要素技術について 記す。

i) 局所照射技術 XRL は必要に応じて Mo/Si 多層膜球面鏡もしくはフレネルゾーンプレ ート(FZP)を用いて資料上に集光する事が可能である。図 3 に焦点距離 10mm(F20)の FZP を使用した XRL の集光の概略図と計測結果を示す。計測はナイフエッジスキャンにより行 った。計測された集光径は約 0.3µm であり、最大照射強度は約 10¹³W/cm² である。非線 形現象や細胞への照射による損傷効果を観測するに足る照射が可能である。

ii) 同期技術 XRLの励起レーザーはマスタークロック(Tektronix 製 DTG5274)からの基準信号により駆動されており、他のレーザー及び計測器と高い精度で同期している。特に 超短パルス Ti:S レーザーとはジッター1ps 以下の精度で同期しており、pump&probe 実験 に最適なシステムとなっている。





Fig.4) X-ray interferometer.

Fig.3) XRL focusing with FZP.

iii) X線干渉計 Mo/Si 多層膜鏡によるフ レネルバイミラーを用いた干渉計により、高 密度媒質の計測が可能である(臨界電子密度 ~5x10²⁴cm⁻³)。図 4 に概略図を記す。XRL を、バイミラーによりサンプルプラズマを通 過した部位と通過していない部位に空間的 に分割し、結像ミラーを用いて CCD 上で重 ね合わせる事で干渉計を構築し、電子密度分 布の計測に成功している。また、透過型ビー ムスプリッターを用いたマイケルソン型の 干渉計も整備しており、干渉計として使用す る他に、遅延パルス発生器として使用する事も可能である(Oral 6 & Poster 15 参照)。

4.高繰り返しX線レーザー

本システムの開発項目としては、0.1Hz の駆動に耐えうるジグザグスラブアンプシステム と、固体ターゲットの連続供給を可能とする新しいターゲットシステムが挙げられる。図5 にアンプシステムの概略図を記す。通常用いられるロッド状のガラスアンプに代わり、板 状のガラスアンプを用いる事で、冷却面積の拡大による冷却効率の向上が期待できる。更 に、アンプ内部での光路をジグザグにすることで、アンプ内部に残留する熱歪みによる波 面の歪みを低減する事が可能である。現在、ガラスレーザー単体での 0.1Hz の駆動、及び 同システムを用いた Ni 様銀の XRL の発振に成功している。ターゲットシステムは、銀の 薄膜(厚さ 30 or 50µm)を長さ 30 m のテープ状に加工することにより1度のターゲット 交換で 5000 shot 以上の長寿命化が見込まれる。これらを用いることにより、繰り返し数 0.1Hz の XRL 発振の実証を現在行っている。本システムについては、本論文集の Poster14 に更なる詳細が記されている。



FIg.5) 0.1 Hz zigzag slab amp Nd:glass laser system.

5.まとめ

現在我々は、XRLを外部共用施設として公開する事により、XRLの利用研究を推進している。更に、利用実験を効率的に行うための高繰り返し XRLの開発を行っており、平成19年度中に 0.1Hz での XRL 発振を予定している。

参考文献

- [1] M. Tanaka et al., Opt. Lett. 28, p.1680 (2003).
- [2] R. Z. Tai et al., Phys. Rev. Lett. 89, p.257602 (2002).
- [3] R. Z. Tai et al., Phys. Rev. Lett. 93, p.087601 (2004).
- [4] H. Tang et al., Appl. Phys. B 78, p.975 (2004).
- [5] S. Namba et al., Phys. Rev. Lett. 99, p.043004 (2007).
- [6] Y. Ochi et al., Appl. Opt. 46, Issue 9, p.1500 (2007).

3.3 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

難波愼一^{A)}、長谷川登、岸本牧、錦野将治、河内哲哉、 助川鋼太、山谷寛、田中桃子、越智義浩、永島圭介、多幾山憲^{A)}

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

Shinichi NAMBA^A, Noboru HASEGAWA, Maki KISHIMOTO, Masaharu NISHIKINO, Tetsuya KAWACHI, Kouta SUKEGAWA, Hiroshi YAMATANI, Momoko TANAKA, Yoshihiro Ochi, Keisuke NAGASHIMA and Ken TAKIYAMA^{A)}

A) Graduate school of Engineering, Hiroshima University Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy

Agency

Large xenon clusters were irradiated with an intense x-ray laser pulse (λ =13.9 nm, pulse width ~7 ps, intensity $\leq 2 \times 10^{10}$ W/cm²) and their interactions were investigated using a time of flight mass spectrometer. The cross section for inner-shell ionization of Xe 4*d* electron (1.6×10^{-17} cm² at hv=90 eV) is by ten times larger than photoionization of a valence electron (1.5×10^{-18} cm²). For larger clusters, the anomalous enhancement of Xe³⁺ ion yield to Xe²⁺ ion has been observed. This is in contrast to the results of synchrotron radiation experiments involving free Xe atoms, in which Xe²⁺ is the dominant resultant ion species. In this paper, possible mechanisms responsible for the enhancement of the double Auger transition probability in x-ray laser and cluster interaction are described.

Keywords: X-ray laser, Cluster plasma, Inner-shell ionization, Auger decay

1. はじめに

超短パルス高強度レーザーを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 線源などへの応用が期待されている[1]. で は、より短波長レーザーとクラスター相互作用ではどのような現象が起こるのか、という研究は、 真空紫外自由電子レーザー(VUV-FEL)の実現まで未開の領域であった. Wabnitz らは波長 98 nm, パルス幅 100 fs、強度~10¹³ W/cm² の VUV-FEL を Xe クラスターに照射する実験を行い、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]. 短波長レー ザーでは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に関して 様々な理論モデルが提案されている[3-5].

本研究の目的は、さらに波長が短い X 線レーザー(13.9 nm)と Xe クラスター相互作用に伴う光 吸収・電離ダイナミクスを解明することにある. この際特に重要なのは、波長 13.9 nm は内殻電 離を引き起こすのに十分なエネルギーを有している点にあり、最外殻電子の電離断面積よりも一 桁大きい(4d⁻¹: 16 Mb, 5p⁻¹: 1.5 Mb) [6]. さらに、X 線領域での汎用光源である放射光と比較して

格段に強度が高いため、内殻電離誘起プラズマが発生する可能性もある.

今回はX線レーザーをXe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計測し、 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.実験の結果、クラスターサイズを 大きくするとXe³⁺イオンが支配的に発生することが判明した.この原因は単に電子衝突電離によ る多価イオン発生によって説明することはできない.現在最も有力な可能性として、低温高密度 強結合クラスタープラズマ中での電子エネルギー構造の変化、及び、それに伴う内殻電離状態か らXe³⁺イオンへ脱励起可能な遷移数が増えたことに起因する現象と考えている.

2. 実験装置

実験に用いたプラズマ励起軟 X 線レーザーは、Ni 様 Ag を過渡励起させることによって発生 するものであり[7]、波長 13.9 nm ($\Delta\lambda/\lambda \sim 10^4$)、パルス幅 ~7 ps、エネルギー >100 nJ である. 先は焦点距離 1 m の Mo/Si 多層膜球面鏡を用いて行った. 照射強度は 2×10¹⁰ W/cm²以下である.

クラスターは Xe-He 混合高圧ガスを超音速ノズル(スロート径 0.2 mm)から真空中に断熱自 由膨張させて生成した. クラスターサイズはノズル背圧を調整することによって変化させ、 Hagena の経験式から評価したクラスターサイズは 10³~10⁶ atoms/cluster である[8]. クラスタービ ームの時間・空間的密度分布などの特性は高速イオンゲージにて測定を行った.

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の価数、及び、エネルギーは、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2段高速 MCP を用いた.なお、TOF 計測はX線レーザー偏光方向に対して90°の方向から行った.

3. 実験結果

図1にX線レーザーをXeクラスターに照射した場合に得られるTOFスペクトルのクラスター サイズ依存性を示す.この図から明らかなように、クラスターサイズ(M)が増大するとXe³⁺イオ



Fig. 1 TOF spectra for various sizes of Xe clusters subjected to an x-ray laser pulse.



Fig. 2 Dependence of the yield ratio of Xe^{2+} to Xe^{3+} ions on the cluster size.

ンが最も多く発生しているのが分かる. 通常、 Xe^{3+} イオンが生成される内殻ホールの崩壊過程は、 ダブルオージェ(DA)崩壊(光電子と2個のオージェ電子放出)と呼ばれているが、Xe 4d電子の 内殻電離の場合、 $N_{45}OO$ オージェによる Xe^{2+} 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[9]. したがって今回得られた結果は、X線レーザーを大きなクラスターに照射 した場合には DA 崩壊に起因する Xe^{3+} イオンが支配的となることを意味している. 図 2 には Xe^{2+}/Xe^{3+} イオン生成比のクラスターサイズ依存性を示す(放射光で得られた結果は図中黒丸).

この原因としてまず考えられるのは、クラスター内部での光電子・オージェ電子衝突電離による多価イオン発生である.この電子衝突電離の影響を調べるために、本研究では光電離、衝突電離過程を含むレート方程式を解き、発生するイオン量を評価した.図3に規格化した Xe^{q+}イオン比を示す.電子衝突を含む場合に Xe⁺の生成比が増大しているのは、X線レーザー照射によりクラスター内部の原子は数%程度のみ電離され(a)、ほとんどが原子として存在しており、これらが



Fig. 3 Calculated ion yield ratio taking into account (a) just photoionization and (b) photo- and collisional ionization. The experimental result for 5.6 atm and 1×10^{10} W/cm² is shown in (c).

電子衝突により 1 価イオンへと電離したためと考えられる(b). しかしながら、電子衝突電離を 考慮した場合でも、Xe²⁺イオンは Xe³⁺よりも多く、実験での生成比(c)を説明することができない.

今回得られた結果を説明する上で最も有力と考えられるのは、クラスター内部におけるイオン 化ポテンシャル(IP)の低下に伴う DA 崩壊確率の増大である.ここで重要なのは、従来の可視領 域付近にある高強度レーザーと異なり、X 線レーザーでは衝突加熱が抑制されるため、低温高密 度強結合プラズマが発生する点である.実際、このようなクラスタープラズマでは、IP が大きく 低下することが数値計算で示されている[10].もし、クラスター内で IP が数 eV 程度低下した場 合、内殻電離状態である Xe4*d*¹ 準位から Xe³⁺準位への脱励起可能な遷移数が増えることが予想 され、結果として DA 崩壊確率の増大につながると考えられる[11].

4. まとめと今後の課題

X線レーザー照射による Xe クラスターの内殻電離過程を解明するために、イオン TOF 計測を 行った.その結果、クラスターサイズの増大に伴い Xe³⁺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、DA 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、低強度の放射光での同様の実験では観測されていない. 今後、電子 TOF 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特定する予定である.

参考文献

- [1] V. P. Krainov and M. B. Smirnov, Phys. Rep. 370, p.237 (2002).
- [2] H. Wabnitz et al., Nature 420, p.482 (2002).
- [3] R. Santra and C. H. Greene, Phys. Rev. Lett., 91, p.233401 (2003).
- [4] C. Jungreuthmayer et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 38, p.3029 (2005).
- [5] U. Saalmann and J. M. Rost, Phys. Rev. Lett. 89, p.143401 (2002).
- [6] D. M. Holland et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 12, p.2465 (1979).
- [7] T. Kawachi et al., Phys. Rev. A 66, p.033815 (2002).
- [8] O. F. Hagena and W. Obert, J. Chem. Phys. 56, p.1793 (1972).
- [9] T. Luhmann et al., Phys. Rev. A 57, p.282 (1998).
- [10] A.V. Gets and V. P. Krainov, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 39, p.1787 (2006).
- [11] S. Namba et al., Phys. Rev. Lett. 99 p.043004 (2007).
3.4 軟X線平面結像型分光器用多層膜不等間隔溝球面回折格子の開発

Development and application of soft X-ray multilayer VLS spherical gratings for a flat-field spectrograph

小池雅人、¹ 石野雅彦、¹ 今園孝志、¹ 佐野一雄、^{1,2} 笹井浩行、³ 畑山雅俊、⁴ 竹中久貴、⁴ ハイマン, フィリップ A、⁵ ガリクソン, エリック M ⁵

¹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 ²島津エミット(株)、³(株)島津製作所 民生品部、

4NTT アドバンステクノロジ(株) 先端技術事業本部、5ローレンス・バークレー国立研究所

Masato KOIKE¹, Masahiko ISHINO¹, Takashi IMAZONO¹, Kazuo SANO1^{1,2}, Hiroyuki SASAI³,

Masatoshi HATAYAMA⁴, Hisataka TAKENAKA⁴, Philip A. HEIMANN⁵, Eric M. GULLIKSON⁵

¹ Japan Atomic Energy Agency (JAEA), ² Shimadzu Emit Co. Ltd., ³ Shimadzu Corp.,

⁴ NTT Advanced Technology Co., ⁵ Lawrence Berkeley National Laboratory

A multilayer laminar-type holographic grating having an average groove density of 2400 lines/mm was designed and fabricated for use with a soft X-ray flat field spectrograph covering the 0.70-0.75 nm region. The varied-line-spaced grooves pattern was generated by use of an aspheric wavefront recording system and the laminar-type grooves were formed by a reactive ion-etching method. Mo/SiO₂ multilayers sets of three optimized for the emission bands of hafnium M, silicon K, and tungsten M were deposited on the three sub areas on the grating surface. At the centers of the sub-areas the first-order diffraction efficiencies were 18~20% at the respective photon energies. The flat field spectrograph equipped with the grating indicated a spectral line width of 8~14 eV for the emission spectra generated by use an electron-impact x-ray source.

Keywords: Diffraction grating, Multilayer, Diffraction Efficiency, Soft x-ray spectrograph

1. はじめに

汎用平面結像型回折格子分光器[1-3]はプラズマ診断、軟 X 線レーザー研究などで広く利用され ており、回折格子の格子溝間隔が±20%程度変化する不等間隔溝が必要であるが、従来の機械刻 線法[1]によるブレーズド型回折格子だけでなく、最近非球面波露光法[4]を用いて、ホログラフ ィック法[2-3]による迷光、高次光の発生が小さいラミナー型回折格子も実用になっている。しか しながらこれらの回折格子は在来技術である金等の単層膜を蒸着したものであり約 1keV より高 エネルギー側では利用できなかった。 そこで、本研究では汎用平面結像型回折格子分光器(中 心刻線密度:1200本/mm)[1-2]に搭載可能で、1.7keV 付近の光子エネルギーを対象として結像 特性を最適化した平面結像型ラミナー型ホログラフィック回折格子(中心刻線密度:2400本/mm) に 87°という小さい入射角で受光立体角が大きく、回折効率そのものも向上を図る軟 X 線多層 膜をコーテングした回折格子の設計及び生成を行った。さらに、製作した回折格子につき軟 X 線 光学素子評価装置(反射率計)[5,6]で回折効率、総合粗さの評価、電子衝撃型の軟 X 線光源を 用いた結像特性評価装置を用いて結像特性、分解能等の評価を行ったので報告する。

2 平面結像型多層膜回折格子の設計

汎用平面結像型回折格子分光器用平面結像型回折格子分光器の設計指針は以下のとおりである。

-25-

- 測定波長: 0.713 nm (Si-Kα₁)及び 0.698 nm (W-Mα₁), 0.754 nm (Hf-Mα₁)
- (2) 光源サイズ:1 µm × 1µm
- (3) 分光器の配置:汎用型電子顕微鏡用平面結像
 型回折格子分光器[1-3],入射角(α):87°, r = 237mm, D = 235mm

 (4) 刻線密度(1/σ,回折格子中心):2400本/mm 汎用型電子顕微鏡用平面結像型回折格子分光器
 [1-3]の構成を Fig.1 に示す。この条件で収差が極小 になるように最適化した回折格子の曲率半径 R は
 4833mm となった。また、不等間隔溝格子パターン を y-z 平面に投影した y 軸上の点 w での回折格子の



Fig. 1. Schematic diagram of the flat-field soft x-ray spectrograph.[1-3] E: Entrance slit, G: Grating, Σ :Image plane, The areas A, B, and C on the grating stand for the sub-sections coated with the multilayers having different multilayer periods.

溝番号 n を y 軸上での座標値 w の級数展開で表した場合の展開式

 $n\sigma$

$$= w + n_2 w^2 + n_3 w^3 + n_4 w^4 + \cdots,$$
(1)

の係数 n_2, n_3, n_4 [7,8] はそれぞれ n_2 =-3.09888×10⁻³ mm⁻¹, n_3 =+1.13675×10⁻⁵ mm⁻², n_4 = -7.32514×10⁻⁸ mm⁻³ となった。この結果、w = +24 (-24) mm での刻線密度は 2080.431 (2813.855) 本/mm となる。

Fig.2 にこの条件で光線追跡計算を行って得られたスポットダイアグラム(上図)と線プロファイル(下図)を示す。光線追跡は 0.700, 0.715, 0.730, 0.745, 0.760nm の 5 つの中心波長, λ , およびその近傍で分解能 200 に相当する $\pm \lambda / 200$ nm だけ波長がシフトした光線の合計 15 波長について行った。仮定した光源サイズは 1 × 1 μ m²、回折格子の有効面積は 46 (W)× 26(H) mm² であり、各波長につき 500 本の光線を追跡した。このグラフから 0.730 nm を中心として ± 0.03 nm の範囲で 800 以上の分解能が達成されてい

ることがわかる。

次に多層膜回折格子 の模式図を Fig.3 に示 す。簡単のため基板形 状は平面としている。 回折格子の格子定数 (回折格子中心での溝 間隔)はσ、また、軽元 素(または軽化合物)層 と重元素(または重化合





物)層からなる層の組を多数回積層して生成する軟 X 線多層膜の周期長をdとする。軟X線多層膜は2種類の 物質で構成されるが、Fig.3 に示されるように、その2種 の物質の膜厚の合計が周期長dである。多層膜の選定 は測定対象のスペクトルの格子エネルギー(波長) で高い反射率を呈する物質対を用いる必要がある。

Fig.4はこれまでに製作した W/C 及び Co/SiO₂ 多 層膜平面回折格子(格子定数:1200本)の回折効率 測定結果[9]である。図からわかるように 2keV 近傍 では双方の回折格子の回折効率が落ち込んでいる。



Fig.3. Schematic diagram of multilayer laminar-type grating.



Fig. 4. Measured diffraction efficiencies of the W/C and Co/SiO₂ multilayer gratings. [9]



このため、2keV付近での平面結像型回折格子分光器に装着することを仮定した入射角において 高い反射率を示す物質対を見出すための数値計算を物質定数[10]に基づいて再度行った。Fig.3に 2keV付近で高反射率が得られるとみられるPt/C、Mo/C、Co/SiO₂、Mo/SiO₂の物質対を用いた場合 の多層膜鏡のs-偏光に対する反射率のグラフを示す。計算の条件としては周期長*d*=8nm、軽元素 (または軽化合物)層と重元素(または重化合物)層の比は6:4である。また総層数は60層(30 対)である。図から光子エネルギー2keV付近ではMo/Cが最も高い約60%の反射率を与えることが わかる。また、1.8keV付近ではMo/SiO₂もMo/C に匹敵する50%以上の反射率を示している。そこ で、今回はイオンビームスパッタリング方式の蒸着装置おいてスパッタリング率が似通った物質 対であるMo/SiO₂多層膜を採用することとした。

多層膜は 3 つの測定波長のそれぞれで高い回折効率を得るために回折格子面上を Fig.1 に示し たように 3 つエリア A,B,C に分割し、それぞれのエリアが Hf-Mα1、Si-Kα1、W-Mα1 に対する 最適膜周期長を計算で求めこの値を狙って蒸着した。 X線回折(Cu-Kα、0.154nm)で求めた 膜周期長はエリア A,B,C に対して 6.12±0.01nm (6.11nm), 5.88±0.05 nm (5.89nm), 5.87±0.07 nm (5.83 nm)であった。括弧内は計算で求めた最適設計値である。

3 平面結像型多層膜回折格子の評価

回折効率測定は立命館大学 SR センターBL-11 に設置されている軟 X 線光学素子評価装置[5]に おいて Surface Normal Rotation (SNR)型分光器[6]を用いて行った。さらに、製作した多層膜回 折格子の総合的な粗さを見積もるため、各エリアにおける理論回折効率と実験により得られた回



Fig. 6. Comparison between measured (black squires) and calculated (open circles) diffraction efficiencies of the Mo/SiO₂ multilayer grating. The figures (a), (b), and (c) correspond to the areas A,

折効率の差が Debye-Waller 因子[11] で表されるとして計算及び実験で得ら れた回折効率の比較を行った (Fig.6)。 図中 σ_R は総合的な粗さの標準偏差の 値で、 $\sigma_R=0 \operatorname{nm}_{RMS}$ の曲線は計算コー ド[12]で計算した理論的な回折効率、 その他の曲線は $\sigma_R=0 \operatorname{nm}_{RMS}$ の回折効 率に入射角 87°、波長 λ 、総合粗さが σ_R のときの Debye-Waller 因子を乗じた 理論的な回折効率を示す。実験値との 比較から製作した回折格子の総合的な 粗さを約 0.8 nm_{RMS} と見なせることが わかる。



Fig. 7. The emission bands of Hf-M, Si-K, and W-M. The intensities of the respective spectra were normalized to the intensities of the peak intensities of Hf-M α_1 , Si-K α_1 , and W-M α_1 lines.

Fig.7 に Hf、Si、W、Pt をアノード とする電子衝撃型軟 X 線光源、背面照

射型 CCD 検出器を用いた分光器における発光スペクトルの測定例を示す。入口スリット幅、高 さはそれぞれ 25µm、10mm であり、CCD 検出器のピクセルサイズは 20µm×20µm である。なお、 縦軸は各アノードの場合に得られたピーク強度で規格化してある。Si-K αの半値幅から計算した 分解能は約 145(12eV)で、理論的値の約 10%である。この主原因は入口スリット幅、検出器のピク セルサイズ(20µm)でこれに収差など様々な要因が加わったと考えられる。

検出器のピクセルサイズに対応する波長幅は約0.003nmであり、0.7nm付近で分解能として約230 となる。したがってこの分光器としては十分期待すべき性能を達成したと言える。

本研究の一部は文部科学省リーディングプロジェクト「ナノスケール電子状態分析技術の実用 化開発」として行なわれた。ここに記し謝意を表します。

4 参考文献

- 1. N. Nakano, H. Kuroda, T. Kita, and T. Harada, Appl. Opt. 23, pp.2386-2392 (1984).
- M. Koike, T. Namioka, E. Gullikson, Y. Haradad, S. Ishikawa, T. Imazono, S. Mrowka, N. Miyata, M. Yanagihara, J. H. Underwood, K. Sano, T. Ogiwara, O. Yoda, S. Nagai., Proc. SPIE, 4146, pp.163-170 (2000).
- 3. M. Koike, K. Sano, E. Gullikson, Y. Harada, H. Kumata, Rev. Sci. Instrum., pp.1156-1158 (2003).
- 4. T. Namioka and M. Koike, Appl. Opt., 34, pp.2180-2186 (1995).
- M. Koike, K. Sano, O. Yoda, Y. Harada, M. Ishino, N. Moriya, H. Sasai, H. Takenaka, E. Gullikson, S. Mrowka, M. Jinno, Y. Ueno, J. H. Underwood, T. Namioka, Rev. Sci. Instrum. 73, pp.1541-1544 (2002).
- M. Koike, K.Sano, Y. Harada, O. Yoda, M. Ishino, K. Tamura, K. Yamashita, N. Moriya, H. Sasai, .M. Jinno, T. Namioka, Proc. SPIE, 4782, pp.300-307 (2002).
- 7. T. Namioka and M. Koike, Nucl. Instr. Methods, A319, pp.219-227 (1992)
- 8. M. Koike and T. Namioka, Appl. Opt., 33, pp.2048-2056 (1994).
- 9. M. Ishino, P. A. Heimann, H. Sasai, M. Hatakeyama, H. Takenaka, K. Sano, E. M. Gullikson, and M. Koike, Applid Optics., 45, pp.6741-6745 (2006).
- 10. B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis, At. Data Nucl. Data Tables 54, pp.181-342 (1993).
- 11. E. Spiller, Soft X-ray Optics (SPIE Press, Bellingham, WA, 1994), pp.111-114.
- 12. GSOLVER V4.2c, Grating Solver Development Co., Allen, Texas, U.S.A.

3.5 ナノスケール X線発光分析の新展開-X線多層膜回折格子の応用-

A new trend in soft-X-ray emission spectroscopy based on TEM

寺内正己,米田雄一

東北大学 多元物質科学研究所 〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

Masami TERAUCHI, Yuichi YONEDA

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University 2-1-1, Katahira, Aoba, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan

小池雅人,石野雅彦,今園孝志

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 〒619-0215 京都府木津川市梅美台 8-1

Masato KOIKE, Masahiko ISHINO, Takashi IMAZONO

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency 8-1, Umemidai, Kizugawa, Kyoto 619-0215, Japan

We have been developing a compact WDS spectrometer without a moving mechanism for a TEM. It can measure an energy range from 60 eV to 1200 eV. For applications to materials science, it is important to extend the measurable energy range to a higher energy region. As a first step, a spectrometer has designed and manufactured by using a Mo/C-multilayer coated grating. The spectrometer can measure an energy up to about 2 keV. The spectrometer gives a FWHM value of 13 eV for Pt-M α emission at 2050 eV.

Keywords: Soft-X-ray emission spectroscopy, Transmission electron microscope, Multilayer-coated grating

1. はじめに

近年、微細化するデバイス評価やナノスケール機能材料解析では、各種分析法と顕微鏡法の融 合技術の必要性が高まっている。その中で、電子顕微鏡は、光学顕微鏡程度の倍率から原子直視 分解能までの広い倍率可変範囲もち、構造解析・電子分光・X線分光を融合させるためのプラッ トフォームとしての期待が高い。この電子顕微鏡に、不等間隔溝回折格子を用いた軟X線発光分 光器の装着による価電子状態解析技術の導入が寺内らにより始められた¹⁾。この軟X線分光器の 改良のため、H14年より東北大と原子力機構とで共同研究が続けられてきている²⁾。 この開発 テーマは、文部科学省のリーディングプロジェクトの一つとして取り上げられ、企業での製品化 を目標として研究・開発が展開されてきた(H16-H18年度)^{3,4)}。そこでは、エネルギー領域 60-1200eVの分光が可能な汎用型の軟X線分光器を完成させた。 その一方、材料分析の現場か らは、分析領域をもっと高エネルギー領域まで広げられないかとの要望が寄せられた。それに応 えるため、多層膜回折格子を用いた分光系について検討した。その結果に基づいて回折格子・分 光器を試作し、電子顕微鏡を用いた実装テストを行った⁵⁾。

2. 多層膜回折格子分光器

今回の開発では、自動車の排気ガス清浄化に用いられている Pt 触媒への応用を目指し、Pt-M 発光(2050eV)が測定すること を目的とした。この観点から、2keV 付近で回折効率の高い Mo/C 多層膜回折格子を作製することにした。回折格子基板に はホログラフィック露光技術を用いたラミナータイプの不等 溝間隔回折格子(島津製作所)を用いた。Mo/C 多層膜の形成 は、NTT アドバンストテクノロジに依頼した。図1は、作製し た分光ユニットの写真である。各回折格子は、下から Au コー トラミナー(刻線密度 1200l/mm)、Ni コートラミナー(刻線 密度 1600l/mm)、Au コートラミナー(2400l/mm)、Mo/C 多 層膜ラミナー(2400l/mm)となっている。多層膜回折格子は、 約 5nm 周期の Mo/C 相が約 30 周期形成してある。この 4 つの 回折格子を切り替えることで、0.06KeV から 2keV 多層膜回折 格子の回折強度は X 線の入射角に敏感なため、多層膜回折格子



には専用の角度微調整機構を付与した。図2は、透過型電子顕微鏡に分光器を装着した概観写真である。試料位置(X線発生源)から回折格子および回折格子から CCD 検出器までの距離は、そ



れぞれ、約240mm、約500mm である。集光ミラーには、Si ウェファの鏡面上にAuのスパッタ 膜を形成したものを用いた。測定する X 線の取出し方向を水平から35 度上方に設定してあるた め、通常の電子顕微鏡実験で行われる試料傾斜(±25 度程度)の範囲では X 線分光測定に影響は ない。

3. 電子顕微鏡への実装実験

図 3(a)に、図 2 の装置を用いて測定した Pt-M [×10⁺⁵] 発光スペクトルを示す。測定条件は、照射電流量 3nA、測定時間 10 分であった。得られたスペクト ルでは、Pt-Maだけでなく強度の弱い Pt-Mβピー クも観測されており、試作した多層膜回折格子の 迷光が低くバックグラウンドの低い分光系である ことが分かる。Pt-Maのピーク半値幅で 13eV が 得られており、汎用の電子顕微鏡用 X 線分光器で ある EDS に比べると 5 倍以上の高い分解能が得 られている。

図 3(b) に Si-K 発光スペクトル (照射電流量 3nA、測定時間3分)を●示す。同時に示してあ る〇は、現有の汎用 X 線分析装置(EDS) でえた スペクトルである。今回試作した多層膜回折格子 を用いた分光は、汎用 EDS に比べ、半値幅で 1/4.4 倍の 19eV が得られている。Pt-M の 13eV に比べ て値が大きいのは、多層膜の干渉条件を Si-K 発光 のエネルギーに最適化するために多層膜回折格子 の角度を変えた結果、回折格子としての結像条件 が最適なものからずれてピントが外れた(収差が 大きくなった)ためと考えられる。このことは、 多層膜回折格子を実用化する上での課題として 「回折効率を向上させるエネルギー帯の幅を広げ る|事が重要であることが分かる。これは、多層 膜の積層方向の周期を少しずつ変化させることで 実現しようと、研究が行われている。



⊠ 3 (a) Pt-M emission spectrum. A FWHM value of 13eV has obtained.





 \boxtimes 3 (b) Si-K emission spectra of the present XES instrument (\bigcirc) and a conventional EDS (\bigcirc).

4.まとめ

これまで開発してきた電子顕微鏡用軟 X 線発光分光器の測定領域上限を 1.2keV から 2keV 程 度まで広げるため、Mo/C 多層膜を積層させた斜入射分光系を設計・製作した。その性能を調べ るため、電子顕微鏡への実装テストを行い Pt-M 発光スペクトルで 13eV の半値巾を得た。Si-K 発光スペクトルの測定との比較から、多層膜回折格子を実用化する上での課題として「回折効率 を向上させるエネルギー帯の幅を広げる」事が重要であることが明瞭となった。

本開発で採用している波長分散型分光系では、波長の長い(エネルギーの低い)領域での分解 能が高く電子状態解析法として有用である一方、発光効率が低いため、検出効率向上が重要であ る。したがって、低エネルギー領域用の回折格子に多層膜構造を形成することで高効率化し、元 素検出と状態分析が行える分光系開発が今後必要と考えられる。

参考文献

- [1] M.Terauchi, H.Yamamoto and M.Tanaka: J. Electron Microscopy, 50 (2001) p.101.
- [2] M.Terauchi and M.Koike: Microsc. Microanal., 9 suppl.2 (2003) p.894.
- [3] M.Terauchi, M.Koike, K.Fukushima and J.Kimura: Microscopy & Microanalysis, 12 suppl.2 (2006) p.866.
- [4] M.Terauchi, M.Koike, K.Fukushima and J.Kimura: 16th International Conference on Microscopy (Sapporo, 9/3-8), p.892 (2006).
- [5] M.Terauchi, Y.Yoneda and M.Koike: Microscopy & Microanalysis, 13 supple.2, pp.166-167(2007).

3.6 Laser generated protons and applications

O. Willi, T. Toncian, M. Amin, R. Jung, T. Kudyakov and A. Piphal, Heinrich Heine Universität Düsseldorf, D-40225 Düsseldorf, Germany

M. Borghesi, C. Cecchetti, L. Romagnani and P.A. Wilson The Queen's University Belfast, Belfast BT7 1NN, Northern Ireland, United Kingdom

J. Fuchs, P. Antici, P. Audebert and E. Brambrink and E. d'Humières LULI, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

A novel technique for focusing and energy selection of high-current, MeV proton/ion beams is presented. This method employs a hollow micro-cylinder that is irradiated at the outer wall by a high intensity, ultra-short laser pulse. The relativistic electrons produced are injected through the cylinder's wall, spread evenly on the inner wall surface of the cylinder and initiate a hot plasma expansion. A transient radial electric field $(10^7-10^{10} \text{ V/m})$ is associated with the expansion. The transient electrostatic field induces the focusing and the selection of a narrow band component out of the broadband poly-energetic energy spectrum of the protons generated from a separate laser irradiated thin foil target that are directed axially through the cylinder. The energy selection is tuneable by changing the timing of the two laser pulses. Computer simulations carried out for similar parameters as used in the experiments explain the working of the micro-lens.

Keywords: Laser accelerated protons, proton focusing, quasi mono-energetic proton beam, laser triggered proton micro-lens

1. Introduction

During the interaction of ultra-intense laser pulses with thin solid foil targets (I $>10^{19}$ W/cm²), a considerable fraction of the laser energy is deposited into highly energetic protons. A beam of protons with energies up to tens of MeV is ejected from the rear side perpendicular to the surface of the target [1,2]. The protons originate from hydro-carbon impurities located on the surfaces of the target, so that proton beams are observed even when using targets which nominally do not contain hydrogen. The protons are accelerated via TNSA (target normal sheath acceleration) mechanism [3-5]. The characteristics of the proton beam are of small source size, low divergence, short duration and of a large number density [6,7]. These laser produced proton beams have opened up new opportunities for major applications in scientific, technological and medical areas. The proposed applications include energy production via thermonuclear fusion [8], cancer therapy [9], production of radioactive particles for medical diagnosis [10] and the detection of electric and magnetic fields in plasmas [5,11,12]. However, reduction and control of the angular divergence and of the energy spread of these pulses are essential requirements for some of these applications. So far, mainly target engineering techniques have been employed to overcome these short-comings. For example, geometrical focusing of laserdriven protons has been attained by using hemispherical targets [13]. However, this technique has been limited so far to focal distances of a few mm, and to the low energy component of the proton spectrum. In addition, recently a quasi-monochromatic acceleration from laser irradiated microstructured targets has been reported [14,15]. In these approaches, the focusing or energy selection effect is achieved by directly acting on the source. As a consequence, these techniques rely on relatively complex target fabrication. An alternative approach that provides a tuneable, simultaneous focusing and an energy selection of MeV proton beams has recently been proposed and demonstrated [16,17]. The new approach decouples the beam tailoring stage from the acceleration stage allowing for their independent optimization. The technique employs electric fields generated for a very short time within a micro-cylinder irradiated by a short, intense laser pulse. These fields can focus efficiently a proton beam directed along the axis of the cylinder. An important point is that only protons reaching the cylinder while the fields are active (i.e. only protons with a specific velocity) will be focused. By spatial filtering out the unfocused part of the beam, it is therefore possible to select only protons that have the same velocity producing a narrow band energy spectrum. This paper describes some characteristics of the laser-triggered micro-lens.

2. Experimental arrangement

The experiment was carried out at the LULI Laboratory, employing the 100 TW laser operating in the Chirped Pulse Amplification mode (CPA). After amplification, the laser pulse was split into two separate pulses that were then recompressed in separate grating compressors. This allowed the use of two pulses (CPA₁ and CPA₂) of 350 fs and 350 fs to 1.2 ps duration. The short pulses are preceded by an Amplified Spontaneous Emission (ASE) pedestal starting a few ns before the high intensity peak. The main-to-prepulse contrast ratio was better than 10^7 at 20 ps before the main-pulse. The delay between the two CPA pulses was controlled optically with picosecond precision. The CPA₁ pulse was focused with an f/3 Off Axis Parabola (OAP) onto a 10 µm thick Au foil target resulting in an intensity of $3x10^{19}$ W/cm² and accelerating a high-current, diverging beam of up to 15 MeV protons. The CPA₂ pulse was focused by a similar parabola onto a hollow cylinder to an intensity of $3x10^{18}$ W/cm². The proton beam from the first foil was directed through the cylinder and detected with a stack of Gafchromic Radiochromic Films (RCF, a dosimetric detector) positioned at a variable (from 2 to 70 cm) distance from the proton source (see figure 1).



Figure 1: Schematic of the micro-lens device. A proton beam accelerated from a planar foil by the CPA₁ laser pulse propagates through a hollow cylinder side-irradiated by the CPA₂ pulse.

Generally, the cylinder made of dural was 3 mm in length, 700 μ m in diameter and 50 μ m in wall thickness. The distance between the proton production foil and cylinder and the distance between the cylinder and detector were varied throughout the experiment. At a source-cylinder distance of 1 mm the proton flux increase due to focusing by the micro-lens was so strong that saturation of the film occurred. Quantitative data could only be obtained when the cylinder was moved to 4 mm from the proton foil, in order to collect a smaller part of the diverging proton beam. In this case, the distance from the proton-producing foil to the CPA₂ irradiation point on the cylinder was 5 mm (standard experimental configuration). The RCF stack was used to measure the proton beam divergence. It was shielded with an 11 μ m Al foil allowing protons with energies above 1.5 MeV to be recorded. In some cases, a central mm-sized hole was cut through the RCF to allow downstream high spectral resolution measurements using a magnetic spectrometer with a 0.6 T permanent magnet. The spectral resolution determined by the slit width and the dispersion of the spectrometer is 0.2 MeV at 6 MeV and 0.7 MeV at 15 MeV.

3. Experimental results

Figure 2A shows different layers (the 5th and 6th in the stack, corresponding to protons of 9 and 7.5 MeV respectively) of an RCF pack recording the proton beam after its propagation through a laserilluminated dural cylinder in the standard experimental configuration). As expected, no focusing effect is observed for the 9 MeV protons. Indeed, the electric field is triggered by the CPA₂ laser pulse ~20 ps after these protons exit the cylinder. For the 7.5 MeV protons, the electric field just develops while these protons are close to exit the cylinder and a small spot about 600 μ m (FWHM) in diameter is seen on the RCF at the centre of the cylinder's shadow. In this case the proton flux within the spot at the film plane is increased by up to 12 times compared to the unfocused part not captured by the cylinder (Figure 2B). Focal spots as small as 200 μ m have been observed depending on the detector position. In this case the proton flux within the spot at the film plane is increased by up to 15 times compared to the unfocused part not captured by the cylinder. The evolution of the beam size, as a function of the propagation distance from the cylinder for the 7.5 MeV proton component is illustrated in figure 2C. Note that for this energy, the beam size is only 8 mm after 70 cm of propagation whereas freely propagating, the size of the beam would have been 240 mm.



Figure 2: (A) RCF layers showing the proton beam focusing effect due to laser irradiated cylinder. The protons with an energy of 9 MeV pass through the cylinder before the electric field is present showing no focusing whereas the divergence of the protons with an energy of 7.5 MeV is strongly reduced by the electric field that has developed inside the cylinder. The shadow of the cylinder and of the 50 μ m W holding wire can clearly be seen. (B) Flux increase with respect to the unfocused flux for 7.5 MeV protons as deduced from the layer shown in (A). (C) Evolution of the FWHM of the proton beam, for protons with an energy of 7.5 MeV. The circles correspond to the case without micro-lens (free-space divergence), the diamonds to the particle-tracer simulation in the fields given by the PIC simulation, and the squares to the experimental results using the micro-lens.

Figure 3 shows the spectrum obtained, again for the same standard experimental configuration, using the magnetic spectrometer, with an entrance slit of 250 μ m positioned 70 cm away from the proton source. As a reference, we also show a typical exponential spectrum collected in the same conditions, but without the micro-lens. The data 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 experience the focusing fields for ~5 ps before exiting the cylinder. Note that an energy spread of 0.2 MeV was obtained. Hence for the energy peak around 6 MeV, a $\delta E/E$ of ~ 3% was achieved.

The energy spread was, however, limited by the resolution of the spectrometer. As shown in figure 3, the simulations performed for the same conditions as in the experiment, suggest that the spectral width of the peak is around 0.1 MeV and hence narrower than demonstrated by the experimental spectrum shown. By varying the optical delay between the laser beams, the location of this peak on the energy axis can be tuned selectively, therefore allowing to tailor the energy distribution of the transmitted beam, a necessary step for many of the applications mentioned earlier. We would like to emphasize that with this approach focusing and energy selection are provided simultaneously.



Figure 3: Experimental proton spectra without micro-lens (solid line) and with the micro-lens (dashed line) and the simulated proton spectrum (dotted lines). The simulated spectrum was obtained by tracing 5000 protons through the fields predicted by the simulations.

In order to investigate the underlying physics of the micro-lens cylinders with either one or two gaps along the axis with a width between 100 and 200 μ m were irradiated. With the gap in the cylinder the focusing characteristics were changed. The focused proton spots are not symmetric anymore as shown in figure 4. These data indicate that electric fields are responsible for the focusing of the protons.

4. Simulations

For better understanding of the micro-lens 1D simulations of field generation at the micro-lens' walls and 3D test-particle simulations of proton propagation through the micro-lens were performed. The protons passing along the axis of the cylinder can either be focused by a radial electric or azimuthal magnetic field. The simulations were performed in two steps using the CALDER code [18]. We used 1D simulation, corresponding to the transverse direction to the cylinder's axis to simulate directly the plasma expansion from a 700 µm diameter cylinder. The cylinder, which has a thickness of 50 µm, is irradiated by a laser pulse at an intensity 3×10^{18} W/cm², and with a pulse duration of 350 fs. Finally we propagate protons in the cylinder through the space and time dependent simulated fields, using a proton beam with the experimental divergence, energy spectrum and experimental time delay. The initial temperature of the hot electrons considered in the PIC simulation is 400 keV, as given by the laser's ponderomotive potential in the laser field at the irradiance used. The initial electron density at the cylinder's wall is estimated by considering that a 40 % (inferred from experimental measurements) fraction of the laser energy is converted into hot electrons and then that these are spread evenly on the cylinder's walls. This results in a hot electron density of $\sim 6 \times 10^{16}$ cm⁻³. We assume that when the plasma expansion starts, the field obtained by the PIC simulation is the same for the total length of the cylinder e.g. for all $x \in [0, 3000 \ \mu m]$. As in the experiment, the protons are produced at $x = -4000 \ \mu m$ and $y = 2547 \mu m$, and they propagate through the cylinder. Figure 5 shows simulated trajectories for 100 protons at 7.6, 6.25 and 4.9 MeV. The 7.6 MeV protons exit the cylinder before it is triggered (Fig. 5a). These protons retain their initial large divergence. The 6.25 MeV protons are in the cylinder when it is triggered, although close to its end. These protons are



Figure 4: Laser irradiated cylinders with slits along the axial direction shows that the focus of the proton beam is degraded. A) with one gap, B) with two gaps.

clearly collimated as seen in figure 5b and therefore create a strong peak at the plane of the RCF (3.5 cm from source). The protons 4.9 MeV (figure 5c) 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.



Figure 5: a) Trajectories for 7.6 MeV, b) 6.25 MeV and c) 4.9 MeV. Note that the two axes (in units of microns) in all three simulations are not scaled in the same way.

5. Discussion

The computational results support the scenario in which laser-triggered transient fields drive the selective deflection of the protons. The physical mechanisms behind the micro-lens operation are as follows: when the laser pulse irradiates the outer side of the cylinder, it produces a population of hot electrons which penetrate through the wall and spread very quickly over the inner surface of the cylinder. They then exit into vacuum resulting in an electron cloud in the surface surrounding area. The associated space-charge field is large enough to ionize the material at the cylinder surface and to create plasma. This results in a cylindrical plasma layer with high electron temperature. The plasma begins to expand towards the cylinder axis, driven by a hot electron sheath that extends over a Debye length ahead of the plasma.

The radially symmetric ambipolar electrostatic field associated with the plasma front is responsible for the variable focusing of the protons propagating along the cylinder's axis. The poly-energetic protons arrive in the cylinder at different times due to their different velocities, with higher energy protons crossing the cylinder at earlier times. Protons passing through the micro-lens before it is triggered do not experience any fields and are therefore not deflected. Protons that are crossing the cylinder and are close to its end when it is triggered and therefore experience the fields for only a short time will be collimated. Lower energy protons will experience a larger cumulated field along their propagation through the cylinder. They are therefore focused at a short distance from the exit plane of the microlens and diverge strongly after focus. These results in a diluted beam on the RCF stack positioned a few cm away and in the strong dip observed in the spectrum of figure 5 below 6 MeV.

The micro-lens is easily tuneable through the energy spectrum. This is because the different energy components of the proton beam, separated by time-of-flight dispersion, transit through the micro-lens at different times, and are affected differently by the transient electric fields present in the lens. Some energy components are focused, some are only collimated, and the focusing distance is energy-dependent, allowing for energy selection by spatial filtering of the focused component. An intrinsic tuneability is provided by simply laser-triggering the micro-lens at different times. This tuneability was observed experimentally.

6. Conclusions

We have presented a novel technique for focusing and energy selection of high-current MeV proton/ion beams. The laser driven hollow micro-lens represents a major step in making the laser-accelerated proton/ion sources more attractive for various applications. While retaining the exceptional beam quality of laser-accelerated proton/ion sources, the micro-lens provides a solution to two of the main obstacles still preventing widespread applicability of these sources, namely their broad divergence and their large energy spread. The device applies to laser-driven protons as well as any ion beam. This method does not involve complex target engineering and alignment procedures and decouples the focusing and energy selection steps from the generation of the proton or ion source. In addition, the focusing effect can be scaled up to very high ion energies as discussed in [16].

Acknowledgement

We acknowledge fruitful discussions with L. Gremillet, T. Grismayer, S. Gordienko, E. Lefebvre, P. Mora and A. Pukhov. We thank Erik Lefebvre for allowing us to use his PIC code CALDER, and the CEA/DAM for the simulations we performed on the CCRT computers. We acknowledge the expert support from the technical teams at LULI. This work has been supported by EU-Grant No. HPRICT 1999-0052, Grant No. E1127 from Région Ile-de-France, and DFG TR18 and GK1203, and partly by the QUB-IRCEP scheme and DAAD.

References

- [1] E. Clark et al., Phys. Rev. Lett. 84, pp.670-673 (2000).
- [2] R. Snavely et a., Phys. Rev. Lett. 85, pp.2945-2948(2000).
- [3] S.C. Wilks et al., Phys. Plasmas 8, pp.542-549 (2001).
- [4] P. Mora, Phys. Rev. Lett. 90, pp.185002-1-185002-4 (2003).
- [5] L. Romagnani et al., Phys. Rev. Lett. 95, pp.195001-1-195001-4(2005).
- [6] M. Borghesi et al., Phys. Rev. Lett. 92, pp.055003-1-055003-4 (2004).
- [7] M. Borghesi et al., Laser Part. Beams 23, pp.291-295 (2005).
- [8] M. Roth et al., Phys. Rev. Lett. 86, pp.436-439 (2001).
- [9] S. Bulanov et al., Phys. Lett. A 299, pp.240 -247 (2002).
- [10] I. Spencer et al., Nucl. Inst. And Meth. In Phys. Research B 183, p.449 (2001).
- [11] M. Borghesi et al., Phys. Rev. Lett. 88, pp.135002-1-135002-4 (2002).
- [12] M. Borghesi et al., Rev. Sci. Instrum. 74, pp.1688-1693 (2003).
- [13] P. Patel et al., Phys. Rev. Lett. **91**, pp.125004-1-125004-4 (2003).
- [14] M. Heglich et al., Nature **439**, pp.441-444 (2006).
- [15] H. Schwoerer et al., Nature **439**, pp.445- 448 (2006).
- [16] T. Toncian et al., Science **312**, pp.410-413 (2006).
- [17] O. Willi et al., Laser and Particle Beams 25, pp.71-77 (2007).
- [18] E. Lefebvre et al., Nucl. Fusion 43, pp.629 -633 (2003).

3.7 連携融合研究「ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学」の現状 Present status of joint research on mono-energy quantum beam science with PW lasers

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター Institute of Laser Engineering, Osaka University 西村博明 Hiroaki Nishimura

Key words: Ultra-high intensity laser, quantum beam generation

「ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学」研究は文部科学省・研究推進事業「高出力 レーザーによる高エネルギー密度状態の科学の開拓」の一テーマとして採択され、平成18年4月 より5ヶ年計画で開始された。ペタワットレーザーを代表とする超高強度レーザーを集光照射す ることにより発生した高温プラズマからは、テラヘルツからX線、γ線にわたる広範囲の電磁波 や、百億電子ボルトを超える高エネルギー粒子(電子、陽電子、イオン)ビームが放出される。 特にプラズマ航跡場や原子内殻励起放射、X線レーザー等を用いればこれらの量子ビームを極め て狭いエネルギー範囲に高効率に集中させることができ、医療診断、放射線治療、薬物検出、非 破壊検査等への幅広い応用が期待されるため、安全・安心社会の実現へ向けた国際競争力のある 科学技術の発展に貢献できる。

大エネルギーペタワットレーザーとこれを用いた高エネルギー密度プラズマ研究に力量を有す る大阪大学レーザーエネルギー学研究センターと、高繰り返しペタワットレーザーや放射光に代 表される先進光科学にコアコンペテンスを有する原子力機構関西研が相補的に連携することによ り、各々一研究機関では達成できない広いフロンティア物理領域を眺望できる研究が初めて実現 でる。これらにより、量子ビームの高輝度単色化に必要なレーザープラズマ相互作用の物理やエ ネルギー則、ならびに量子ビームの高性能化のためのレーザー技術、プラズマ制御技術の革新と その利用がもたらされ、また、この連携研究を通して世界的競争力のある研究者・技術者の育成 が期待できる。このような理念の元、下記の5つの研究班を組織し、平成18年度の活動を行って きた。各班の研究課題を整理すると次のようになる:

1)ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学に関する研究動向調査

超高強度レーザーとこれが生み出す高エネルギー密度状態の物質から放射される単色エネル ギー粒子や高輝度電磁放射の発生物理とその応用研究はレーザー工学、プラズマ物理、プラズマ 診断学、原子物理、X線光学、加速器、生体バイオ研究、宇宙物理、核融合など深く連携してお り、新しい学問と応用分野への波及に大きな期待が寄せられている。そのため、高出力レーザー 装置を有する世界の主だった研究所でも本研究の対象とする課題は精力的に研究が展開されてお り、国際会議やワークショップでは、プレナリーや招待講演、シンポジウム企画などの対象課題 として取り上げられることがしばしばです。そのため、このような情報交換の場を活用し、本事 業の成果を発表すると供に内外の研究動向を調査し、ウェブページ (http://www.ile.osaka-u.ac.jp/renkei yugou/)を通して広く一般に公開している。

本研究班は、連携融合事業の中にあって、この研究動向調査を実施し、総括班に適宜報告することにより、企画運営を円滑に行う目的としている。

2)ペタワットレーザーを用いた単色粒子発生

ペタワットレーザー照射プラズマからの単色高エネルギー粒子発生に関する実験ならびに粒子 シミュレーションを通じて、粒子発生の物理を明らかにすると供に、その高効率化を図るための 手法を開拓する。実験では阪大レーザー研ペタワットレーザーを用いて、照射強度とビームエネ ルギーとの関係などのエネルギー比例則を求めつつ、実用化において必要な要素に関し、原子力 機構関西研の高繰り返しペタワットレーザーを活用してビーム伝送やその制御に関する研究を実 施する。具体的な研究課題を列記すると次のようになる。

- ・単色イオンビーム加速の物理
- ・レーザープラズマ相互作用、時空間制御パルス、新ターゲット
- ・レーザー加速による単色GeV電子の実現
- ・GeV から TeV を実現するためのエネルギー比例則の解明
- ・粒子源としての利用条件の確立

3) 高エネルギー単色 X 線発生と利用の実証

高エネルギー粒子発生と同様、ペタワットレーザー照射プラズマからの単色高エネルギーX線 発生に関する実験ならびに粒子コード、放射流体コード、原子コードを統合したシミュレーショ ンを通じて、X線、γ線発生の物理を明らかにすると供に、その高効率化を図るための手法を開 拓する。実験では阪大レーザー研ペタワットレーザーを用いて、照射強度とX線、γ線のエネル ギーとの関係などのエネルギー比例則を求めつつ、実用化において必要な要素に関し、Spring-8 の単色X線を用いた利用の効果実証を行い、原子力機構関西研の高繰り返しペタワットレーザー を活用してX線ビーム伝送やその制御に関する研究を実施する。具体的な研究課題を列記すると 次のようになる。

- <X線利用の効果実証>
- ・既存単色X線源(Spring-8)を利用して提唱されている利用法を実証する(被破壊検査、など)
- ・X線ハンドリングのための光学素子開発(伝送、集光、波長選択、など)
- <レーザーによるコンパクト化>
- 内殻遷移単色X線の高輝度化(短波長化、変換効率、指向性)
- ・ペタワットレーザー生成高速電子による内殻電離X線レーザーの基礎
- ・固体高次高調波の発生と物理
- 高輝度γ線放射発生とその応用(オンデマンドγ線源、医療、非破壊検査)

4) 高輝度テラヘルツ波の発生とその機構の解明

従来のテラヘルツ波の100倍以上の輝度を有するテラヘルツ(THz)波の発生を目指し、高繰り返 し極短パルス高強度レーザーからペタワットレーザーまでを利用して、レーザー電子加速やプラ ズマ界面相互作用、航跡場励起、光速電離面応用など、様々なテラヘルツ波発生スキームを調べ、 新しい高強度テラヘルツ波の発生手法を開拓する。さらに、放射されたテラヘルツ波を用いて、 従来のテラヘルツ光源では困難であったシングルショットイメージング、透過や反射したテラヘ ルツ波の波形解析によるプラズマ診断、高分子分光応用、などの研究へ展開し、テラヘルツ科学 技術の飛躍的展開を図る。具体的な研究課題を列記すると次のようになる。

・レーザー励起プラズマ放射テラヘルツ波発生の物理

- ・高パワーテラヘルツ波の発生(従来の100倍以上)
- ・テラヘルツ波応用への展開 (プラズマ計測、シングルショット THz イメージング、分光学、THz 非線型光学)

5) エキサレーザー基盤技術開発

本連携融事業の目指す単色量子ビーム科学のさらなる発展や実用化を図るには、現有ペタワットの 1000 倍の尖塔パワーを有するエキサワットレーザーにより高強度電磁場を達成することを 目指した革新的なレーザーの基盤作りが不可欠である。これにはレーザー材料、光学素子、高繰 り返しレーザーにおける効率向上、熱処理、熱レンズ補償、波面制御技術などの研究がある。具 体的な研究課題を列記すると次のようになる。

- ・100ペタワットレーザーを目指したレーザー基盤技術の開発
- ・高繰り返しペタワットレーザーの基盤技術
- レーザー伝搬の質的向上(波面制御、偏光制御)

平成18年度の研究では、上記課題に沿って研究が展開されました。単色粒子加速研究について は、3TWレーザーで励起された航跡場により20MeVの単色電子加速が実現し、また、20fsレー ザー干渉による航跡場観測の準備が整った。単色X線研究については、単色X線の利用の実証の 目指したSPring-8実験が開始され、また、高効率X線照射のための微細構造ターゲット製作がな された。テラヘルツ発生物理研究では、固体ターゲットに加えクラスターターゲットが用いられ、 単色テラヘルツ波がすでに得られており、その発生メカニズムが明らかにされようとしている。 エキサワットレーザー基盤研究では、LFEXレーザーのリアエンドにおける大型組合せ回折格子開 発や4段 0PCPA 増幅器での10⁸増幅が実証された。

本研究は、平成18年度文部科学省・研究推進事業「高出力レーザーによる高エネルギー密度 状態の科学の開拓:ペタワットレーザー駆動単色量子ビームの科学」の助成を得て実施された。



高齢化社会の到来、生活質的向上(QOL)国際競争性、社会経済への貢献

3.8 ERL用大電流超伝導加速器の開発

Development for High Current Superconducting Accelerator for ERL

沢村 勝

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 Masaru SAWAMURA

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

For the energy recovery linacs (ERLs), strong higher order-mode (HOM) damping is indispensable to achieve high current operations. We have designed L-band superconducting cavity which is optimized for the ERL operations. New cavity cell shape is designed. The HOMs are damped with microwave absorbers mounted on large beampipes. A new idea of eccentric fluted beam pipe is proposed. Design concepts and estimated HOM characteristics are described in this paper.

Keywords: Energy-Recovery Linac, Superconducting Cavity, HOM

1. はじめに

エネルギー回収型リニアック(ERL)は、リニアックと蓄積リングの長所を合わせ持ち、高輝度かつ大電流の電子ビームを生成できることから、次世代放射光源として期待されている。ERLの実現には、高輝度 大電流を生成できる電子銃(入射器)および大電流を安定に加速できる超伝導空洞の開発が重要な技術 課題としてある。

ERL のような超伝導空洞を用いた大電流の CW 加速器においては高調波(HOM)の減衰が重要である。HOM のQ値を低くすることは、冷凍機システムの負荷を軽減するだけでなく、ビーム不安定性により 制限されるしきい値電流の増加を可能にする。ERL において 100mA 加速に要求される HOM 特性に関 して Table.1 のような基準が示されている[1]。

ERL放射光源建設のために、原子力機構、高エネルギー加速器機構、東大物性研が共同で超伝導 空洞の HOM 対策に重点を置いた新しい空洞設計を行っている。その基本方針は

- 1. 加速モードのシャントインピーダンスは出来るだけ高くすること
- 2. 単極モードは 2.6GHz の逓倍から離すこと
- 3. 双極モードは出来るだけ抑制すること
- 4. 四重極モードも抑制すること

である。

本論文では各HOMモードの減衰方法と電磁場計算コードによるHOM特性の計算結果ならびに測定 結果について報告する。

2. HOM 減衰方法

HOM を減衰させる1つの方法として、ループ型の HOM カップラーが用いられるが、大電流の CW 運転の場合には発熱の問題が報告されている[2]。HOM 減衰させるもう1 つの方法として、ビームパイプを

モード	基準	条件	
双極モード	$\left(\frac{\boldsymbol{R}}{\boldsymbol{Q}}\right)\frac{\boldsymbol{Q}}{\boldsymbol{f}} < 1.4 \times 10^5 \left[\frac{\Omega}{\boldsymbol{cm}^2 \boldsymbol{GHz}}\right]$	ビーム電流 100mA 以上	
単極モード	$\left(\frac{\boldsymbol{R}}{\boldsymbol{Q}}\right)\boldsymbol{Q} < 2500 \left[\Omega\right]$	熱負荷 100W 以下	
四重極モード	$\left(\frac{\boldsymbol{R}}{\boldsymbol{Q}}\right)\frac{\boldsymbol{Q}}{\boldsymbol{f}} < 4 \times 10^6 \left[\frac{\Omega}{\boldsymbol{cm}^4 \boldsymbol{GHz}}\right]$	ビーム電流 100mA 以上	

Table.1 HOM requirement for ERL

太くしてビームパイプ途中の HOM 吸収体で減衰させる方法がある。これはビームパイプを太くして遮断 周波数を下げることにより HOM のビームパイプ中での伝播を可能にするもので、単極、双極モードに対 しては効果的であり[3]、我々は単極および双極モード減衰にはこの方法を採用した。

しかしこの方法も四重極モードに対しては伝播できるまでビームパイプを太くすると、ビームパイプ中への基本波の染み出しが大きくなるため、HOM 吸収体をセルから遠く離さなければならず、全長に占める加速部分の割合を示すパッキング・ファクターが低下してしまうなどあまり効果的でなくなってしまう。

そこで四重極 HOM を減衰させる新たな方法として、非対称のフルート「偏心フルート」付きビームパイプを提案する。

3. 空洞形状の最適化

双極 HOM に関して電磁場解析コード MAFIA を用いて空洞の HOM インピーダンス(R/Q)Q_{ext}/fを 計算した結果を Fig.1 に示す。超伝導空洞の代表として TESLA 型空洞があるが、この TESLA 型空洞の 形状をそのまま用い、ビームパイプを太くした空洞(ERL Model-1 空洞)は、TESLA 型空洞に比べて HOM インピーダンスを 1 桁近く下げることが出来き、双極モードに対する基準は満たすようにはなるが、 製作誤差等を考えた場合余裕がなく十分とはいえない。そこで空洞形状の変更を行い、ERL に最適な 空洞形状設計を行った。TESLA 型空洞からの主な変更部分は①アイリス径をφ70からφ80に大きくした こと、②赤道部分の形状を円形から楕円形にしたこと、③ビームパイプ径をインプット・カップラー側でφ 100、反対側でφ120 としたである。この形状(ERL Model-2 空洞)での双極モードのインピーダンスは ERL Model-1 空洞に比べ更に1桁下げることができ、ビーム不安定性のシミュレーションコード BBU-R お よび BI[4]による計算から、Fig.2 に示すように 600mA の加速が可能との結果を得た。この値は、HOM の





Fig.1 Spectrum of the dipole HOMs. The values of $(\mathbf{R}_t / \mathbf{Q})\mathbf{Q}_{ext} / \mathbf{f}$ are plotted for the TESLA cavity, ERL model-1 cavity and model-2 cavity.

Fig,2 Calculated threshold current against HOM BBU as a function of deviation of HOM frequency.

周波数がすべてそろっている場合の計算結果であり、空洞製作誤差等により HOM の周波数はランダム に分散するので、実際はもっと大きなしきい値が期待できる。

4. 単極モード

単極モードに関しては電子銃から 1.3GHz の繰り返しでビームが取り出されるため、主加速空洞にとっては、この電子ビームの間に減速モードの電子ビームが来るため、2.6GHz の電子ビーム繰り返しとなる。 この周波数の逓倍のところに HOM が存在するとビームと HOM とが共鳴し HOM が励起され、空洞の高 周波損失の増加をもたらす。Fig.3 に示すように ERL Model-2 空洞においては、この単極モードに関して も、2.6HGz および 5.2GHz 近辺にインピーダンスの高い HOM は存在しない。



Fig.3 Spectrum of the monopole HOMs

5. 四重極モード

偏心フルートはフルート(Fig.4 左)をビーム軸からずらしたり(Fig.4 中)、V字に折り曲げたりした(Fig.4 右)構造になっている。フルート付きビームパイプは単極、双極モードの遮断周波数を下げることによって、 これらのモードのビームパイプ中での伝播を可能にしている。しかし四重極モードに対してはフルートが 対称であるため、フルート付きビームパイプ中のモードパターンは遮断周波数の高い四重極のままであ る。フルートを中心軸からずらすと、四重極モードはフルート近辺では双極モードのようにみえ、このフル ートの非対称性により四重極モードの一部が双極モードに変換される。双極モードの遮断周波数は四重 極モードより低いため、周波数はそのままで双極モードに変換されればビームパイプ中を伝播できるよう になる。

Fig.5 に空洞およびビームパイプ断面での電界のフーリエ成分を計算した結果を示す。Fig.5 から偏心 フルート付近で双極モードが励起されビ

ームパイプ中を伝播していることが分か る。このことから偏心フルートは四重極 から双極モードへのモード変換器のよう な働きをしていると見なすことが出来る。 またビーム中心軸に対して45度回転し



Fig.4 Cross-section of fluted beam pipe (left) and eccentric-fluted beam pipes (middle and right)



Fig.5 Fourier components of electric field of the cross-section along the axis. The polarities of quadrupole against the eccentric-flute are shown in the figures.

ている2つの縮退モードに対しても偏心フルートは有効であることが分かる。

TESLA 型空洞に偏心フルートを取り付けた場合の $(\mathbf{R}/\mathbf{Q})\mathbf{Q}_{ext}/\mathbf{f}$ を Fig.6に示す。 \mathbf{Q}_{ext} はビームパイプ における外部 Q 値である。上段には偏心フルートがない場合を示しているが、偏心フルートを取り付ける ことにより四重極モードにおいても HOM インピーダンスが基準値を下回ることが分かる。

偏心フルートのローパワーモデルを製作し、3 セル空洞の四重極モードの外部Q値を測定した結果を Fig.7 に示す。MAFIAを用いた外部Q値の計算結果もあわせて示しているが、測定と計算結果はほぼ一 致している。





Fig.7 Calculated and measured external Q-values of 3-cell cavity with eccentric-flute as a function of bending angle.

Fig.6 Calculated HOM impedance (R/Q)Q/f for with and without the eccentric-fluted beam pipe.

6. まとめ

ERLのHOM対策に重点を置いた超伝導加速器空洞の設計を行った。ERL Model-2 空洞において、 単極、双極モードとも 100mA 加速に対する HOM 減衰の基準を満たしている。また偏心フルートは四重 極モードの HOM 減衰に効果的であることが計算およびモデル空洞の測定から分かった。

現在高エネ研において Nb 単セル空洞(中央セル形状)、 Nb 単セル空洞(エンドセル形状)、Nb9 セル 空洞を製作中で、順次縦測定による空洞性能の測定を行うこととなっている。

参考文献

- [1] M. Liepe, Proc. of SRF2003, Lübeck-Travemünde, Germany, Sep. 2003.
- [2] P. Kneisel et al., PAC'05, p. 4012
- [3] R. Rimmer et al., Proc. of SRF2003, Lübeck-Travemünde, Germany, Sep. 2003
- [4] E.Pozdeyev et al., Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A557,(2005) pp.176-188

3.9 Development of a High-Intensity Few-Cycle Optical Parametric Chirped-Pulse Amplification System

Makoto AOYAMA¹, Yutaka AKAHANE¹, Kanade OGAWA^{1,2}, Koichi TSUJI¹, Akira SUGIYAMA¹, Tetsuo HARIMOTO³, Junji KAWANAKA², Hajime NISHIOKA⁴, Masayuki FUJITA⁵, and Koichi YAMAKAWA¹

¹Japan Atomic Energy Agency, 8-1 Umemidai, Kizu, Kyoto 619-0215, Japan

² Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

³ Faculty of Engineering, University of Yamanashi, 4-3-11 Takeda, Kofu, Yamanashi 400-8511, Japan ⁴Institute for Laser Science, University of Electro-Communications, 1-5-1 Chofugaoka, Chofu-shi, Tokyo182-

8585, Japan

⁵Institute for Laser Technology, 2-6 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871, Japa

We report on optical parametric chirped-pulse amplification of more than 200 nm bandwidth using a diode-pumped, broadband Yb:YLF chirped-pulse amplification pump laser.

Keywords: Optical parametric chirped-pulse amplification, Ultra-broadband amplification, Few- cycle pulse, Ytterbium doped solid-state laser

Optical parametric chirped-pulse amplification (OPCPA) is one of the most powerful techniques in generating high-energy short duration laser pulses.¹⁾ Its major advantages include high gain, high contrast and high beam quality while maintaining ultra-broad spectral bandwidth. Recently, much efforts devoted to developing ultra-broadband amplification techniques are being carried out. For example, a few-cycle terawatt light pulse has been produced from a multi-stage noncollinear OPCPA (NOPCPA).²⁾

As an another approach for ultra-broadband amplification, Limpert et al. reported an enhancement of the amplified bandwidth of OPCPA by using a broadband Ti:sapphire pump laser at degeneracy. ³⁾ The Ti:sapphire pump laser could generate a broadband laser pulse suited for degenerate ultra-broadband parametric amplification. However, an another green pump laser for Ti:sapphire is required. Therefore, the OPCPA pumped by the Ti:sapphire laser becomes bulky and complex and its wall-plug efficiency is quite low. In order to overcome these disadvantages, we used a diode-pumped, cryogenically-cooled ytterbium (Yb)-doped LiYF₄ (YLF) chirped-pulse regenerative amplification system as the pump source. The efficient, high-energy and broadband Yb:YLF CPA laser ⁴⁾ is well suited for pumping the OPCPA. We have achieved ultra-broadband amplification in the spectral range from 900 nm to 1180 nm,

corresponding to 3.7 optical cycles around degeneracy.

A schematic of the ultra-broadband parametric amplification setup with a single-stage OPCPA is presented in Fig. 1. A seed pulse is delivered from the mode-locked Ti:sapphire oscillator (Tsunami;

Spectra-Physics Inc.) operated at a center wavelength of 1017-nm, which is capable of producing a laser pulse with an average power of 400-mW at 80-MHz repetition rate. The seed pulse is then split into two beams. One is temporally stretched with a 1.2-km polarization-maintained singlemode fiber up to ~ 1ns and amplified in the cryogenically-cooled Yb:YLF regenerative amplifier. ⁵⁾ The amplifier employed an Yb:YLF crystal with Yb concentration of 20-at.% and a thickness of 2-mm and a 5-mm x 5-mm cross



Fig. 1 A layout of an OPCPA pumped by a diodepumped Yb:YLF chirped-pulse amplification laser.

section. In this experiment, the laser pulse is amplified up to ~ 12-mJ at a laser-diode pump power of 71.6-W with a pulse duration of 4 ms. The amplified chirped pulse was compressed by a pair of gratings down to 1.4 ps. The compressed pulse was down-collimated to a 3-mm diameter by a Galilean telescope and was then frequency doubled in a type-I BBO crystal cut at 23.8 deg with a 7-mm-long for pumping the parametric amplifier. The frequency-doubled pump pulse with an energy of 2.2-mJ was obtained at a fundamental laser intensity of 36-GW/cm² which corresponds to an energy conversion efficiency of ~ 40 %. The pump pulse had a duration of 2.4-ps and a bandwidth of 3-nm at the full width half maximum (FWHM), respectively. The laser system is currently operated at a 10-Hz repetition rate due to the limitation of the capability of the LD driver.

The signal pulse for OPCPA is generated from another split seed pulse, which has been converted to white light continuum (WLC) via a photonic crystal fiber (PCF). The PCF has a length of 15-cm and core diameter of 4.7-mm with a zero-dispersion wavelength of around 1030-nm (Crystal Fibre NL-4.7-1030). The seed pulse with an energy of 2.8-nJ and duration of 80-fs is coupled into the PCF. The generated white light is then stretched to ~2-ps by a piece of glass with an optical pass length of 10.5-cm. The white light seed pulse with an energy of ~ 0.75-nJ was introduced into the parametric amplifier which employs a BBO crystal (5 x 5-mm aperture, 7-mm-long) cut at 23.8° and a collinear configuration of type-I phase matching with an internal crossing angle between the seed and pump pulses of 0.6°. The white light seed pulse loosely focused on the BBO crystal had a diameter of 1.0-mm, resulting in an intensity of 48-

kW/cm². The OPA pump pulse with an energy of 2.1-mJ was down-collimated to a 1.2-mm diameter, thus giving an intensity up to 76.9-GW/cm². The laser energies and power spectra were measured with a thermopile power meter (Coherent; PM-10) and fiber optic spectrometer (Ocean Optics; USB-2000-VIS-NIR and NIR-512), respectively.

A maximum single-pass gain of more than 1.6×10^5 was achieved with a pump intensity of 51-GW/cm². Saturated

amplification was observed with the pump intensity in excess of 20-GW/cm². We have also obtained a conversion efficiency of 9.6 % into the signal, resulting in an amplified signal energy of 83-mJ. Fig. 2



Fig. 2 Measured amplified spectrum (solid line) and WLC spectrum (dotted line). Calculated phase-matching curve is also indicated. A shaded area corresponds to the bandwidth of the pump laser.

shows the measured amplified spectrum of OPCPA and the calculated phase matching bandwidth. The spectrum ranging from 900-nm to 1180-nm was amplified, corresponding to a calculated, transform-limited pulse duration of 12.6-fs (3.7 optical cycles). This result is in reasonable agreement with the calculated phase matching bandwidth. However, the measured spectrum was slightly broader than that of the calculated one, which may be due to the presence of the pump beam divergence. ⁵

In conclusion, we have demonstrated optical parametric chirped-pulse amplification by using a diodepumped Yb:YLF CPA laser system as a pump source and achieved an ultra-broadband amplification of over 200-nm supporting a 12.6-fs duration (3.7 optical cycles) in spite of being operated around degeneracy. By using a two-stage OPCPA with a higher-energy pump pulse, it should be able to produce a terawatt-class, few-cycle laser pulse without complexly and enlarging the system size. Such a laser is useful for the generation of attosecond pulse generation in the xuv region as well as other high field applications.

References

- 1) Dubietis, G. Jonusauskas, A. Piskarskas: Opt. Commun. 88 (1992) p.437.
- S. Witte, R. Zinkstok, W. Hogervorst, and K. Eikema: Opt. Express 13 (2005) p.4903. http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=oe-13-13-4903.
- Limpert, S. Aguergaray, Montant, I. Manek-Hönninger, S. Petit, D. Descamps, E. Cormier, and F. Salin: Opt. Express 13 (2005) 7386. http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=oe-13-19-7386
- 4) J. Kawanaka, K. Yamakawa, H. Nishioka and K. Ueda: Opt. Lett. 28 (2003) p.2121.
- 5) T. Harimoto and K. Yamakawa: Jpn. J. of Appl. Phys. 44 (2005) p.3962.

This is a blank page.

4. 第8回光量子科学研究シンポジウム ポスター発表

JAEA-KPSI 8th Symposium on Advanced Photon Research

– Poster Presentations

This is a blank page.

4.1 分子における強レーザー場中の電子・イオンダイナミクスの 第一原理計算

First-principles calculation for electron-ion dynamics of molecules under intens laser field

川下洋輔¹,中務孝²,矢花一浩³

1 筑波大学大学院 数理物質科学研究科, 2 理研, 3 筑波大学 計算科学研究センター

Yosuke Kawashita¹, Takashi Nakatsukasa², Kazuhiro Yabana³

¹ Graduate School of Pure and Applied Sciences, University of Tsukuba,

 2 RIKEN,

³ Center for Computational Scienses, University of Tsukuba

Recent development of laser technology has enabled us to study various nonlinear phenomena of molecules that occur under high-intensity $(10^{13} \sim 10^{15} [W/cm2])$ and ultrashort (~ $10^{-15} [sec]$) laser pulse. We calculate the Coulomb explosion of N₂ molecules under intense laser pulse employing the time dependent density functional theory (TDDFT) with real-space and real-time method. We obtaind the intitive picture for the process of Coulmob explosion applying the TDDFT.

Keywords: Laser, Ultla short pulse, High intensity, Coulomb explosion, Firstprinciples calculation

1. はじめに

レーザーパルスを用いた分子の配向や結合の選択的解離といった分子制御は大変な興味を持たれて おり、様々な研究がなされている。また、高次高調波発生をはじめとする強レーザーパルス照射に起 因する電子の非線形現象にも大きな注目が寄せられている。こういった様々な研究の背景には、レー ザー技術の発展が大きく関係している。現在、レーザー技術のフロンティアの一つにレーザーパル スの超短パルス化、超高強度化がある。レーザーパルスの時間幅はフェムト秒(10⁻¹⁵sec) からアト 秒 (10⁻¹⁸sec) の領域に達しており、そのような領域のレーザーパルスを用いることによって、分子 中のイオンの実時間計測、さらには電子の実時間計測が可能となる。また、強度に関しては、10¹³~ 10¹⁵[W/cm²] といった分子内で電子に対する電場と同程度のレーザーを生成することが可能であり、 このような強度において多重イオン化、高次高調波発生といった非線形現象が現れることが知られて いる。こういった非線形、非摂動的な電子ダイナミクスを理論的に記述する手法として時間依存密度 汎関数法 (Time dependent density functional theory : TDDFT) は有用な手法である。

我々は本研究で、分子における強レーザー場中の電子・イオンダイナミクスを第一原理的に記述す ることを目的として、実空間、実時間発展による時間依存密度汎関数法 (TDDFT) を用いて電子状態 とイオンの運動が結合した、電子・イオンダイナミクスを記述する手法を開発した。また、この手法 を用いて強レーザーパルスによる窒素分子のクーロン爆発に対してシミュレーションを行った。クー ロン爆発は多電子系の非線形ダイナミクスとイオンの運動が相互に結合した複雑な現象であるため、 そのメカニズムに対して統一的な理解は得られていない。我々は窒素分子のクーロン爆発をシミュ レートすることにより、そのメカニズムの解明を試みた。

2. 計算方法

我々は電子状態の記述に TDDFT の実空間、実時間発展による解法を用いた。実空間法では空間 を格子状に分割し、その各格子点上で電子波動関数などの物理量を定義する。この手法は空間分割に よる大規模並列計算に適した手法であり、タンパク質などの大規模系になるほど威力を発揮する手法 である。実時間発展法は矢花と Bertsch によって発展された手法であり [1]、我々はこの手法に対し て多くの経験を持っている。実時間発展法とは、式 (1) に示す時間依存 Kohn-Sham 方程式を式 (2) のよう直接的に解き進める手法である。

$$i\hbar \frac{\partial \psi_i(\vec{r}, t)}{\partial t} = (h_{KS}(\vec{r}, t) + V_{\text{ext}}(t))\psi_i(\vec{r}, t)$$
(1)

$$\psi_i(\vec{r}, t + \Delta t) \simeq e^{-i(h_{KS}(\vec{r}, t) + V_{\text{ext}}(t))\Delta t/\hbar} \psi_i(\vec{r}, t)$$
(2)

この微小ステップを繰り返すことにより、波動関数の実時間発展を記述することができる。ここで $\psi_i(\vec{r},t)$ は一粒子軌道関数、 $h_{KS}(\vec{r},t)$ はKohn-Sham ハミルトニアン、 $V_{\text{ext}}(t)$ は時間に依存した外場 である。我々は式 (2)の時間発展を 4 次のテーラー展開で近似することにより数値計算を行った。実 時間発展の手法は線形応答 TDDFT とは異なり、電子密度の基底状態からの差を線形化するといっ た近似が含まれていないために、一電子励起状態に限らず、多電子励起状態の記述も原理的に可能で ある。従って、この手法は強レーザー場中の電子状態の記述に適している。

イオンの運動に関しては古典的な記述を行う。

$$M\frac{\partial^2 R}{\partial t^2} = F^{\text{ion-ion}} + F^{\text{ion-ext}} + F^{\text{ion-elec}}$$
(3)

ここで、M はイオンの質量、R はイオンの座標である。実時間発展 TDDFT で記述した電子状態 を考慮して、イオンに働く力を計算し、その力をもとにして古典的なイオンのダイナミクスの記述 を行う。イオンに働く力には正に帯電したイオン同士のクーロン斥力、レーザー場から直接受ける 力と電子分布からの寄与の三種類がある。このうちイオン同士のクーロン斥力 F^{ion-ion} とレーザー 場からの力 F^{ion-ext} は直接的なものであるため、記述するのに特に難しい問題はない。しかし、電 子からの寄与は電子の量子論的な運動が原因であるため取り扱いが難しくなる。この力の計算には、 Feynman-Hellman(F-H) の定理を用いる。F-H の定理によると、イオンに働く力はイオンポテン シャルのイオン座標での微分を電子波動関数で期待値をとることによって計算できる。F-H 力をあ らわに表現すると以下の形になる。

$$\mathbf{F}^{\mathrm{ion-elec}} = -\sum_{i}^{N} \langle \psi_{i} | \frac{\partial \mathbf{V}_{\mathrm{ion}}}{\partial \mathbf{R}} | \psi_{i} \rangle \tag{4}$$

ここで、V_{ion}はイオンからのポテンシャルである。

3. 計算結果

本論文では今回開発した第一原理的に電子・イオンダイナミクスを記述する手法を用いて、窒素分 子のクーロン爆発のシミュレーションを行ったので、その結果を示し、考察を行う。窒素分子のクー ロン爆発の実験的な現状としては、N₂⁴⁺ → N²⁺ + N²⁺ という多重イオン化によるクーロン爆発 の過程において、レーザーパルスの時間幅が比較的長い場合 (55[fs]) 観測される N²⁺ の運動エネル ギーは分子が平衡位置でクーロン爆発を起こした場合のエネルギーに比べて 56 % と大きく抑制され る。[2] 一方で、時間幅が短い場合 (10[fs]) の場合はエネルギーはほとんど抑制されない。[3] このメ カニズムについて、現在もまだ議論が続いている状態である。

我々はパルス幅が長い場合と短い場合でのクーロン爆発過程をシミュレートするために、パルス 幅 30[fs] と 5[fs] という直線偏光で波長 800[nm] のレーザーパルスを窒素分子の分子軸と平行な方向 に照射するという計算を行った。レーザーの強度はそれぞれのパルス幅で N₂⁴⁺ → N²⁺ + N²⁺ と いうクーロン爆発になるように調節した。図 1 にパルス幅 30[fs] の場合のイオン間距離、価数、イ オンに働く力の時間変化を示す。また、図 2 にはパルス幅 5[fs] の場合の同様の結果を示す。また表 1 にそれぞれのパルス幅の場合で最終的にイオンが持つ運動エネルギー (KER) を示す。パルス幅が 30[fs] の場合 KER は 33.2[eV] と平衡位置でのクーロンエネルギーの 64 %と小さな値となっている。 これはイオン化を起こしながらイオン間距離が伸びるためであることが図 1 からわかる。パルス幅 が 5[fs] の場合の KER は 36.9[eV] であり、これは実験的に得られている結果と異なりエネルギーが 大幅に抑制されている。抑制される原因は、イオン化は瞬時に起こっており、その間イオン間距離は 伸びていないが、電子が各イオンの周囲に局在化して点電荷とみなせるようになるまでに時間がかか り、その間にイオン間距離が伸びて運動エネルギーが抑制されるためであることが図 2 からわかる。



図1 パルス幅 30[fs] のレーザーを窒素分子に照射した場合の図。左から、イオン間距離、分子全体の価数、イオンに働く力の時間変化を示している。イオンに働く力で実線は実際にイオンに働いている力、破線は二価のイオンを点電荷とした場合に各時刻のイオン間距離をもとにして計算したクーロン力である。



表1 それぞれのレーザーでの KER。CE は点電荷とみなした二価のイオンが基底状態のイオン 間距離にあった場合のクーロンエネルギー。

$(4.1 \times 10^{15}, 30)$	$(9.7 \times 10^{15}, 5)$	CE
33.2[eV]	$36.9[\mathrm{eV}]$	$51.9[\mathrm{eV}]$

4.まとめ

我々は本研究で、電子とイオンのダイナミクスを同時に第一原理的に記述することを目的として、 電子ダイナミクスを TDDFT の実時間発展による解法で記述し、同時にイオンダイナミクスを電子 状態と結合した古典的なニュートン方程式で記述する手法を開発した。この手法を用い、強レーザー パルスによる非線形現象の一つであるクーロン爆発のシミュレーションを行った。結果は長いパルス 幅のレーザーを照射した場合に起こる運動エネルギーの抑制はイオン化しながらイオン間距離が伸び るためであることがわかった。短いパルスの場合は実験では運動エネルギーはほとんど抑制されてい ないにも関わらず、我々の計算では大きく抑制されるという結果になりこの違いの原因については現 在考察中である。

参考文献

- [1] K. Yabana and G. F. Bertsch, Phys. Rev. B54, p.4484(1996)
- [2] J. McKenna et al. Phys. Rev. A73, p.043401(2006)
- [3] E. Baldit et al. Phys. Rev. A71, p.021403(R) (2005)

JAEA-Conf 2008-007

4.2 EUV 光源の原子過程モデル Atomic 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

An atomic model of Sn plasmas is developed to calculate the coefficients of radiative transfer. In order to reproduce the experimental spectrum, dominant satellite lines are determined after iterative calculations, which have a significant contribution to the emission. We also correct the transition wavelengths through comparison with experiments. Present emissivity and opacity will be useful for the radiation hydrodynamics simulation, toward the optimization of the EUV source.

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

1. はじめに

Sn プラズマは EUV 波長領域で強い発光を起こすことから、次世代半導体リソグラフィの光源 として研究開発が進められている。EUV 光源として用いられるのは、レーザー照射あるいは放電 励起による電子温度 20-50eV のプラズマ中で生成する 10 価前後の Sn イオンである。それらのイ オンの基底状態は、i を占有電子数として 4dⁱ で表される電子配置を持ち、4d-4f、4d-5p、4d-5f などの共鳴線に強い発光が得られるが、4d-4f 遷移の波長が価数によらず 13.5nm 付近で一定であ り、とりわけ高い発光効率が得られることから注目されている[i]。

本研究では、以下の手順で Sn プラズマの輻射輸送係数を計算した。初めに、Hullac コード[ii] で Sn イオンのエネルギー準位、輻射遷移確率などの原子データの計算を行った。次に、衝突輻 射モデルを構築し、CRE (Collisional Radiative Equilibrium)を仮定して、イオン比、レベル ポピュレーションを計算した。最後に各輻射遷移の強度を計算し、プラズマの輻射輸送係数を求 めた。その際、重要な遷移についてスペクトル形状を考慮し、波長の補正を行った。

2. 原子過程モデリング

EUV 光源として用いられるプラズマの温度、密度は、励起レーザーの波長や強度によって大き く変化する。また、固体ターゲットをアブレートして生成したプラズマの条件は、固体表面付近 の低温高密度領域から、ブローオフ領域は高温低密度の領域まで、広い温度、密度範囲に分布し ている。このようなプラズマを輻射流体シミュレーションで正しく取り扱えるように、イオン密 度 10¹⁵⁻²³/cm³、電子温度 5-250eV の範囲で有効な輻射輸送係数のデータを求めることを目指した研 究を行った。

本研究では、Sn イオンの衝突輻射モデルを構築した。すなわち、プラズマ中に存在するであろ うイオンの基底状態および励起状態のレート方程式をたて、電子衝突および光による電離、励起 過程を考慮してポピュレーションを計算した。各状態は電子配置で表されるとし、エネルギー準 位、輻射遷移確率、自動イオン化率を Hullac コードで計算した。一方、電子衝突による電離、励 起の速度定数は、振動子強度と励起・電離エネルギーの関数の形で表す経験式を用いて計算した。

10価前後のSnイオンには、多数の内殻・多重励起状態があり、これらは統計重率が大きく高密度プラズマ中でしばしば大きなポピュレーションを持ち、強い放射がプラズマの輻射輸送係数にも影響を与えるが[iii]、どの状態が重要かを前もって予測することは困難である。そこで本研究では、励起エネルギーの低い状態がより多くのポピュレーションを持つと考え、高い価数のイオンから再帰的に状態の組を生成する規則を考え、衝突輻射モデルに含める組の数を変えた収束計算を行って原子モデルを決定した[iv]。

例えば、Sn¹⁰⁺イオンのエネルギー準位の構造が既知であるとすると、エネルギーが低い順に、 4d³、4d²5s、4p⁵4d⁴、4d²4f、4d²5p、...のような状態を選んで、これから Sn⁹⁺イオンのコア電子 配置を共有する状態の組 4d³nl、4d²5snl、4p⁵4d⁴nl、4d²4fnl、4d²5pnl、...を生成することができ る。同じ操作を計算の対象とするイオン種に繰り返すことによって、衝突輻射モデルに取り込む 状態の組を決定することができる。そして、イオン種ごとの状態の組の数を増やしながらプラズ マの温度、密度に対する平均価数、輻射輸送係数の変化を調べ、10 価前後のイオンでは 4dⁱ⁻¹nl、 4dⁱ⁻²4fnl、4dⁱ⁻²5snl、4dⁱ⁻²5p nl、4p⁵4dⁱnl の5つの状態の組まで考慮するとこれらの計算結果が収 束するので、これらを含めた原子モデルを構築すれば良いと判断された。

一方、EUV 光源の特性の正確な評価を行うためには、波長 13.5nm における 2%帯域幅という 狭いスペクトル領域への発光強度を求める必要がある。発光に最も大きな寄与を持つと考えられ る 4d-4f 遷移は、多数の微細構造遷移から構成され、平均の広がり幅(FWHM)が 0.5nm 程度で、 価数が1増すに従って 0.1nm ずつ短波長にシフトする特性を持つ。また、実験スペクトルには発 光、吸収線の構造がしばしば現れ、輻射輸送係数の計算は正確な遷移波長とそのスペクトル形状 のデータを用いて行うことが重要である。

4d-4f 遷移の理論計算では、CI(Configuration Interaction:配置間相互作用)を考慮することが重 要で、しかも計算による波長は実験と比べ 0.3-0.5nm 系統的に短波長にシフトしていることが明 らかになったので[v]、本研究では電荷交換分光法により測定された発光スペクトルの結果[vi]に よって波長の補正を行った。また、nl 軌道にスペクテータ電子を持つ 4d-4f サテライト線の波長 の計算でも CI の効果が同様に重要であり、スペクテータ電子の主量子数が無限大となる極限で対 応する共鳴線の波長に漸近する傾向を持つことが分かったので、共鳴線の場合と同様の波長の補 正を行った。

3. 結果と議論

(図1)に計算によって求められた Sn プラズマの価数の温度、密度依存性と、その条件でプ ラズマから放出される全輻射のうち、波長 13.5nm における 2%帯域幅の中にあり利用可能な EUV 光の割合を示すスペクトル効率を示す。スペクトル効率の値は、プラズマの価数が 10-11 価にな る条件で最も高くなる。この価数が得られる温度が密度によって変化することから、最適温度に も密度による依存性が現れ、10¹⁹/cm³以下では低密度ほど最適温度は高くなる。



(図 1) 衝突輻射モデルで計算された、Sn プラズマの価数(a)と、スペクトル 効率(b)の温度、電子温度、イオン密度依存性。

また、(図1)は低密度ほどスペクトル効率が高まることも示す。これは、密度が低くなると多 重・内殻励起状態のポピュレーションが減少し、サテライト線放射が減少し、スペクトル幅が狭 窄化することによる。(図2)は密度10¹⁹/cm³、温度30eVの条件で、放出スペクトルのおよそ2/3 がサテライト線の寄与によることを示す。密度10¹⁷/cm³ではほぼ共鳴線による放射のみとなるた め、スペクトル効率の最高値は40%以上になる。現在、EUV光源の高出力化のために励起源として CO₂レーザーを用いる可能性が検討されているが、スペクトル効率が低密度ほど高まる傾向を持つ ことは、CO₂レーザー励起が高効率化のためにも有利なことを示唆している。一方で、光源プラズ マのサイズの最大値は、想定される光学系で許される大きさ(エタンデュ、3mm)と、その光学的 厚みが1より十分大きくなければならないという条件から制約される。現在、最適動作条件を決 定するための輻射流体シミュレーションが行われている。

本研究で求めた輻射輸送係数を用いて行った輻射流体シミュレーションは、YAG レーザー励起、 照射強度 10¹⁰⁻¹²W/cm²、パルス幅数 ns 以下の条件で実験スペクトル、輻射変換効率とそのパラメー タ依存性を良く再現することが分かった[vii]。しかしながら、照射レーザー強度が大きくなり、 プラズマの電離が進む条件では実験スペクトルとの差異が生じることと、その原因は14価よりも 価数の高いイオンの4d-4f、4p-4d 遷移のモデリングの精度が不十分なためと考えられている。プ ラズマの温度が50eV以上になると、電離が進み、高い価数のイオンが生成するようになる。14 価以上のイオンの基底状態は4pi電子配置を持ち、複数の多重・内殻励起状態から4d-4f、4p-4d 遷移が放出される。その波長はEUV波長域にあり価数が増すに従って徐々に長波長にシフトする 傾向を持つ。今後実験との比較を行って原子データの改良を行う必要があると考えられる。

EUV 光源の研究を通じ、複雑な多電子多価イオンの原子モデルの構築と、さまざまな温度、密 度条件でのモデルの検証が行われた結果、輻射輸送係数を高い精度で計算できるようになった。 この成果は、EUV から X 線領域のプラズマ光源の開発や、実験室や宇宙における高エネルギー密 度プラズマ中の輻射流体シミュレーションにも役立つことが期待される。



(図2) 典型的な Sn の輻射 放出係数の計算結果にお ける、サテライト線の寄与 を含む場合(実線)と含ま ない場合(破線)の比較。

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

- [i] G. O'Sullivan et al., J. Opt. Soc. Am. 71, p.227 (1981).
- [ii] A. Bar-Shalom et al., Phys Rev. E56, p.R70 (1997).
- [iii] A. Sasaki et al, Appl. Phys. Lett., 85, p.5857 (2004).
- [iv] A. Sasaki et al., HEDP, **3**, p.250 (2007).
- [v] F. Koike et al., Rad. Phys. Chem. 76, p.404 (2007).
- [vi] H. Tanuma et al., Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. B235, p.331 (2005).
- [vii] 砂原他、プラズマ・核融合学会誌 to appear.
4.3 モンテカルロ法による粒子線の核散乱の計算

Nuclear scattering calculation of particles by using Monte-Carlo method

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

光量子ビーム利用ユニット

Kengo Moribayashi

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

Abstract:

We have calculated nuclear scattering, nuclear stopping powers, and space distribution at the range for proton and α particles in water molecules. The nuclear stopping powers and the space distribution at the range calculated here agreed well with experimental data and the other calculation data, respectively.

Key words: Monte Carlo, nuclear scattering, nuclear stopping powers, space distribution

1,はじめに

低線量放射線被爆は、長期的な効果であり、それを評価するには非常に多くの時間が要 する。そのため、容易には解決できない問題である。そこで、ミクロな領域での反応過程 の理解がこの研究の進展に大きく影響すると考えられており、バイスタンダー効果や DNA 損傷過程の研究が行われている[1]。これらの研究には、基礎的なデータである放射線のエ ネルギー付与の空間分布(飛跡構造)や二次電子・X線の広がりのデータが不可欠であるの で、理論計算により重粒子線のそれらのデータを評価する必要がある[1]。このデータを計 算するのは、イオンの核の散乱及び、イオンの阻止能を取扱う必要がある[2-4]。さらに、 阻止能には、核の散乱から起きる阻止能(核阻止能)と標的の内部状態の変化から起きる 阻止能(電子阻止能)に別れる[2]。本論文においては、モンテカルロ法を用いて粒子線の 核の散乱と核阻止能、及び飛程の空間広がりを計算する。

2. 計算手法

核の散乱は、イオンと標的との間のクーロン力から起きる。計算手法は、Ziegler ら [2] によって導かれた公式を用いる。イオンの衝突速度は、ここでは keV 以上と非常に大きい ので、古典論に基づいた理論を基に求める。イオンと標的との衝突による散乱はを図 1 を 示す。イオン、標的の核をそれぞれ核1、核2とし、その質量を M_1 、 M_2 とする。 r_0 を2つ の核が散乱する距離、 ρ_l 、 ρ_2 を衝突点での2つの核が最も接近したときの湾曲の半径、 δ_l 、 δ_2 を訂正項、 $\theta/2$ を散乱角、pを衝突径数とすると、

$$\cos\frac{\theta}{2} = \frac{\rho + p + \delta}{\rho + r_0} \qquad \qquad \rho = \rho_1 + \rho_2, \qquad \delta = \delta_1 + \delta_2 \tag{1}$$

である。2つの核が距離 r だけ離れているときの電子雲のポテンシャルを V(r)、全運動エネ ルギーを E とすると ρ は

$$\rho = \frac{E_c - V(r_0)}{-V'(r_0)}, \qquad E_c = \frac{E}{1 + M_1 / M_2}$$
(2)

で与えられる。 δ は、経験値 [2]を、V(r)は、トーマスフェルミポテンシャルを拡張した Universal potential [2]を用いて、(1),(2)式から θ をpの関数として求める。その θ から入射粒子 から標的へのエネルギー移行(T)は

$$T = \frac{4M_{1}Esin\frac{\theta}{2}}{(M_{1} + M_{2})^{2}}$$
(3)

で与えられ、核阻止能 Spは、

$$S_p = \int_0^\infty T dp \tag{4}$$

となる。



図1 イオンと標的との弾性散乱。

3. 結果と考察

図2では陽子線、α線の水分子に対する核阻止能を(4)式から計算した結果と ICRU が公開した実験データとの比較を行った。水分子の 3 つの原子(1つの酸素原子と2つの水素原子)をばらばらに取扱った場合(present1)と1つの原子(ネオン原子)として取扱った場合(present2)の2通りの場合の計算を行った。1MeV/u以上のエネルギーが高いところでは、両者ともに実験データと良く一致しているが、エネルギーが低くなるにつれて、前者の方が良い一致することがわかった。



図2 (4) 式から計算した水分子の核阻止能とイオンエネルギーの関係。present1:標的の水分子を3つの 原子に分けた場合、present2:標的の分子を1つの原子にした場合、ICRU:実験データ[6]。(a) 陽子線、(b) α 線。

図3には、前者の場合(present1)に対して衝突係数を乱数で与えた場合の結果を示す。 乱数の試行数を900と9000と取った。イオンのエネルギーが低いときは、両者とも実験デ ータと良い一致を示すのに対してイオンのエネルギーが高くなると多くの試行数を必要と することがわかる。



図3 図2(a)と同様で、(4)式の積分をモンテカルロ法で行った場合。(a)試行数900,(b)試行数9,000。

図4に10MeV 陽子入射の場合の飛程の空間広がりを示す。電子阻止能は、ICRU の公開デー タを用いて、軌道の数は1000 個である。広がりは10nm 以内におさまっているが、これは、 季村の結果[6]と一致している。



図4 10MeV 陽子入射の場合の飛跡の空間広がり。

4. 終わりに

陽子線、α線の水分子中での核散乱、核阻止能、飛程での空間広がりの計算を行った。その結果、核阻止能、飛程での空間広がりはそれぞれ、実験値、他の計算値に非常に良く一 致していた。

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。

参考文献

[1] Y. Kobayashi, T. Funayama, S. Wada, M. Taguchi, and H. Watanabe, Nucl. Instru. and Meth. B210, p.308 (2003).

[2] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark, 'The stopping and range of ions in solid', Pergamon Press (1985).

[3] K. Moribayashi, J. Phys: Conference series, 58, p.192 (2007)

[4] K. Moribayashi, J. Plasma Fusion Res. Series vol.7, p.150 (2006).

[5] ICRU report 49, 'Stopping powers and rages for protons and alpha particles' (1993)

[6] 季村、放射線化学、第78号、2ページ(2004)

4.4 2,3-ジヒドロピランの同位体選択的赤外多光子解離を用いた 酸素同位体分離

Oxygen Isotope Separation by Isotopically Selective Infrared Multiphoton Dissociation of 2,3-dihydropyran

横山 淳¹⁾,大場弘則¹⁾,赤木 浩¹⁾,横山啓一¹⁾,佐伯盛久¹⁾,勝又啓一²⁾

1) 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 2) 地球人間環境フォーラム

Atsushi YOKOYAMA¹, Hironori OHBA¹, Hiroshi AKAGI¹, Keiichi YOKOYAMA¹, Morihisa SAEKI¹, Keiichi KATSUMATA²

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency
2) Global Environmental Forum

Oxygen isotopic selectivity on infrared multiphoton dissociation of 2,3-dihydropyran has been studied by the examination of the effects of excitation frequency, laser fluence, and gas pressure on the dissociation probability of 2,3-dihydropyran and isotopic composition of products. Oxygen-18 was enriched in a dissociation product: 2-propenal. The enrichment factor of ¹⁸O and the dissociation probability were measured at laser frequency between 1033.5 and 1057.3 cm⁻¹; the laser fluence of 2.2 - 2.3 J/cm²; and the 2,3-dihydropyran pressure of 0.27 kPa. The dissociation probability decreases as the laser frequency being detuned from the absorption peak of 2,3-dihydropyran around 1081 cm⁻¹. On the other hand, the enrichment factor increases with detuning the frequency. The enrichment factor of ¹⁸O increases with increasing the 2,3-dihydropyran pressure at the laser fluence below 3 J/cm² and the laser frequency of 1033.5 cm⁻¹, whereas the yield of 2-propenal decreases with increasing the pressure. Very high enrichment factor of 751 was obtained by the irradiation of 0.53 kPa of 2,3-dihydropyran at 2.1 J/cm².

Keywords: Oxygen isotope separation, CO2 laser, Collisional effect, 2-Propenal, Enrichment factor

1. はじめに

天然の酸素には、質量数 16、17、18 の同位体がそれぞれ 99.759%、0.037%、0.204%の割合で共存 する。これらの同位体は、トレーサーや医療用検査試薬の原料として広く利用されている。なか でも、¹⁸0 は陽電子断層撮影用試薬の原料として、また人の平均エネルギー消費量の測定用原料と しての需要が伸びている。従来、酸素同位体は水、一酸化窒素、および酸素の蒸留により分離さ れてきたが、蒸留法による分離係数は非常に小さいため高濃縮するためには多段のカスケードを 組んだ巨大な設備を必要とする。一方、レーザー同位体分離は原理的に大きい分離係数が得られ るため、コンパクトで経済的な分離法となることが期待できる。

レーザーによる酸素同位体分離は、0₂[1]および D₂CO[2]の紫外光分解、OCS の赤外+紫外光分 解[3]、(CH₃)₂O[4-6]、(C₃H₇)₂O[5,6]等の飽和エーテルの赤外多光子解離によって研究されてきた が、ジイソプロピルエーテル((C₃H₇)₂0、最大の分離係数:350)を除いて高い分離係数は得られて いない。飽和エーテルの赤外多光子解離では、初期光分解反応として C-O 結合の切断が起こりラ ジカルが生成して後に、それらが複雑な二次反応をおこして最終生成物になる。従って、最終生 成物として複数の酸素を含む分子が生成するため、濃縮した酸素同位体の回収プロセスが複雑に なるとともに収率が低くなる可能性がある。また、初期光分解生成物であるラジカルは反応性に 富むため、分解していない同位体分子との反応により同位体スクランブリングを起こして分離係 数を低下させる可能性もある。一方、2,3-ジヒドロピラン(C₃H₈O)の赤外多光子解離では結合 の切断と生成が同時に起こる協奏反応でエチレン(C₂H₄)と2-プロペナール(C₃H₄O)の安定化合 物が生成し、酸素を含む化合物も一種類であるため同位体回収プロセスが簡単になると共に同位 体スクランブリングによる分離係数の低下も起こらず有望な酸素同位体分離の作業分子となるこ とが期待される。そこで、本研究では、C₃H₈Oの赤外多光子解離による酸素同位体分離を検討した。

2. 実験方法

C₅H₈O(関東化学(株)製、純度 95%以上)は、液体窒素温度で脱ガスした後に試料として用いた。ス テンレス製気体セル(体積44.5cm³)に詰めたC₅H₈Oは、セルの両端に取り付けたNaCl窓を通してセル 内に導いた炭酸ガスレーザー(Lumonics 社製 TEA-841)光で分解した。炭酸ガスレーザー光は、ZnSe ビ ームスプリッタあるいはCaF₂板を通過させることで強度を調整した後にCaF₂レンズ(焦点距離 60cm)でセ ルの中央に弱く集光した。照射後、試料はガスクロマトグラフ質量分析計(島津(株)社製 GCMS-QP2010、 分離カラム:DB-1 ワイドボアキャピラリーカラム 60m)に導入し、分解生成物である C₃H₄O 中の同位体比 を測定した。

3. 結果および考察

Fig. 1 に炭酸ガスレーザー発振領 域における C_5H_8O の赤外吸収スペクト ルを示す。この領域における吸収スペ クトルは C-Oの伸縮振動に起因し、ab initio 分子軌道法計算 (B3LYP/6-31G^{**}レベル)によると $C_5H_8^{18}O$ の基準振動は $C_5H_8^{16}O$ の基 準振動に比べ 15.1cm⁻¹ 低波数である と予想される。この同位体シフトを基に 予想される $C_5H_8^{18}O$ の吸収スペクトル も破線で Fig.1 に示す。炭酸ガスレー ザーの発振線((00⁰1)-(02⁰0)バンドの P-枝)がちょうど $C_5H_8^{18}O$ の吸収スペク



Fig. 1. IR absorption spectra of 2,3-dihydropyran

トルの低波数側に当たるので、この発振線を用いて赤外多光子解離をおこなった。

レーザー1 パルス照射あたりの分解確率(レーザー照射領域内にある分子が分解する割合)D および酸素の分離係数(1 パルス照射で生成した 2-プロペナール中の $^{18}O/^{16}O$ 比を 2,3-ジヒドロピラン中の $^{18}O/^{16}O$ 比で割った値) α のレーザー振動数依存性を Fig. 2 に示す。C₅H₈¹⁶O の分解確率 D(^{16}O)および C₅H₈¹⁸O の分解確率 D(^{18}O)のいずれも吸収ピークから離れるに従って小さくなっていくが、吸収ピーク

がより高波数にある $C_5H_8^{16}O$ の方がより 大きく減少する。その結果、近似的に $D(^{18}O)/D(^{16}O)$ の比で現される酸素の分 離係数は増加し、1033.5 cm⁻¹ では 500 以上の非常に高い値が得られた。

1033.5cm⁻¹ のレーザー振動数で照射 した場合の分解確率および分離係数の 試料圧依存性を Fig. 3に示す。レーザ ーフルエンスが 2.7J/cm²以下では、 D(¹⁶O)および D(¹⁸O)は試料圧の増加に 伴い減少するが、その減少割合はD(¹⁶O) の方が大きいため分離係数は逆に増加 した。その結果、レーザーフルエンス 2.2 J/cm²、試料圧0.53 kPaで751という値が 得られ、天然で 0.204%の ¹⁸0 が 60% まで濃縮した。

分解させたい同位体を含む振動励起 分子(この場合 C₅H₈¹⁸O)と周囲にあるそ の他の同位体を含む振動基底状態分子 ((この場合 C₅H₈¹⁶O)との分子間衝突が 起こると、振動励起分子から振動基底状 熊分子への振動エネルギー移動が起こ るため、多くの分子の赤外多光子解離で は試料圧が増加するに従って分離係数 の低下が観測されるが、このように試料 圧の増加に伴って分離係数が増加する 例はまれである。そこで、光励起・誘導放 出過程、単分子分解過程、および分子 間衝突による振動-並進エネルギー移動 過程を考慮したレート方程式による振動 分布および分解確率の時間依存性のシ ミュレーションを行い、この現象の原因を 探った。その結果、

- C₅H₈¹⁸Oの方が光吸収断面積が 大きいためレーザーパルス時間内 における分子間衝突の影響による 振動緩和の影響を受けにくいこと、
- ② C₅H₈¹⁸Oの方がレーザーパルス終 了直後において解離閾値以上に励 起している分子の平均励起エネル



Fig. 2. Laser frequency dependence of (a) dissociation probabilities of $C_5H_8^{16}O$ D(¹⁶O) and $C_5H_8^{18}O$ D(¹⁸O) and (b) enrichment factor α . Laser fluence at the focus is constant at 2.3 J/cm². The C_5H_8O pressure is 0.27 kPa.



Fig. 3. Laser fluence dependence of (a) dissociation rates D and (b) enrichment factor α . Laser frequency is fixed at 1033.5 cm⁻¹, and the C₅H₈O pressure is 0.27 kPa.

ギーが高いため、分解する前に閾値以下に脱励起する割合が少ないこと

が、D(¹⁶O)に比べて D(¹⁸O)の圧力の増加に伴う減少割合を小さくして分離係数を増加させている 原因であることを明らかにした。

Table 1に本研究の結果を今まで報告された値と比較して示す。今まで報告されている分離係数のうち 最も大きいのは $(C_3H_7)_2O$ の赤外多光子解離で得られた 350 である。それに対して C_5H_8O では最大 751 と 2 倍以上の分離係数が得られた。また、 $(C_3H_7)_2O$ の分解確率については高い分離係数の得 られる照射条件では 0.03%以下であると Laptev ら[6]により報告されており、 C_5H_8O の方が分解確 率は高く、また試料圧も高いため大量濃縮に向いている。その他の化合物については高濃縮する には分離係数は小さく、2,3-ジヒドロピランが ¹⁸O 同位体分離の最適な作業分子と考えられる。

molecule	frequency	fluence	nrecqure	$D(^{18}O)$	0	reference
morecure	(cm^{-1})	(I/cm^2)	(kPa)	D(0)	u	Tereference
	(em)	(5/011)	(KI d)	(70)		
C ₅ H ₈ O	1033.5	2.1	0.53	0.043	751	This work
	1033.5	2.2	0.27	0.22	391	This work
	1033.5	2.6	0.27	1.4	169	This work
	1033.5	3.2	0.27	5.0	37	This work
$(C_{3}H_{7})_{2}O$	975.9	1.9	0.016		350	5
	975.9	4.6	0.016	12	26	6
$(CF_3)_2O$	942.4	4	0.067	3	95	6
C ₃ H ₇ OCH ₃	1041.3	3	0.035	3.5	25	6
CF ₃ CH ₂ OH	1029.4	1.8	0.027	5	7.2	6
C_4H_8O	1048.7	6.1	0.040	1	1.03	6
	982.1	1.7	0.13		7.4	5
$(CH_3)_2O$	1050.4	3.8	0.67	0.05	16	6
	1057.3	18	0.40		1.9	5
$(CH_3)_3OCH_3$	980.9	2.0	0.13		7.9	5
$C_5H_{10}O$	980.1	1.6	0.13		74	5
$(C_{2}H_{5})_{2}O$	983.3	1.2	0.13		15	5
CrO_2F_2	944.2	25	0.11		2	6

Table 1. Typical Results for ¹⁸O Enrichment

参考文献

[1] R. K. Sander, T. R. Loree, S. D. Rockwood, S. M. Freund, Appl. Phys. Letters 30, p.150 (1977).

[2] J. J. Marling, Chem. Phys. 66, p.4200 (1977).

- [3] P. F. Zittel, L. A. Darnton, D. D. Little, J. Chem. Phys. 79, p.5991 (1983).
- [4] V. V. Vizhin, Yu N. Molin, A. K. Petrov, A. R. Sorokin, Appl. Phys. 17, p.385 (1978).
- [5] T. Majima, K. Sugita, S. Arai, Chem. Phys. Letters 163, p.29 (1989).
- [6] V. B. Laptev, E. A. Ryabov, L. M. Tumanova, Quantum Electronics 22, p.607 (1995).

4.5 エチレンジアミン四酢酸を修飾した亜鉛ミオグロビンの

光ダイナミックス

Photo-dynamics of Zinc-Myoglobin Modified with Ethylenediaminetetraacetic Acid

高島 弘¹⁾・川原裕恵¹⁾・北野美穂¹⁾・塚原敬一¹⁾・村上 洋²⁾ ¹⁾奈良女子大学理学部化学科 ²⁾日本原子力研究開発機構 レーザー物質制御グループ Hiroshi TAKASHIMA¹⁾, Hiroe KAWAHARA¹⁾, Miho KITANO¹⁾, Keiichi TSUKAHARA¹⁾, Hiroshi MURAKAMI²⁾ ¹⁾Department of Chemistry, Faculty of Science, Nara Women's University ²⁾Janan Atomia Energy Agengy

²⁾Japan Atomic Energy Agency

Reconstituted zinc-myoglobin (ZnMb) has been newly prepared by incorporating chemically-modified zinc-porphyrin cofactor appending an ethylenediaminetetraacetic acid (EDTA) moiety into apo-Mb. The divalent metal cation (Co^{2+} , Cu^{2+} , Ni^{2+} , Mn^{2+} , Zn^{2+} , Mg^{2+}) affinities of the EDTA moiety were determined by conducting UV-vis (and fluorescence) titration experiments in water. The photoinduced electron-transfer and energy-transfer reaction dynamics of the metal-bound ZnMb[M(edta)] were studied by fs-laser induced fluorescent lifetime measurements.

Keywords: Myoglobin, Electron Transfer, Ethylenediaminetetraacetic Acid, Metal Ion, Fluorescence

1. はじめに

生体内における電子移動反応は、呼吸・代謝等 の生命現象に関わる重要な化学反応であり、生体 分子を用いた類似モデル系の人工的構築やその反 応経路及び反応速度を検討することは、生体内電 子移動反応機構を解明する上で重要な研究課題で ある[1]。ヘムタンパク質の一種であるミオグロ ビン(Mb)は、その立体構造が明らかであり、 活性中心であるヘムを除去して人工補因子を 再構成できるため、化学修飾タンパク質の分 子内電子移動反応を調査する上で有用である と考えられる。ヘムタンパク質を利用した生体 内電子移動モデル反応研究においては、1)ドナー とアクセプターの自由エネルギー差(酸化還元電 位差)、2)再配列エネルギー、3)距離、4)配向、5)



Figure 1. Structures of Mb and ZnP(EDTA).

電子移動経路、6)へムの露出度、7)タンパク質表面のアミノ酸残基で起こる静電気的相互作用な どが、電子移動反応に深く関わる因子として考えられる。これまでに我々は、種々の化学修飾ミ オグロビンを合成化学的手法によって調製し、その光誘起電子移動反応速度および機構について 詳細に議論を行ってきている[2-4]。本研究では、Mbの補因子となる亜鉛ポルフィリンについて、 そのプロピオン酸末端に金属イオンキレート剤であるエチレンジアミン四酢酸 (EDTA)をペンダ ントした新規化合物 ZnP(EDTA)を合成した(Figure 1)。また、ZnP(EDTA)をアポ Mb に再構成し、 EDTA 修飾亜鉛ミオグロビン ZnMb(EDTA)を得た。これら補因子および再構成 Mb のそれぞれに ついて、二価遷移金属イオン存在下、水中における結合挙動や蛍光特性を評価し、さらに ZnMb をドナー、EDTA 金属錯体部位をアクセプターとするタンパク質内二元系での高速光誘起電子移 動反応・エネルギー移動反応ダイナミックスを、フェムト秒レーザーシステムを用いた蛍光寿命 測定から解析した。

2. 実験

ZnP(EDTA)は EDTA を出発原料とし、7 段階のスキームを経て合成した。Mb は馬心筋由来の ものを使用し、アポ Mb の調製および ZnP(EDTA)のアポ Mb への再構成と精製は、既報の手順に 従って行った[5]。高速時間領域の蛍光寿命測定には、日本原子力研究開発機構光量子施設におけ るフェムト秒レーザーシステムを利用した。

3. 結果および考察

ZnP(EDTA)は側鎖に EDTA 部位を有するため、水に容易に溶解した。そこでまず、ZnP(EDTA) の水中における挙動・スペクトル特性について評価した。ZnP(EDTA)の吸収スペクトルは、水中 においてブロード化しており会合状態が示唆されたが、大過剰のピリジン(py)を添加することに より会合を抑制することができた。これは過剰量存在する py が亜鉛に配位し、ポルフィリン環上 下の立体障害の増加によって、ポルフィリン環のπ-πスタッキングが解消されたためと考えられ

る。このようにして得られた py 配位種である ZnP(py)(EDTA)と未修飾 ZnP の蛍光スペクトル比較を 行うと、亜鉛ポルフィリン由来の蛍光が EDTA 側鎖の 導入によって、わずかに消光されていることが分かっ た。これは、EDTA 側鎖からの分子内電子移動消光反 応によるものと考えられる。

次に、ZnP(py)(EDTA)に種々の2価の遷移金属イオ ン (Co^{II}, Cu^{II}, Mg^{II}, Mn^{II}, Ni^{II}, Zn^{II})を添加し、相互作用を 検討したところ、全ての金属イオンにおいて1:1量論 比での錯形成が観察され、ZnP(py)(EDTA)の光励起一 重項状態が消光された (Figure 2)。その割合 (*I*₀ / *I*)を比 較したところ、Cu²⁺、Co²⁺に対して大きな値が得られ、 EDTA が本来水中で示す金属イオンとの1:1結合定数 (*K*_{EDTA})の大きさの順にほぼ対応することが分かった。 同様に、金属イオン存在下における高速時間領域の蛍 光寿命測定を行った。金属イオン不在下における蛍光



Figure 2. Fluorescence Spectral Change of ZnP(py)(EDTA) in Addition of Co²⁺ in Water ($\lambda_{ex} = 430$ nm).

寿命は τ_1 = 1.0 ns (25%)、 τ_2 = 2.5 ns (75%)であり、これを基準とすると、金属イオン存在下における寿命 τ については、例えば Cu²⁺イオンにおいて τ_1 = 180 ps (39%)、 τ_2 = 1.6 ns (61%)、Co²⁺イオン において τ_1 = 440 ps (52%)、 τ_2 = 1.6 ns (48%)となり、EDTA の金属イオン選択性にほぼ対応した 消光効率を示すことが分かった。以上より、ZnP(EDTA)は水中において py 存在下において会合が 抑制され、側鎖の EDTA 部位は遷移金属イオン選択性を有すると考えられる。

次に、再構成 Mb の評価を行った。ZnMb(EDTA)の吸収スペクトルおよび蛍光スペクトルは、 共に天然型 ZnMb と同一の極大波長、強度を示し、光励起三重項状態 $\{^{3}(ZnMb)^{*}\}$ から基底状態へ の自然失活速度定数 ($k_{0} = 85 \text{ s}^{-1}$)も一致したことから、ZnMb 本来の性質が保たれていることが分 かった [6]。また CD スペクトルの測定により、ZnP(EDTA)を再構成しても Mb の三次構造が安定 に保たれていることが分かった。

ZnMb および ZnMb(EDTA)の蛍光寿命測 定により、ZnMb(EDTA)の寿命は $\tau_1 = 1.3$ ns (25%)、 $\tau_2 = 2.5$ ns (75%)であり、ZnMb のそれ ($\tau = 2.2$ ns)よりもやや短いことが明らかとな った(Figure 3)。ZnMb(EDTA)では金属イオン 非存在下で、側鎖 EDTA による消光反応が起 こっていると考えられる。また、ZnMb(EDTA) に Co²⁺イオンおよび Cu²⁺イオンを添加すると、 ZnP(EDTA)と同様に、ZnMb 由来の励起一重 項蛍光消光挙動が観察されたことから、ZnMb 表面に導入した EDTA 部位は、金属イオンと 選択的に錯形成できると考えられる。そこで、 Co²⁺および Cu²⁺イオンの存在下、蛍光寿命測 定を行ったところ、Co²⁺イオンでは $\tau = 1.8$ ns、

 Cu^{2+} イオンでは $\tau_1 = 1.5$ ns (75%)、 $\tau_2 = 2.1$ ns (25%)の寿命が得られ、 分子内消光反応速度定 数として、 Co^{2+} イオン で 1.0 x 10⁸ s⁻¹、 Cu^{2+} イ オンで 2.1 x 10⁸ s⁻¹が得 られた。Scheme 1 に示 す様に、これらの反応 機構については、 Cu^{2+} イオンに対しては分子 内電子移動消光反応、



Figure 3. Decay Curve of ¹(ZnMb)*(EDTA) in 10 mM Tris-HCl Buffer at pH 8.3 and 25 °C.



Co²⁺イオンに対しては Scheme 1. Photoreaction Pathways of ZnMb[M(edta)]. 分子内エネルギー移動消光反応が考えられる。

4. まとめ

以上の結果から、今回新たに調製したZnMb(EDTA)は、遷移金属イオンと選択的に結合するこ とが分かり、本研究では、ZnMb 表面における光励起一重項状態からの高速時間領域における電 子移動・エネルギー移動反応ダイナミックスをフェムト秒レーザーシステムを利用した蛍光寿命 測定から明らかにすることに成功した。

参考文献

[1] H. B. Gray and J. R. Winkler, *Q. Rev. Biophys.*, 36, p.341 (2003).

- [2] H. Takashima et al., Chem. Eur. J., 6, p.1907 (2000).
- [3] K. Tsukahara and H. Takashima et al., Bull. Chem. Soc. Jpn., 76, p.2135 (2003).
- [4] H. Takashima and K. Tsukahara et al., J. Phys. Chem. B, 110, p.26513 (2006).
- [5] K. Tsukahara et al., Bull. Chem. Soc. Jpn., 67, p.421 (1994).

[6] K. Tsukahara et al., Chem. Lett., 1997, p.601.

4.6 液相レーザーアブレーションによるセリウムナノ化合物粒子の作成

Preparation of cerium compound nanoparticles by laser ablation in liquid phase

大場弘則、佐伯盛久、西村昭彦、横山 淳

原子力機構 量子ビーム応用研究部門、レーザー物質制御研究グループ

Hironori OHBA, Morihisa SAEKI, Akihiko NISHIMURA, and Atsushi YOKOYAMA

Laser Chemistry Group, Quantum Beam Science Directorate, JAEA

Colloidal solutions of cerium compound nanoparticles were prepared using a cerium metal in liquid phase by laser ablation with nanosecond laser pulses at 1064, 532, or 308 nm, and femtosecond laser pulses at 780 nm. Particles were characterized by using an UV/VIS spectrometer and an electron microscope. Cerium dioxide particles were easily synthesized by laser ablation with nanosecond laser pulses, while low-oxidized compounds were prepared by laser ablation with femtosecond pulses in pure water. Metallic cerium particles were produced in liquid nitrogen by laser ablation. The formation efficiency of colloidal particles for visible and infrared nanosecond pulses was higher than that for ultraviolet pulses and for femtosecond pulses. Under the irradiation of ultraviolet laser, it appears that self-absorption of laser pulses causes the lower formation efficiency of colloidal particles and the formation of small size particles due to fragmentation of colloidal particles.

Keywords: Laser ablation, Liquid phase, pure water, liquid nitrogen, Nanoparticles, Cerium oxides

1. はじめに

酸化セリウムナノ粒子は三元助触媒や燃料電池、蛍光材料、紫外線遮断剤など多岐にわたる分 野で応用が考えられており、これまでに様々な技術により合成されている¹⁾。また、セリウムは核 燃料模擬物質としてしばしば用いられていることから、ナノ粒子調整は、例えば将来の宇宙船用 超小型原子炉²⁾の燃料特性研究に応用できる。ナノ粒子における様々な特性の改良や新機能探索の ためには新しい合成手法の開発が必要であり、我々は、最近研究が盛んに行われている液相中で のレーザー照射によるナノ粒子合成に着目した。この手法では放出プラズマの高密度雰囲気下で の閉じ込めによる超高圧・高温相が形成されるので、特異なナノ粒子合成が期待されている³⁾。本 研究では、セリウム金属をターゲットとし液相レーザーアブレーションによる化合物ナノ粒子を 作成しその特性を調べた。

2. 実験方法

液相には純水および液体窒素を用いた。純水では、30mlの純水入り合成石英製ビーカーに上方から金属セリウム円板(直径 20 mm,厚さ 3 mm)を吊るし、回転させた。液体窒素ではビーカーの代わりにデュワー瓶を用いた。焦点距離 75 mmのレンズを用いてレーザー光を集光して円板側面に照射した。レーザー光照射は、Nd:YAG 1064 nm (8 ns)および 532 nm (8 ns)、XeCl エキシマー

308 nm (25 ns)、Ti:Sapphire 780 nm (50 fs)の波長およびパルス幅で行い、繰返し周波数 10 Hz で 20 分間照射した。照射エネルギーはナノ秒(ns)パルスレーザーにおいて 1~40 mJ の間で変化させた。 生成物の特性は、紫外可視分光光度計による吸収スペクトル測定、SEM 観察および EDX 分析に より評価した。また、生成した懸濁液に紫外レーザー光を照射して発光測定を行った。

3. 結果および考察

図1(a)~(d)はそれぞれ、1064 nm、532 nm、308 nm、780 nmの照射で生成した粒子のSEM観察 写真である。Nd:YAGレーザーによる照射ではサイズ分布の広い球状粒子が生成し、特に1064 nm の場合、多くの大径粒が存在した。短波長では図中2~3の大きな粒を除いてはサイズ分布の狭 い小径球状ナノ粒子が確認された。レーザー波長の違いによる照射部の表面形態を観察したとこ ろ、長波長の場合にはセリウム表面は溶融して爆発的に沸騰して深い穴を形成しているのが認め られた。液滴が放出した後急冷固化してナノ粒子が生成すると考えられる。一方短波長の場合の 表面は比較的平坦であった。気化したセリウム原子が微小プラズマ内でナノ粒子に成長すると考 えられる。フェムト秒(fs)パルスレーザーで生成した粒子ではサイズは比較的小さいが、形状が球 状ではないことがわかった。この理由として、1) nsパルスーザー照射では加熱溶融蒸発過程を 経て放出されるので、液化した後固化するために球状になるのに対して、fsパルスレーザー照射 の場合、アブレーションは非熱蒸発過程なので、液化せずに表面から剥ぎ取られた形状で液中に 分散すること、または2) レーザー光が試料表面に到達する前に照射表面近傍で集光されてブレ ークダウンプラズマが発生し、その衝撃でセリウム表面が機械的に削られて液中に放出されるこ と⁴、などが考えられる。

粒径が100~200 nm 粒子を対象に EDX 分析を行い、市販の二酸化セリウム粒子(ニラコ製) と比較した。その結果、ナノ粒子は、nsパルスレーザー照射の場合で+4 価の酸化セリウム、fsパ ルスレーザー照射では+2 価の低次酸化セリウムの生成が支配的であった。水中では、アブレーシ ョンによって形成された高エネルギーの金属原子やイオンクラスターが閉じ込められたプラズマ と液体の界面において水分子との反応・急冷によって酸化され、酸化物の成長核が形成されると



図1. 純水中セリウムアブレーショ ンで生成した粒子の二次電子像. バーの長さは 100 nm. (a) 1064 nm と(b) 532 nm:球状粒子で生成量 大、サイズ分布広い, (c) 308 nm: 小径の球状粒子でありサイズ分 布が狭い, (d) Ti:S780 nm:非球状 粒子が多い。



図 2. 純水中セリウム金属のアブレーションで生成した懸濁液の紫外・可視吸収スペクトル

考えられる。酸化物の化学量論的考察は、さらに XRD や XPS を用いたより詳細な分析を基に議 論する必要がある。しかしながら、本結果はアブレーションにより放出したセリウムの酸化が照 射パルス幅に依存している可能性を示しており、今後酸化次数を制御した化合物の調整に役立つ と考えられる。

図2はアブレーション懸濁液生成後直ちに測定した吸収スペクトルで、(a)は40 mJ 照射時の波 長依存性、(b)は10 mJ 照射時のパルス幅依存性、をそれぞれ示している。酸化セリウムのバンド ギャップエネルギーは約3.2 eV (300 nm 程度)であることから、スペクトルは主として酸化セリ ウムナノ粒子懸濁液の紫外吸収を表わしている。また Ce(III)に起因する吸収が200 nm 付近に見ら れる。吸光度は概ねナノ粒子の生成量に対応しており、可視および赤外レーザー光を使用した場 合には生成量が多い。一方紫外光を照射した場合では、生成量は比較的少ない。吸収スペクトル の形状は長波長ではブロードであり、短波長になるにしたがってピーク付近が狭くなり、ピーク 波長が多少ブルーシフトする。可視および赤外レーザー光照射において、350 nm から長波長側に 見られる形状は、吸収ではなく、SEM で観察されたような大径粒による光散乱が大きいために、 吸光光度計の透過量が低下したことによるものと思われる。ブルーシフトは粒子のサイズ効果に よって生じるので、SEM で観察されたように小サイズ化が起因している。紫外光 308 nm の照射 では生成した微粒子による紫外光の自己吸収効果が大きい。このため、集光したレーザー光によ り生成した微粒子が更に粉砕されて小サイズ化し、サイズ分布の狭いナノ粒子が生成する。また

レーザー光がターゲットに到達しにくいた めに粒子生成量が少なくなることが考えら れる。図1(a)の308 nmの照射で生成した懸 濁液の吸収スペクトル形状はこの結果を表 わしている。また図2(b)に見られるようにfs パルスレーザーの場合はnsパルスレーザー とは異なるスペクトル形状とピーク波長(レ ッドシフト)が認められた。尚、これらの吸 収スペクトル形状は2~3週間以上経過して も再現するので、ナノ粒子は純水中で安定に 存在していることを示している。また、液体



図 3. 吸収スペクトルピーク高さのレーザーパワー 密度依存性

窒素中でのアブレーションで生成した微粒子について吸収スペクトルを測定したが、明確なピー クは観測されなかった。

吸収スペクトルピーク高さのレーザーパワー密度依存性を図3に示す。Nd:YAG レーザーで生成した懸濁液は基本波、2倍波とも同じように照射強度の増加に伴い吸収は大きくなる。紫外レ ーザーでは低いレーザーパワー密度での生成効率は高いが飽和の傾向を示す。またfs レーザーで は高強度にもかかわらず吸収量(生成量)が少ない。生成効率を高める場合はNd:YAG レーザー が適していることがわかった。

図4のSEM写真は、液体窒素中で10mJのfsパル スレーザーで照射し生成した微粒子の一例である。サ ブµmから数µmに分布する粒子が生成した。また、 EDX元素分析の結果、化合物ではなくセリウム金属微 粒子であった。アブレーション時に窒素分子解離によ る原子状窒素が十分に生成しないことや、アブレーシ ョン放出粒子が生成直後に急冷されたことが、金属セ リウム微粒子生成に起因していると思われる。尚、こ の微粒子はnsパルスレーザー照射でも同様に得られ、 エタノール中では生成時の状態を維持している。活性 な希土類金属の超微粒子は作製が難しいことが知られ ており、本手法は活性金属超微粒子の創製に応用でき る可能性がある。



図 4. 液体窒素中セリウムアブレーション で生成した粒子の二次電子像. バーの長 さは 1000 nm.

4. まとめ

金属セリウムをターゲットに用いて液相中レーザーアブレーションを行い、1)純水中で酸化 セリウムナノ粒子を容易に合成できること、2)レーザー照射条件で生成ナノ粒子特性が制御可 能であること、3)液体窒素中では活性金属の微粒子が生成できること、がわかった。今後は生 成物酸化状態(Ce-O化学シフト)評価、極短パルスレーザー照射時の生成粒子特異性の調査、粒 径制御されたナノ粒子の作製条件の探索などを行う予定である。

謝辞

生成粒子および照射表面の顕微鏡観察にあたり、原子力基礎工学研究部門 江坂文孝・赤岡克 昭両氏の協力を得ました。ここに謝意を表します。

参考文献

- 1) H.Chenguo et al, Nanotechnology 17 (2006) pp.5983-5987
- 2) http://www.nasa.gov/directorates/esmd/acd/technology_dev.html
- 3) 辻 剛志、辻 正治、レーザー研究、33 (2005) pp.36-40.
- 4) J.-P.Sylvestre et al., Appl. Phys. A 80 (2005) pp.753-758.

4.7 Observation of ICP mode Transition from CCP mode with Inside RF Antenna

Keita NAKAGAKI^{1,2}, Toshihiko YAMAUCHI², Yoshinori Kanno¹,Seiji KOBAYASHI² 1; Interdisciplinary Graduate School of Medicine and Engineering, University of Yamanashi 2; Japan Atomic Energy Agency

The CVD system by 27.12 MHz RF heating plasma discharge was developed to investigate the synthesis of the advanced ceramics, particularly diamond. Our system was unique, whose four turns RF antenna coil was installed inside of chamber. Here, we found the interesting physical behavior for the first time which the charge coupled plasma (CCP) changed to the inductively coupled plasma (ICP) suddenly at the threshold power. The plasma characteristics which were measured by the double probe were $T_e \sim 10$ eV and $n_e \sim 10^{11}$ cm⁻³ suitable for the dissociation. No impurity was observed in plasma, judging from the spectroscopic measurement. The ball-like diamond was synthesized on the silicon (Si) substrate by the low power RF heating plasma.

Keywords: CCP, ICP, RF, Plasma, CVD, diamond, transition, Te, ne

1. Introduction

The advanced ceramics synthesis, especially diamond synthesis, has been investigated for the long time, since the GE Co. in USA succeeded to produce the diamond by the high-pressure and high-temperature method [1]. Almost ten years later, Derjaguin et al began to investigate the diamond synthesis using the low-pressure synthesis method, or using the chemical vapor deposition (CVD) [2]. The purpose of diamond synthesis is mainly derived from the great charm of the superior industrial characteristics of diamond.

Our experiment has been performed to clarify the physics of diamond synthesis by CVD with the RF heating system. In the inside antenna, the plasma parameters such as electron density increased smoothly by the increase of RF power [3]. But in our inside RF antenna, we found the abrupt change of plasma parameters for the first time. This transition which produced high density and high temperature plasma was very useful for the dissociation of hydrogen and methane molecular. Therefore, both argon (or hydrogen) and methane gases were used to produce the diamond-like carbon (DLC) and the ball-like diamond [4]. In this paper, the synthesis apparatus with 27.12 MHz RF heating and the double probe etc. are described, whose four turns antenna is installed inside of chamber. It is in contrast to the other system [5]. We describe the abrupt transition of plasma mode from the charge coupled plasma (ICP) by the increase of RF power. In these modes, the plasma characteristics composed of both argon (hydrogen) and methane gases were measured by the double probe, the spectrometer and the photo-diode. The diamond like carbon (DLC) and ball-like diamond synthesized on Si substrate was investigated using the scanning electron microscopy (SEM) or Raman spectrometer.

2. Experimental apparatus

Figure 1 shows the experimental apparatus. The three kinds of gases were used, and each gas flew through the mass flow controller (MFC) into the electric gate valve after mixing them. The gas flow rates were 10~30 sccm for argon (hydrogen) gas and 0.1~0.3 sccm for methane gas. The mixed gases flew into the chamber through the fused quartz pipe (inside diameter: 7 mm, the outlet diameter of gas at the top: 1mm). The gas flew in the center of antenna coil (The inside diameter of 4 turn-antenna coil was 31 mm which was made of the water-cooled cupper tube of 5 mmφ). The mixed gas reached on the surface of Si substrate on the stage. The



Fig.1 Experimental apparatus.

vacuum chamber (26 cm in diameter and 40 cm in depth) was evacuated by the turbo-molecular pump (TMP) and the rotary pump (RP). The valve between the vacuum chamber and TMP was almost closed to control the gas pressure in the chamber. After the chamber was evacuated till the extent of 10^{-6} torr, the mixed gas was usually filled into the chamber till 0.6 torr. The characteristics of RF heating system were as follows: Maximum RF power was 1 kW and RF frequency was 27.12 MHz. The input and reflected RF powers were memorized in personal computer through the data logger. The parameters such as the electron density n_e and the temperature T_e , the radiation power Pr, the holder temperature T were measured by the double probe (DP), the photo-diode (PD) and the thermocouple (or thermal infrared radiometer), respectively. The synthesized sample was observed by SEM and Raman scattering spectrometer.

3. Plasma Characteristics

The diagnostics of DP, the visible spectrometer and PD were used to investigate the CVD plasma behavior. The experimental condition was as follows; Argon (hydrogen) and methane gas flow rates were 10~30 sccm and 0.1~0.3 sccm respectively, as mentioned above. The total gas pressure in chamber was usually 0.6 torr. The volume percentage of methane gas was almost 1%. In ICP T_e and n_e were measured using DP. The probe position was fixed at 17 mm away from the bottom of antenna coil. The experimental values were T_e=3~10 eV and n_e= $(0.08~0.8)\times10^{11}$ cm⁻³ at RF power of 20~600W. The visible spectral lines were measured with the spectrometer (Nikon P250: grating of 1200 lines/mm, braze wavelength of 300 nm) and the photomultiplier tube (PM: R1333 of Hamamatsu Cor.). Many argon spectral lines were observed in Ar+CH₄ plasma, but the spectral line emitted from the impurity such as cupper atom (spectral line: 510 nm) was not observed in CCP mode. In H₂+CH₄ plasma the spectral lines emitted from Balmer zone and Fulcher zone were clearly observed in ICP mode. 4.Sharp transition of plasma mode from CCP to ICP When the mixed gas H₂+CH₄ was flown into the vacuum chamber, the gas pressure in the chamber was controlled from 0.1 to 5 torr.

The plasma showed the unique phenomenon suddenly, when RF power reached at some power which was named as the threshold power. At first, when we increased the RF power, the plasma was turned on at the threshold P₀=10~40 W (P₀min=10W). This was the threshold power of CCP mode. This discharge was caused by between the out feedthrough (ground potential) and the higher potential coil. The threshold power P₀ obeys the Paschen's law as shown in Fig.2. When RF power was increased over P_0 , the reflected power was increased together with the absorbed power. Reaching the next threshold power P₁, the reflected power Pref suddenly dropped under a half. The radiation Pr suddenly jumps over three times as shown in Fig.3. ICP was well confined with the magnetic field induced by antenna current, and ne and Te were higher than that of CCP and the slope in ICP mode was steeper. By contraries, when RF power was decreased, ICP mode was kept even if RF power decreased less than the threshold P1. And then ICP mode suddenly changed to CCP mode at the threshold P₂. The reflected P_{ref} jumped over three times as shown in Fig.3. The radiation P_r dropped under a tenth. The threshold powers were plotted in Fig.2. The region between the threshold P_0 and P_1 is CCP mode, and the region above P_1 is ICP mode. Their threshold increased in proportion to the gas pressure. The abrupt change of plasma which was associated with Te, ne and Pr was observed. ICP mode was in contrast to CCP mode. This plasma investigation is described in ref.6.



Fig.3 Phonomena ICP and CCP mode

P_{IN} (W)

200

CCP mode

300

CP mode

400

500

5. Observation of diamond grains with SEM and Raman spectrometer

The diamonds produced on Si substrate were observed with SEM. The SEM micrographs are shown in Fig.4. The duration for their synthesis was almost 2 hours and a half. The size was nearly 200~1000 nm. Some nano-particles were also made from the carbon-rich plasma by using pyro-graphite (PG) except for the gas CVD. The diamonds which were charged through the scanning electron beam used in SEM looks to be white as shown in Fig.4. The peak of Raman scattering spectrum was observed around 1330 cm⁻¹ whose value showed the diamond in Fig.5. The broad bands around 1250~1400 cm⁻¹ and 1530~1650 cm⁻¹

0

80 £

60

20

0

0

100

Pref 40



are the spectral curve emitted from DLC and the graphite respectively.

Fig.4 SEM image of nano-size diamond



6. Summary

In plasma mode transition experiment, the plasma characteristics were $T_e=3^{-10}$ eV and $n_e=(0.08\sim0.8)\times10^{11}$ cm⁻³ and the spectroscopic data showed no impurity in CCP. Sharp transition of plasma mode from CCP to ICP was found for the first time using the inside RF antenna, and ICP was the high density and high temperature plasma suitable for the synthesis experiment. We presented that the ball-like diamond on Si substrate was synthesized by the low power RF heating.

Acknowledgement

This experiment has been performed in collaboration with between Japan Atomic Energy Agency (JAEA) and Univ. of Yamanashi with the help of many staff from August 2006. The first RF plasma discharge was performed on October 2006. Prof. M. Saigusa, Mr. N. Yamashita and Mr. T. Kawashima in Ibaraki Univ. joined our experiment. We would like to express our gratitude to Prof. T. Akitsu in Univ. of Yamanashi, Drs. A. Yokoyama, T. Kimura and T. Tajima in JAEA for their continuous support.

References

- [1] F.P. Bundy et al: Nature 184 (1959) p.1094.
- [2] B.V. Derjaguin et al: J. Cryst. Growth 2 (1968) p.380.
- [3] K. Suzuki et al: Plasma Sources Sci. Technol. 7 (1998) p.13.
- [4] Lee Chow et al: J. Mater. Res. 7 (1992) p.1606.
- [5] S. Matsumoto et al: J. Appl. Phys. Lett. 51 (1987) p.737.
- [6] T. Yamauchi et al: to be submitted in Jpn Soc. of Pla. Sci. and Nucl. Fus. Res. (2007).

4.8 超短パルス高強度レーザーによる高強度テラヘルツ波発生

Generation of intense terahertz radiation by ultrashort high power lasers

菜嶋 茂喜¹⁾, 清水 広平¹⁾, 細田 誠¹⁾ 村上 洋²⁾, 織茂 ²⁾, 小倉 浩一²⁾, 森 道昭²⁾, 句坂 明人²⁾, 大道 博行²⁾ ¹⁾大阪市立大学工学部応用物理学科 ²⁾日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 Shigeki NASHIMA¹⁾, Kohei SHIMIZU¹⁾, Makoto HOSODA¹⁾, Hiroshi MURAKAMI²⁾ Satoshi ORIMO²⁾, Koichi OGURA²⁾, Michiaki MORI²⁾, Akito SAGISAKA²⁾, and Hiroyuki DAIDO²⁾ ¹⁾Department of Applied Physics, Graduate School and Faculty of Engineering, Osaka City University ²⁾Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency

We have measured the spectrum of intense electromagnetic wave radiated from Ti-plasma by using a Martin-Puplett interferometer. We found that the spectrum of observed radiation distributes around 0.2 THz and extends up to 0.5 THz. The pulse duration of the terahertz wave would estimate to 2 ps with the measured spectrum for a transform limited pulse.

Keywords : Terawatt laser, terahertz (THz) radiation, laser plasma, poderomotive force

1. はじめに

レーザー・プラズマ相互作用によって高強度なテラヘルツ波(以後, THz 波と記す)が発生することを Hamster らが報告したのを機に,以後,幾つかの発生機構を指摘する幾つかの報告がなされている[1-4]. これらの報告から,高強度な光ー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は,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,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できる[5, 6].

前回, 我々はJLITE-Xシステムを用いてTiプラズマを励起し, THz 波と予想される電磁波放射を計測 した. その結果, シングルショット検出が容易に行える程の高強度な電磁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, レーザー・プラズマ相互作用によって入射面上に高速に分極が発 生していることが予想される. そこで, 本実験では, マーチンパブレット型干渉系を用いて放射された電 磁波のスペクトル計測を行い, 放射に起因する分極の発生の時間スケールを検討した.



Figure 1: Schematic illustration of experimental setup for the detection of terahertz radiation by using a Martin-Puplett interferometer.

2. 実験方法

Figure 1 に実験配置図を示す.励起レーザーに用いたJLITE-Xシステムの励起条件は,前回と同じ 条件で行った[7].励起レーザーの偏光方向は,前回の実験結果を基に最も放射強度の大きく得られるP 偏光で行った.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マーチンパブレット型干渉系へ導波した.前回の 実験結果より,放射されたテラヘルツ波の偏波は,ほぼレーザー入射面に平行であったので,その偏波 方向成分を効率よく計測できる様にワイヤーグリッドを配置した.また,伝搬経路上にサファイア窓や発泡 スチロールなどの THz 波領域のバンドパスフィルターを用いて,計測できる電磁波領域をテラヘルツ波 領域に制限した.干渉系に使用している一方のミラーは自動ステージ上に配置し,自動ステージの位置 を制御して時間遅延を与えた.検出器には,シリコンボロメーター(インフラレッド社製:QSIB/2F)を用い ており,レーザー光の照射タイミングに同期した信号強度を計測した.

3. 結果および考察

Figure 2 (a) および(b)は、それぞれ、マーチンパブレット型干渉系を用いて計測されたテラヘルツ波のインターフェログラムとそのフーリエスペクトルである. Figure 2 (a)より、計測されたインターフェログラムは、約 2 ps の相関幅を有していることが確認される. このことは、計測された電磁波が時間的コヒーレンスが低い、テラヘルツ波領域の電磁波であることを意味している. このインターフェログラムのフーリエスペクトルは、原理上、計測された電磁波のパワースペクトルに対応している. Figure 2 (b)は、計測された電磁波は 0.2 THz 付近にピークを持つ電磁波であることが明らかである. そのスペクトルは単色ではなく、



Figure 2 (a): Interferogram of the detected electromagnetic waves. (b) The power spectrum obtained from the interferogram.

0.5 THz 付近まで確認できる広帯域なスペクトルを有していることが確認できる. この結果は,前回の ITO ガラスを挿入した時の電磁波の減衰率から予想した周波数帯域とほぼ一致している.

本実験結果から得られたテラヘルツ波放射スペクトルの結果から,放射機構に起因する分極の時間変 化について検討する.ただし,今回の実験で得られたインターフェログラムには原理的に電磁波の位相 情報を有していない為,この様な議論をする場合には,電磁波の位相を仮定する必要がある.ここでは, 放射された電磁波はパルスであると仮定し,周波数成分の位相はほぼ同じであるとする.本実験で得ら れたテラヘルツ波の放射スペクトルの結果から,フーリエ限界である電磁波パルスの時間幅を計算すると, 約2 ps になる.電磁波パルスの時間スケールは分極の変化の時間スケールに対応することから,分極が 電子ビームの発生に依ると考えると,電子ビームのバンチ幅がピコ秒の時間スケールであることが予想さ れる.この予想の妥当性に関しては,今後の電子ビームのバンチ計測等の結果を追って検討していく必 要があるであろう.

3. まとめ

本研究では、マーチンパブレット型干渉系を用いて、テラワットレーザーによって Ti 箔から放射された THz 波のスペクトル計測を行った. その結果、放射されたテラヘルツ波は 0.2 THz 付近の周波数帯を中 心として広範囲に渡るスペクトルを有していることが明らかになった. この結果から、レーザー・プラズマ相 互作用によって発生する分極の時間スケールは、約 2 ps である可能性が示唆された.

参考文献

- H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, Phys. Rev. Lett. 71 (1993) pp.2725-2728.
- 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. Kaindl, J. Byrd, and M. C. Martin, Phys. Rev. Lett. 91 (2003) pp.74802-74804.
- [3]. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, Appl. Phys. Lett. 77 (2000) pp.453-455.

- [4]. D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, Opt. Lett. 25 (2000) pp.1210-1212.
- [5]. M. van Exter, Ch. Fattinger and D. Grischkowsky, Opt. Lett. 14 (1989) pp.1128-1130.
- [6]. B. B. Hu and M. C. Nuss, Opt. Lett. 20 (1995) pp.1716-1718.
- [7]. S. Nashima, H. Daido, and M. Hosoda, Proc. of JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photo Research, (2006) pp.129-132.

4.9 量子制御のための中赤外 FEL パルス計測

Measurement of Mid-infrared FEL Pulses for an Optical Quantum Control

飯島北斗, 永井良治, 西森信行, 羽島良一, 峰原英介

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 ERL 光量子源開発研究グループ

Hokuto IIJIMA, Ryoji NAGAI, Nobuyuki NISHIMORI, Ryoichi HAJIMA, Eisuke MENEHARA ERL Development Group, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

We report measurements of chirped FEL pulse from an energy recovery linac (ERL) at Japan Atomic Energy Agency (JAEA). The chirped FEL pulse is operated by the JAEA ERL-FEL superconducting accelerator at wavelengths of 20 μ m. The chirped pulse was previously measured by a second-harmonic-generation (SHG) autocorrelation, however the chirp rate was evaluated to assume the temporal shape. In order to measure the chirp rate of FEL pulse without any assumption, the frequency-resolved optical gating (FROG) is employed to completely retrieve a spectral phase or a temporal phase. We show a FROG measurement of a pulse distorted by atmospheric water vapour absorption. The SHG intensity calculated from the retrieval intensity and spectral intensity of FEL pulse were good agreement with the SHG autocorrelation and the power spectrum.

Keywords: Free-electron laser, Energy-recovery linac, Chirp pulse, Optical quantum control

1. はじめに

我々は超伝導加速管を用いたエネルギー回収型の加速器(ERL)を用いて高出力FELの開発研究を 行なってきた^[1,2]。これまでのFELパルス測定から(中心波長~20μm)、そのパルスがチャープしているこ とが分かっていたが^[3]、過去に行なったSecond Harmonic Generation (SHG)自己相関やスペクトル計測 では、FELパルスの形状を仮定してチャープを評価するしかなかった^[4]。チャープした中赤外光は、例え ば、多原子分子の解離などに応用できる^[5,6]。多原子分子の解離はそのモードの準位を遷移しながら解 離極限の状態に達することで行なわれる。しかし通常の光では極限に達するまでに、解離のためのエネ ルギーの一部が分子内の振動モードに再分配される。このため解離の効率は高くない。ここで解離のた めの準位に合うようにチャープされた光を用いれば、その遷移は共鳴的に起こり、解離の効率は飛躍的 に上がる。

FELを多原子分子解離に応用するためにはチャープレートをよくおさえておく必要がある。そこで我々 は周波数分解光ゲート法(Frequency-Resolved Optical Gating, FROG)^[7]を用いて、ERL-FEL光パルスの チャープレートを測定することとし、その計測装置を構築した。本測定では、過去の実績から^[8]倍波発生 を利用した、SHG-FROGを行なった。

2. FROG によるパルス計測装置

FROGの原理は参考文献^[7]が詳しい。測定装置は自己相関を測るautocorrelator部とSHGの波長(周波数)分布を測るspectrometer部からなる。Fig.1 は今回構築したSHG-FROGの測定系の概念図である。 実験室側で集光されたFELパルスは最初、厚さ 13µmのポリエチレンフィルムによるビームスプリッター (BS)で2つの光に分けられる。それぞれの光はレトロリフレクター (RR)で反射した後、放物面鏡 (PM)に入射する。リフレクターの 片方はステッピングモーターで駆 動する自動ステージの上に設置 されており、FROGで必要な光学 遅延(OD)はこれで行なった。放 物面鏡に入射する2つの光は、そ れぞれのリフレクターへの入射位 置を調整することで、20mmの間 隔を持たせている。放物面鏡は 焦点距離150mmの金コートミラー で、倍波結晶(Te、t=2mm)をこの 焦点位置においている。

SHGを効率よく発生させるに



Fig.1 Schematic view of Frequency-Resolved Optical Gating (FROG) setup. BS; beam splitter, RR; retro-reflector, PM; parabolic mirrors, Cry; SHG crystal.

はFELの偏向とTe結晶の方位をあわせる必要がある。結晶位置でのFELの偏向は事前に測定をし^[9]、 大まかに結晶方位をあわせた後、実際のSHGの出力を観測しながらマイクロメータによって角度 の微調整を行い、出力が最大となるようにした。この後、回折格子型の分光器で、発生したSHG の波長分布を液体窒素冷却型のMercury Cadmium Telluride (HgCdTe、MCT)を用いて測定した。 MCTからの信号は増幅した後、オシロスコープに入力している。

JEAE-ERLの加速器室と、FROGのための実験室は約 24mの光学輸送系で結ばれている^[10]。この光 学輸送系は大気中の水分が光を吸収することを避けるために、加速器室側および実験室側の集光系を 含め、真空チェンバー内に収めている。本実験では装置調整のため、FROG計測装置は大気開放の状 態で実験を行なった。輸送系を真空にしたことで、その輸送効率は 70~80%に改善された^[9]。ただし、あ まりに強いFELは倍波結晶にダメージを与えるため、本計測ではFELの平均パワーを 200mW程度に抑 えて行なっている。



Fig.2 Measurement FROG trace (left) and calculated trace (right) from the retrieval pulse.

3. 測定結果

以下に今回の装置で測定した FEL パルスの結果の一例を示す。Fig.2 (left)は測定された FROG の画 像である。この測定では電子ビームのマクロパルスの幅を 130µs とし、90~130µs の間にゲートをかけて 測定した。マクロパルスの繰返しは 10Hz で、FROG 画像の1測定点は4パルスの積算をかけている。取 得された画像は補間を行い、再構築を行なうために 162×162 に分割している。1枚の画像取得時間は、

分割数によるが、20~50分程度で Fig.3 及び Fig.4 の再構築の結果は取得時間内の平均 的なパルスを表している。

Fig.3 は再構築された FEL パルスの時間領 域表示である。なお、FROG に SHG を用いた 場合、SHG 自己相関が遅延時間に対して対 称になることに起因して、再構築されるパルス も原理的に時間の前後が決定できないが、こ こではシミュレーションの結果等から便宜的に Fig.2 のような時間方向に決定した。この結果 から見て取れるように、時間領域における FEL パルスの半値幅は 1ps で、このほか行なった 計測においても 1~2ps であった。これは装置 評価のための行なった非共軸 SHG 自己相関 の結果から予想されるパルス幅とよく一致した。 また、メインパルスの後にいくつかのサブパル スが存在しているのが分かる。



Fig.3 Temporal intensity and phase of FEL pulse retrieved from the FROG trace in Fig 2 (left).

Fig.4はFig.3をフーリエ変換したFELパルスの周波数領域表示である。周波数領域においては、その 半値幅は 4THz であった。今回光輸送系は真空にしたものの、スペクトルにはまだ、水の吸収が見られる。 このため、吸収の位置における位相の変化が大きく、結果、位相がばらついている。また、再構築された スペクトルは、単純なスペクトル計測の結果と水の吸収を含めて一致した。



Fig.4 Spectral intensity and phase of FEL pulse transformed from the Fig 3.

FROGにおける再構築の妥当性は、SHG自 己相関やスペクトル計測の結果と比較する以 外に、測定されたFROG画像と再構築された パルス波形から再び計算される画像 (Fig.2(right))との比較でも行なっている^[6]。こ れは次式を用いて評価している。

$$G = \sqrt{\frac{1}{N^2} \sum_{i,j=1}^{N} \left| I_{i,j} - \alpha I_{i,j}^{(k)} \right|^2}$$

上式でNは画像の分割数、 I_{ij} は測定された各 点(ω_i, τ_j)での強度、 $I^{(k)}_{ij}$ は再構築された強度 で α は規格化定数である。Fig.2 に示した測定 ではG=0.2%であった。

4. FEL パルスのチャープに対する考察

一般にスペクトルが「櫛」のような形状を持っていた場合、時間領域においてサブパルスが現れてくることが知られている。この場合、サブパルスは時間の正負両側に現れる。一方、パルスが3次の分散(2次のチャープ)、つまり周波数領域における位相が周波数に対して3次関数に従う変化をした場合、時間領域においてはメインパルスを中心に時間の片側にのみサブパルスが現れる^[7]。

本測定では、Fig.4 の結果を見るかぎり、水の吸収が観測されており、また、周波数に対する位相の変化も明確に3次関数にしたがっているとはいえない。しかし、時間領域においては時間の片側にしかサブパルスは現れておらず、この点からはパルスが2次のチャープを持っている可能性がある。いずれにせよ、明確にパルスのチャープレートを評価するためには、さらに水の吸収に対する改善を行なう必要がある。この点に関しては現在、光輸送系の改良と FROG 計測系そのものを真空内に入れることを検討している。

5. まとめと今後

JAEA-ERL では超伝導加速器を利用して、チャープした FEL を発振させている。このパルスのチャー プレートを定量的に測定するために FROG によるパルス計測装置の構築を行なった。今回、測定された パルスは自己相関やスペクトル測定の結果と一致しており、計測系としては完成したといえる。今後、輸 送系における真空度の改善とともに、加速器のパラメータとパルス波形の相関を測定していく。

なお本研究は一部、科学研究費補助金(若手(B))18740265の援助を受けている。

参考文献

- [1] N. Nishimori, et al., Nucl. Instrum. and Meth. A, 475 (2001) p.266
- [2] R. Hajima, et al., Nucl. Instrum. and Meth. A, 507 (2003) p.115
- [3] R. Hajima and R. Nagai, Phys. Rev. Let., 91 (2003) p.024801
- [4] R. Nagai, et al., Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.264(2002).
- [5] S. Chelkowski, et al., Phys. Rev. Let., 65 (1990) p.2355.
- [6] 藤村勇一, O plus E, No. 176, p. 102.
- [7] R. Trebino, et al., Rev. Sci. Instrum., 68(1997) p.3277.
- [8] R. Nagai, et al., Proc of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.240(2001)
- [9] H. Iijima, et al., Proc. of the 3rd Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, p.738(2006).
- [10] H. Iijima, et al., Proc. of the 2nd Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, p.793(2005)

4.10 表面プラスモン共鳴を用いた放射線検出器の開発

Development of Radiation Detector using Surface Plasmon Resonance (SPR)

○國枝 雄一、永島 圭介、長谷川 登、越智 義浩 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

○Yuichi KUNIEDA, Keisuke NAGASHIMA, Noboru HASEGAWA, Maki, Yoshihiro OCHI X-ray laser research group, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

A new radiation detector has been developed for an X-ray laser detection with high time and spatial resolution. The detector consists of a prism coated with a thin metal film and semiconductor film. The thicknesses of these films are about 45nm and 10nm, respectively. Using this detector, a probe light can excite surface plasmon resonance (SPR) and a photodetector can detect the X-rays which are absorbed into the semiconductor film by measuring the resonance condition of the surface plasmon on the metal surface. The time and spatial resolution of this detector is probably better than that of conventional X-ray detectors by combining this surface plasmon measurement with the pump and probe measurement using a Ti:sapphire laser. In this proceeding, we describe the principle of this detector and report the SPR curves measured by using the two kinds of prisms coated with thin films (Au+Si and Au+ZnSe).

Keywords: Radiation detector, Surface plasmon resonance, Evanescent wave, X-ray laser, Pump and probe time resolved measurement

1. Introduction

日本原子力研究開発機構関西光科学研究所で開発されている X 線レーザーは高輝度(1 パルス 当たりのフォトン数、1×10¹⁰photons)、短パルス(パルス幅、7ps)、高空間コヒーレンス(ビーム発散角、 1mrad)等の特長を持つ光源であり、これまでにこの装置を用いてスペックル法を用いた時間相関分 光[1]や希ガスクラスターのイオン化過程の解明[2]、X 線干渉計を用いたプラズマ計測[3]等の研究 が行われてきた。これらの研究に用いられる検出器には X 線 CCD や X 線ストリークカメラが挙げら れるが、X 線 CCD の場合はピコ秒オーダーの時間分解能が得られない点、X 線ストリークカメラの場 合は1次元のみでしか 10µm 程度の空間分解能が得られない点が X 線レーザー計測の制約となっ ていた。

本研究では、パルス幅がフェムト秒オーダーのチタンサファイアレーザーと近年バイオセンサとし て利用研究が盛んな表面プラズモン共鳴を組み合わせて 1ps 程度の時間分解能と2 次元で 10µm 程度の空間分解能が期待される X 線レーザー計測用の検出器(以下、SPR 放射線検出器と呼ぶ) の開発を行っている。

本予稿では、この検出器の原理と検出器の候補としてこれまでに行ってきた2種類の薄膜コーティング プリズム(Au+Si+MgF2 プリズム、Au+ZnSe プリズム)の表面プラズモン共鳴を測定によって調べたので報 告する。

2. Principle

表面プラズモン共鳴(Surface plasmon resonance:SPR)とは金属薄膜の表面に局在するプラズモンと光の全反射時に発生するエバネッセント波の共鳴を指す。この現象では金属表面から数 100nm のわずか な屈折率変化が反射率の差異として現れるためバイオセンサ等に応用されている[4]。

本研究ではこの表面プラズモン共鳴をX線センサとして利用する。図1にその概念図を示す。市販の直 角プリズムに 50nm 厚程度の金属を堆積しており、全反射角を超えるある角度で光をプリズム側から入射 すると表面プラズモン共鳴が起こり、図1左の光の入射角度に対する反射光のグラフの実線のように全反 射領域内で反射率の急激な減少が起こる(SPR 曲線)。本研究では金属の上にさらに半導体を堆積させ た構造にしている。半導体は厚さ 10nm 程度であり、X線吸収体に相当する。



図 1. SPR 放射線検出器の原理(右図は検出器の概略図、左図は想定される X 線入射前後の SPR 曲線)

X 線が半導体中に吸収されると X 線入射領域にキャリアが生成される。交流場ではキャリアの電気伝 導度 $\tilde{\sigma}$ は以下の式で表されるように複素屈折率と相関を持つため X 線入射位置の複素屈折率 \tilde{n} が変 化する。

 $\widetilde{\sigma}=\sigma_{1}+i\sigma_{2}$

 $\widetilde{n} = n + i\kappa = \sqrt{(1 - \sigma_2 / \omega \varepsilon_0) + i(\sigma_1 / \omega \varepsilon_0)}$ (*n*:屈折率、 κ :吸収係数、 ω :周波数、 ε_0 :真空誘電率)

それに伴い、SPR曲線も図1左のグラフ点線のように表面プラズモン共鳴の性質により変化する。よって、 入射光を共鳴角近傍のある角度に固定した状態で半導体薄膜に X 線を入射すると X 線入射領域のみ の反射率が変化するので、反射光を CCD 等で検出することによって X 線入射位置を検出できる。

検出器の空間分解能の理論的限界は共鳴時に励起される表面プラズモンの伝播長で決まり Au と半 導体の組み合わせでは 2 次元で 10µm 以下が予想される。また、時間分解能に関しては表面プラズモン の励起光のパルス幅で制限される。よって、チタンサファイアレーザーを用いたポンプ&プローブ高時間 分光法では 100fs 程度になり、既存の検出器を超える性能が期待できる。

検出感度はプリズムにコーティングする薄膜の種類(屈折率が物質ごとで異なるため)や各膜厚に依存 する。よって、X線検出器に利用する場合に最も検出感度が良くなるパラメータを調べる必要がある。本 研究では経年変化が起き難い点から金属には Au を採用し、半導体にはナノメートルオーダーの製膜が 実証されている Si と ZnSe 採用した。Au+Si と Au+ZnSe、2種類の薄膜コーティングプリズムを製作し、チタ ンサファイアレーザーを用いて各々の SPR 曲線を測定した。 3. Experimental results



図 2. SPR 曲線測定系の概略図

図2にSPR曲線の測定系の概略 図を示す。光源は波長 790nm(近 赤外)、パルス幅 80fs、出力エネ ルギー10mJ、P 偏光に設定された チタンサファイアレーザーを用い た。ビーム径はアイリスを使って 3mm φとした。レーザー光は途中 のビームスプリッタによって2つに 分けられており、一方はレーザー 変動をモニターするために参照 信号測定用 Si フォトダイオードに 、もう一方は回転ステージに設置さ れた薄膜コーティングプリズムに入

射される。回転ステージは θ-2 θ のゴニオステージになっており、プリズムからの反射光を測定するため に Si フォトダイオードが設置されている。参照信号用と反射光測定用の 2 つのフォトダイオードからの信 号をアンプで増幅し、オシロスコープで読み出した。

この測定系により Au+Si コートプリズムの SPR 曲線を調べた。その結果を図 3 に示す。使用したサンプ ルの構造はプリズム上に厚さ 45nm 程度の Au を堆積し、その上に 10nm 厚程度の Si を堆積、さらにその 上に酸化防止膜として MgF₂膜を 5nm 厚程度堆積している。図 3 左のグラフはこの Au+Si+MgF₂プリズム の SPR 曲線の測定結果とそのフィッティング結果、各薄膜の複素屈折率(実部が屈折率、虚部が吸収係 数)の文献値を用いた計算結果を示す。その結果、測定結果は計算結果と大きく異なり表面プラズモン 共鳴による明確な反射率の減衰は現れなかった。同じ膜厚の Au のみコートしたプリズムでは、測定結果 は計算結果で説明でき、また、MgF2 膜にしても薄膜にした場合に光学的性質が大きく変わっているとは



図 3. Au+Si+MgF₂プリズムの断面図(左上)。波長 790nm に対する各物質の屈折率(n)と吸収係数(K)。数値はフィッティング パラメータであり、カッコ内は文献値(左下)。Au+Si+MgF₂プリズムの SPR 曲線。各データは測定結果、フィッティング結果、 文献値を用いた計算結果(右図)。

考え難い。これらの点から Si の複素屈折率が理論値と大きく異なっていると考えられ、図 3 右下のように 各薄膜の複素屈折率を設定してフィッティングを行うと測定結果に良く合う。Si の複素屈折率が理論値と 異なる理由は Si のバンドギャップエネルギー(*E*_g≤1.1eV)が入射光のフォトンエネルギー(*E*=1.57eV)に比 べて小さいため Au 表面に励起したプラズモンのエネルギーが Si に吸収されているからであると考えられ る。

この点について確かめるために入射光のフォトンエネルギーよりも大きいバンドギャップエネルギーを持 つ ZnSe(*E_g*≦2.6eV)と Au から成る薄膜コーティングプリズムの SPR 曲線を調べた。その結果を図 4 に示 す。使用したサンプルはプリズム上に Auを 45nm 厚程度堆積し、ZnSeを 10nm 厚程度堆積させた構造に なっている。SPR 曲線を測定した結果、図 4 左に示すように共鳴点における明確な反射率の減衰を確認 することができた。この結果から、SPR 放射線検出器に用いる半導体には入射光のフォトンエネルギーよ りも大きいバンドギャップエネルギーを持ったものを選択する必要があると考えられる。



図4. Au+ZnSe プリズムの断面図(左上)。波長 790nm に対する各物質の屈折率(n)と吸収係数(K)。数値はフィッティングパラ メータであり、カッコ内は文献値(左下)。Au+ZnSe プリズムの SPR 曲線。各データは測定結果とフィッティング結果(右図)。

4. Summary

本研究で行っている SPR 放射線検出器は、X 線レーザー計測を行う場合に既存の検出器に比べて高 い時間分解能と空間分解能が期待できる。この検出器の感度はプリズムにコーティングする金属/半導 体に依存するため各物質の選択が検出器を実用化する上で大変重要である。Au+Si プリズムと Au+ZnSe のプリズムを使用して各々の SPR 曲線を調べた結果から入射光のフォトンエネルギーよりも大きなバンド ギャップエネルギーを持つ半導体を使用した場合の方が共鳴点における明確な反射率の減衰が現れる との見解が得られた。今後は SPR 放射線検出器に最適な金属/半導体の組み合わせを調べる予定であ る。

References

- [1] K. Namikawa et al., JAERI-Conf **2007-001**, pp.73-83 (2007).
- [2] S. Namba et al., Phys. Rev. Lett. 99, p.043004 (2007).
- [3] H. Tang et al., Appl. Phys. B, **78**, p.975-977 (2004).
- [4] K. Kurihara et al., Anal. Chem, 74, p.696 (2002).

4.11 レーザープラズマX線源におけるX線コンバータ効果の評価 Estimation of X-ray Converter Effect in Laser Plasma X-ray Sources

大石祐嗣^A,名雪琢弥^A,藤井隆^A,A. Zhidkov^A,根本孝七^A 高野啓^B

^A(財)電力中央研究所 〒240-0196 神奈川県横須賀市長坂2-6-1 ^B東京工業大学 総合理工学 〒226-8502 横浜市緑区長津田町 4259

Y. OISHI^A, T. NAYUKI^A, T. FIJII^A, A. ZHIDKOV^A, and K. NEMOTO^A K. TAKANO^B

^ACentral Research Institute of Electric Power Industry, 2-6-1, Nagasaka, Yokosuka-shi, Kanagawa-ken, 240-0196, Japan

^BInterdisciplinary Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology, 4259, Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama 226-8502, Japan

X-ray generation using T-cubed laser is expected to be a useful diagnostic tool for power plants because of its compactness and easy controlling. Thus far, we have succeeded in generation of electrons and ions with MeV order energy by irradiation of T-cubed laser on thin tape target. MeV order X-ray is also expected to be generated using a similar system. However, for radiographic tests, a large amount of X-ray is necessary and effective energy conversion from electron into X-ray is required. Here, in order to increase high energy X-ray, we used a converter from fast electron into X-ray placed behind a thin tape target and estimated the converter effect by varying converter materials and thicknesses.

Keywords: Laser Plasma X-ray, Radiography, Facility Diagnosis

1. はじめに

発電設備をはじめとする各施設において応力腐食割れや配管減肉対策は重要な課題であり、効果的 な設備診断技術が必要とされる。レーザープラズマX線源では、X線ソースサイズは数十µm~数百µm であると考えられ、同位体線源に比べ高い空間分解能が得られやすいと期待される。当所ではこれまで Tキューブレーザーを薄膜ターゲットに照射することで、数メガ電子ボルト(MeV)級の電子を生成する事 に成功しており[1]、MeV級のX線生成も期待できる。MeV級のX線であれば、数 cm~十数 cm の配管も 透過するので、発電設備等での放射線透過検査への適用が可能である。ただし、X線は電子からの制 動輻射がその起源であり、X線透過画像の撮影に適用するためには、高エネルギーかつ高強度のX線 を発生させる技術を確立する必要がある。今回我々は、高エネルギーX線の強度を高めるために、レー ザープラズマX線源において電子発生部であるターゲットとX線変換部を切り離したX線コンバータ方式 [2]を提案し、その有効性を実験的に評価したので報告する。

2. 実験装置

今回用いた実験装置を図1に示す。レーザーはタレス社製チタンサファイアレーザー(Thales laser, Alpha 10/US-20TW)を使用した。このレーザー仕様は、最大エネルギー1J、最短パルス幅 50fs、繰り返 し周波数 10Hz であるが、安全性の観点から、レーザーエネルギー114mJ、パルス幅 68fs、シングルショッ トモードで実験を行った。 基本中心波長 800nm、P 偏光のレーザー光は、軸外し放物面鏡によりターゲ ットに対して 45°で入射し、スポットサイズ 4.3×12.3 μ m²(半値全幅)にフォーカスされる。メインスポット には約 57%のエネルギーが到達し、レーザー強度は 4.1×10¹⁸ W/cm² に及ぶ。ターゲットには厚さ5 μ m の銅テープターゲットを使用し、常に未照射面が照射位置に供給されるよう1ショットごとにテープを移動 させた。テープ駆動による面精度は±15 μ mで、これはレイリー長 100 μ mに比べ十分小さな値であった [3]。

電子からX線へ変換するためのコンバータ材とし て、厚さ0.2, 0.5, 1.0mmのタングステンおよび厚さ 0.1mmの銅を用いた。タングステンを選んだ理由 は、電子からX線への変換への主な機構は制動輻 射であり、この反応は原子番号 Z の自乗に比例す るため、薄くても効率よく変換できると考えたからで ある。コンバータの設置場所はより多くの電子が変 換されるよう、また電子ビームは発散するのでX線 源の大きさが小さくなるよう、できるだけターゲットに 近い位置を選び、タングステンの場合はターゲット 後方約 1cm、銅の場合はターゲット直後に設置し た。



図1 実験装置図

生成されたX線の線量計測には電離箱検出器(ローテム社製, RAM DA-2000, IC-10XP)を用いた。 線量計測の際,電離箱検出器の前に数種類のフィルターを置きX線を減衰させることにより線量を変化さ せ,その変化の仕方からX線温度を推定することができる。ここでは,X線フィルターとしてタングステン W (厚さ0.2,0.5,1,3,5,10 mm),銅Cu (厚さ1,3,5,10 mm),アルミ Al (厚さ1,2,3,5,10 mm)を用意した。 画像計測のための検出器としてはX線イメージインテンシファイアー(東芝社製,E5877J-P1K)と CCD カ メラを組み合わせたもの,およびイメージングプレート(富士フィルム社製 BAS-SR127, Rigaku 社製 IP reader R-AXIS DS3CL)を用いた。これらの測定器は主にターゲットに対して垂直方向,ターゲットから 80cm の距離に配置して実験を行った。ポンデロモーティブ力によって加速される方向は主にターゲット に対して垂直方向であり、この方向に最も多く生成されると考えられるからである。

3. 結果

図2は電離箱で測定したレーザー1ショットあたりの線量をX線コンバータを変えて測定したものである。 このグラフではタングステンフィルターWの厚みを横軸としているが,数MeV以下のエネルギー領域では エネルギーの高いX線ほど厚いフィルターを透過できると考えられるので,横軸はX線のエネルギーに関 係するものとみなすことができる。また、(a)はターゲット垂直方向、(b)はレーザー進行方向にて測定したものである。これよりレーザー進行方向のX線線量はターゲット垂直方向に比べ約1桁程度小さいことが分かる。(a)において、コンバータがない場合と厚み0.1mmのCuコンバータを設置した場合の結果を比較すると、Cu 0.1mmコンバータの方が薄いフィルター領域(低エネルギー領域)において線量が増加している。これは、低エネルギーの電子が Cu 0.1mmコンバータにより効率よくX線に変換されたためと考えられる。厚み 0.2mm、0.5mm の W コンバータでは期待したコンバータ効果が現れており、低エネルギーのX線はコンバータによる遮蔽効果により減少しているが、高エネルギーX線が増加していることがわかる。X線減衰フィルター1mm 厚 W 通過後のX線強度はコンバータがない場合に比べ約2.5 倍向上している。一方、厚み 1mm の W コンバータにおいては、コンバータ効果よりも遮蔽効果の方が大きく、W 0.2 mm、W 0.5mm コンバータに比べ高エネルギーX線においても減少が確認できる。また、今回の実験で生成されたX線エネルギーの等価温度をGeant4コード[4]を用いてシミュレーションしたところ、120-270keVと推定された。





次に生成したX線を用いて幾つかのX線画像を取得した。ここではコンバータとして全て Cu 0.1mm を 用いた。他のコンバータを用いた場合(コンバータなしも含む)には、X線強度が十分でないせいか、粗 い画像しか得られなかったり、より多くのショット数を必要としたからである。

図 3(a)は回路基板をサンプル試料とした場合の画像で、検出器としてX線イメージインテンシファイア ー(X.I.I.)、を使用している。レーザーの積算ショット数は 3 ショットである。サンプル試料はターゲットから 約 80cm の距離にある検出器に直付けした。図 3 (b)は厚さ 1mm の Cu 銅板を少しづつずらして 5 枚重ね 合わせた試料に対して、レーザーを 100 ショット積算して得た X.I.I.画像である。厚さ 4mm まではステッ プが観測できるが、4mm と 5mm の区別は難しいことから、この厚さが透過限界とみられる。今回の実験条 件では 100keV 以上のX線は生成されているものの、その強度はかなり低いものと予想される。X線の強

-95-

度を高めるためには、ターゲットとAI窓の距離を短くする、レーザーエネルギーを上げる、繰り返しレーザ ーショットを 10Hz モードで行う、プリパルス効果を導入するなどの手法が考えられる。プリパルスは、レー ザのメインピークパルスよりターゲットにほんの少し前に到着するピークパルスのことで、この強度・タイミン グを調整することでプラズマ中の高速電子を増加させることができると報告されている[5]。



(a) 回路基板

0mm
1mm
2mm
3mm
4mm
5mm

(b) 銅板ステップ

図3 レーザープラズマX線による透過像撮影例

4. まとめ

高エネルギーX線の発生強度を向上するために、ターゲットとX線変換部を切り離したX線コンバータ 方式を提案した。Tキューブレーザー(エネルギー114mJ,パルス幅 68fs)を厚さ5µmの銅テープターゲ ットに照射し生成したX線を計測し、X線コンバーターの有効性を実験的に評価した。原子番号の高い タングステンをコンバータに用いた場合、厚さ0.2~0.5mmにおいてX線強度が高くなり、コンバータがな い場合の約2.5倍に向上した。

参考文献

[1] Y. Oishi et al., Appl. Phys. Lett. **79**, (2001) p.1234.

- [2] 大石他, 電力中央研究所研究報告 H05014(2006).
- [3] T. Nayuki, et al., Rev. Sci. Instrum. 74, p.3293 (2003).
- [4] http://geant4.web.cern.ch/geant4/
- [5] X. Wang, et al., Phys. Plasmas 12, p.113101 (2006).
4.12 UV Fluorescence from Zinc Oxide Excited by X-ray laser

Yusuke FURUKAWA¹, Hidetoshi MURAKAMI¹, Sigeki SAITO¹, Nobuhiko SARUKURA¹, Hiroaki NISHIMURA¹, Kunioki MIMA¹, Momoko TANAKA², Masaharu NISHIKINO², Hiroshi YAMATANI², Keisuke NAGASHIMA², Toyoaki KIMURA², Yuji KAGAMITANI³, Dirk Ehrentraut³, Tsuguo FUKUDA³ 1. Institute of Laser Engineering, Osaka University 2. Advanced Photon Source Development Unit, Quantum Beam Science Directorate,

Japan Atomic Energy Agency

3. Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

The scintillation properties of a hydrothermal method grown zinc oxide (ZnO) crystal are evaluated for extreme ultraviolet (EUV) laser excitation at 13.9 nm wavelength. The exciton emission lifetime at around 380 nm is determined to be 1.1 ns, almost identical to ultraviolet laser excitation cases. This fast response time is sufficiently short for characterizing EUV lithography light sources having a few nanoseconds duration. The availability of large size ZnO crystal up to 3-inch is quite attractive for future lithography and imaging applications.

Keywords: EUV laser, X-ray Laser, Scintillation, Ultraviolet, ZnO

Optical technologies in the extreme ultraviolet (EUV) region have been receiving strong interest for next-generation lithography applications. Efficient EUV light sources have been successfully demonstrated in the past 5 years.^{1,2} Owing to such advances, various efforts have also been made for the development of functional optical components in this wavelength region. In particular, the development of efficient and fast imaging scintillator devices with sufficient size is a key element for lithographic applications. In these aspects, hydrothermal method grown zinc oxide (ZnO) is a prominent candidate. ZnO has been intensively studied the past ten years as a light-emitting diode material³ and as a result, its growth characteristics have been greatly improved in the aspect of crystalline quality and size of up to 3 inch-diameter.⁴ For the evaluation of this material, a nickel-like silver laser operating at 13.9 nm is the ideal light source; having large pulse energy up to about microjoules level and a sufficiently short pulse duration down to several picoseconds.^{5,6} In this paper, we report the excellent properties of ZnO as scintillator in the EUV region in the context of response time and fluorescence wavelength.

The experimental setup is shown in Fig. 1. The EUV laser operating at 13.9 nm was employed as the excitation source. The lasing scheme is the 4p-4d transition of the nickel-like silver ion pumped with the transient collisional excitation.⁵ The two gain medium plasmas of the EUV laser were generated by irradiating flat silver targets with double laser pulses at a wavelength of 1053 nm, 200-ps-duration pre-pulse and 3-ps-duration main pulse separated by 2 ns.⁷ The typical pulse energy of the EUV laser emission was 0.5 μ J and the duration was 7 ps. This value is sufficiently short for this experiment. The



Fig.1. Experimental setup for the measurement of time resolved spectrum with UV and EUV excitation.

single crystal ZnO sample is grown by hydrothermal method combined with a platinum inner container.⁴ High-purity and transparent ZnO single crystal with a large size of $50 \times 50 \times 15 \text{ mm}^3$ was sliced with a (0001) surface orientation. The EUV laser was focused on the sample using a molybdenum/silicon multilayer spherical mirror suitable for 13.9 nm. To eliminate continuous emission from the plasma, a 0.2 µm-thick zirconium foil was placed before the EUV mirror. The fluorescence spectrum and the fluorescence lifetime of the ZnO sample were measured using the 25 cm-focal-length spectrograph coupled with a streak camera with the temporal resolution of 100 ps in the fastest scanning range. The trigger pulse of the streak camera was provided by a pulse generator, which also served as the master clock of the EUV laser. For comparison, the scintillation properties were also evaluated using the 351 nm third harmonics from the 1053 nm chirped pumping source for the EUV laser, the ZnO was excited at an energy slightly above the bandgap. The pulse duration of the 351 nm excitation is measured to be 110 ps

One shot of EUV laser was enough to obtain a clear image of time-resolved fluorescence spectrum. Figure 2(a) shows the streak image, which is integrated for 3 frames to reduce the noise level. The time profile at the peak of the spectrum is shown in Fig. 2(b). It can be expressed by double exponential decay with time constants of 1 ns and 3 ns. The two decay constants have been measured in several works for UV excited ZnO single crystals, the fast decay is the lifetime of free exciton and the slower decay is assigned to be trapped carriers.⁸ The corresponding fluorescence spectrum and the time profile of UV excitation is shown in Fig. 5(c), (d). In both the excitation conditions, a prominent fluorescence peak of the ZnO exciton transition was observed at around 380 nm.⁹ This wavelength is still convenient for high resolution imaging devices, since even BK7 glass is transparent at this wavelength. Moreover, the two decay lifetimes observed in both cases were almost similar regardless of the huge difference in the excitation photon energy. The fluorescence lifetime is sufficiently short for the characterization of the laser plasma EUV source with nanoseconds duration for lithographic applications. Furthermore, a large-sized and homogeneous material is potentially attractive for EUV imaging applications including lithography.



Fig. 2. Streak camera images and temporal profiles of the fluorescence from ZnO, which are excited by a), b) EUV laser pulses (13.9 nm) and c), d) UV laser pulses (351 nm). The temporal resolution of this measurement is 0.8 ns.

In conclusion, we have demonstrated the excellent properties of ZnO as a scintillation material for the EUV region. The response time is sufficiently short for characterizing EUV lithography light sources, having a few nanoseconds duration. The availability of large-sized ZnO crystal up to 3-inch is quite attractive for future lithography and imaging applications.

This work was in part performed by auspice of MEXT (Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology) project on "Development of Growth Method of Semiconductor Crystals for Next Generation Solid-State Lighting" and "Mono-energetic quantum beam science with PW lasers". The results were achieved under the Facilities Utilization system of Japan Atomic Energy Agency.

References

Y. Shimada, N. Nishimura, M. Nakai, K. Hashimoto, M. Yamaura, Y. Tao, K. Shigemori, T. Kawamura,
 A. Sunahara, T. Nishikawa, A. Sasaki, K. Nagai, T. Norimatsu, S. Fujioka, S. Uchida, N. Miyanaga, Y. Izawa, C. Yamanaka, Appl. Phys. Lett. 86, p.51501 (2005).

[2] S. Fujioka, H. Nishimura, K. Nishihara, A. Sasaki, A. Sunahara, T. Okuno, N. Ueda, T. Ando, Y. Tao, Y. Shimada, K. Hashimoto, M. Yamaura, K. Shigemori, M. Nakai, K. Nagai, T. Norimatsu, T. Nishikawa, N. Miyanaga, Y. Izawa, K. Mima, Phys. Rev. Lett. 95, p.235004 (2005).

[3] H. Ohta, K. Kawamura, M. Orita, M. Hirano, N. Sarukura, H. Hosono, Appl. Phys. Lett. 77, p.475 (2000).

[4] E. Ohshima, H. Ogino, I. Niikura, K. Maeda, M. Sato, M. Ito, and T. Fukuda, J. Cryst. Growth **260**, p.166 (2004).

[5] T. Kawachi, M. Kado, M. Tanaka, A. Sasaki, N. Hasegawa, A. V. Kilpio, S. Namba, K. Nagashima, P. Lu, K. Takahashi, H. Tang, R. Tai, M. Kishimoto, M. Koike, H. Daido, Y. Kato, Phys. Rev. A, 66, p.33815 (2002).

[6] A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, R. Smith, G. Jamelot, C. C. Popovics, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, F. Strati, G. J. Tallents, D. Neely, R. Cllarke, J. Collier, A. G. MacPhee, F. Bortolotto, P. V. Nickles, K. A. Janulewicz, Phys. Rev. A 65, p.33810 (2002).

[7] M. Tanaka, M. Nishikino, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Kado, M. Kishimoto, K. Nagashima, Y. Kato, Opt. Lett. **28**, p.1680 (2003).

- [8] J. Willinson, K. B. Ucer, R. T. Williams, Radiat. Meas. 38, p.501 (2004).
- [9] Y. Chen, D. Bagnall, T. Yao, Mater. Sci. Eng. B 75, p.190 (2000).

4.13 位相回転によるレーザー生成イオンビームの高品位化

High Quality Laser-Produced Proton Beam Created by Phase Rotation

野田章、中村衆*、池上将弘、岩下芳久、白井敏之、頓宮拓、想田光、田島裕二郎、田邊幹夫、 伊東宏之、新宅宏基、山崎淳^{\$}

京都大学 化学研究所 附属先端ビームナノ科学センター

Akira NODA, Shu NAKAMURA, Masahiro IKEGAMI, Yoshihisa IWASHITA, Toshiyuki SHIRAI, Hiromu TONGU, Hikaru SOUDA, Yujiro TAJIMA, Mikio TANABE, Hiroyuki ITOH,

Hiroki SHINTAKU, Atsushi YAMAZAKI

Institute for Chemical Research, Kyoto University

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、桐山博光、中井善基、圷敦、馬景龍、金沢修平、下村拓也、田上学、

山本洋, A. Pirozhkov, S. Bulanov, T. Esirkepov, 長島章、木村豊秋、田島俊樹 日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所

Hiroyuki DAIDO, Michiaki MORI, Masataka KADO, Akito SAGISAKA, Koichi OGURA,

Mamiko NISHIUCHI, Satoshi ORIMO, Yukio HAYASHI, Akifumi YOGO, Hiromisu KIRIYAMA,

Yoshimoto NAKAI, Atsushi AKUTSU, Jinglong Ma, Shuhei KANAZAWA, Takuya SHIMOMURA,

Manabu TANOUE, Hiroshi YAMAMOTO, Alexander S. Pirozhkov, Sergei Bulanov, Timor Esirkepov,

Akira NAGASHIMA, Toyoaki KIMURA, Toshki TAJIMA

Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency

Phase rotation of laser-produced protons has been performed in order to improve the beam quality with use of a short-pulsed high-power laser, J-KAREN at KPSI, JAEA. A laser pulse with the power, duration and peak power of 400mJ, 25fs and 16TW, respectively, has been focused on a polyimide target, 7.5 μ m in thickness, with the declination angle of 45°. Protons produced in the target normal direction from the rear surface have been detected by both a TOF detector consisting of a plastic scintillation counter and a Thomson parabola detector. Creation of protons up to 1.4 MeV was observed and peak formation in the energy spectrum with good reproducibility has been assured together with a radial focusing action by the phase rotation.

Keywords: Ultrashort pulse laser, Proton Production, Quasi-mono-energy Peak, Phase Rotation

1. はじめに

我々は、平成13年度より文部科学省の先進小型加速器のための要素技術開発の一環として、レーザー 加速イオンをパルスシンクロトロンの入射ビームとして用いることにより、がん治療用粒子ビーム加速器の 抜本的小型化を実現することを目指して、日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所の超短パルス レーザーを用いた固体薄膜からのイオン(主として陽子)ビームの生成及びこのパルスレーザーと位相同 期した高周波電場による縦方向位相空間における回転(位相回転)を用いたエネルギーピークの形成に よるレーザー生成イオンビームの高品位化を提案し、後続のイオン蓄積・冷却リング(内側リング) 現所属:*高エネルギー加速器研究機構、^{\$}東京大学大学院工学研究科

におけるホットイオンビームの電子ビーム冷却との結合も含めて、原理検証実験等を積極的に推 進してきた。ここでは従来からの研究開発に加えて、最近1年間に原研・光量子科学センターの J-KAREN を用いて行ったレーザー生成陽子ビームの位相回転による高品位化に的を絞って報告 する。

実験の概要

J-KAREN を用いた今回の実験の主眼はレ ーザーのパワー増大により、生成可能な陽子 ビームの最高エネルギーの追求と実用化に向 けて重要な要素を占めるショットごとの再現性 に関する情報を取得するという2点であった。 この目的のため、今回の実験では、レーザ ーによる陽子生成のパラメータの最適化を

リアルタイムで行うことが可能なプラスティク



Fig.1. Experimental setup of proton-beam production and its phase rotation with the use of J-KAREN.

シンチレータを用いた TOF 測定[1]を中心に行い、トムソンパラボラはエネルギー分布の検証のみに用い ることとし、ビームタイムの効率的使用に心がけた。この TOF によるパラメータ最適化により、7.5µm 厚の ポリイミドターゲット上へのパワー400mJ、パルス幅 25fs、ピークパワー16TW のレーザーの 45°傾斜角で の照射により、最大 1.4MeV までの陽子ビームがターゲットの裏面の法線方向を中心として生成されるこ とが確認できた。実験のセットアップを Fig. 1 に示した。

従来の J-LITEX の実験で確立した位相回転によるエネルギーピークの形成[2]に関しても TOF 測定を

中心にショット毎の再現性の確認を行っ た。Fig. 2 (a)に TOF 測定信号の分布を 位相回転を行った場合と行わない場合 の実験結果を位相回転有の場合のシミュ レーション結果と共に記す。位相回転を 行った場合に TOF 信号の実験結果はシ ミュレーションと非常によい一致が見られ ることが見て取れる。Fig.2 (b)にはこの TOF 信号のショット毎のばらつきの実験 結果を示した。レーザー強度の変動に伴 い生成される陽子ビームの強度はショット 毎にばらついているが位相回転で形成さ

を通じて変動しないことが確認出来た。 但し、この TOF 信号は、位相回転を行



れる TOF 信号のピーク位置はショット Fig.2 TOF distribution after phase rotation (a) and its variation shot to shot (b). Energy spectrum after phase rotation calculated by a computer simulation is given in (c) (Ref.[3]).

わない場合には、速度が一定であるので、陽子ビームのエネルギーと1対1に対応しているが、位相回 転を行った場合にはターゲットから検出器までの飛行時間中に陽子ビームのエネルギーが位相回転空 胴の高周波電場による加・減速のために変化を受けるので、陽子のエネルギーと1対1での対応はつか ず、TOF 信号のピーク中の陽子ビームエネルギーはシミュレーションの結果から Fig.2 (c)に示したように 今回の実験の際の高周波電圧等の条件では2山に分かれていることが判明している[3]。今回の実験で はレーザーのビームタイムの制約からトムソンパラボラで精密なエネルギースペクトルを得ることの可能な 充分な統計精度のデータは取得できていないため、こうした位相回転後の詳細なエネルギースペクトルの取得が次回の実験の主眼のひとつとなると考えている。

この実験では、CR39を用いて、標的の下流 387 mm に設置したメッシュの像の観測も行った。これにより位相回転の高周波電場による加・減速に伴い、動径方向のビームの集束・発散作用が生じていることが確認された。位相回転を行った場合のターゲットの下流 1.736 m 及び 2.365 m の位置で CR39 により 観測されたメッシュの像をそれぞれ Fig. 3 (b) 及び(c)に、またこれらに対応するシミュレーション結果を (e)及び(f)にそれぞれ示す。位相回転を行わない場合の 1.736 m の位置での CR39 による観測結果(a) 及びシミュレーション結果(d)に比較して、位相回転を適用した場合には中心付近の集束成分と周辺部 の発散成分の 2 成分が存在することが見て取れる。シミュレーションにより、Fig.2 (c)のエネルギーピーク 位置のビームは発散作用を受け、集束作用を受けるビームはエネルギー分布全般に拡がっていること が判明している[3]。

3. 結論と今後の展望

今回の実験結果を踏まえて、放射線 照射の面での実用化に向けて、TOF 検 出器を用いたレーザー及び生成標的等 のパラメータの最適化を行い、レーザー 生成イオン(当面は陽子)ビームの高エ ネルギーへの展開を推進すると共に、よ り高エネルギーのイオン(陽子)に対して 位相回転を適用可能とするためのスキー ムの開発を進めたいと考えている。併せ て、今回の実験で明らかになった動径方 向の集束・発散効果をエネルギー方向の 集束と両立させるスキームの開発を J-KAREN を用いた実験を通じて推進し たいと考えている。

参考文献

[1] S. Nakamura et al., "Real-Time Optimization of Proton Production by



Fig.3 Images of the mesh set 387 mm downstream from the production target observed by CR39 detectors at the positions 1.736 m and 2.365 m downstream from the target are shown in (b) and (c), respectively for the case of with phase rotation. Corresponding simulation results are shown in (e) and (f), respectively. Experimental image and simulation result at 1.736 m without phase rotation are shown in (a) and (d), respectively (Ref. [3]).

Intense Short-Pulse Laser with Time-of-Flight Measurement", Jpn.J.Appl.Phys.,Vol.45, No.34 (2006), pp.L913–L916.

[2]S. Nakamura et al., "High-Quality Laser-Produced Proton Beam Realized by the Application of a Synchronous RF Electric Field", Jpn.J.Appl.Phys.,Vol.46,No.29(2007), pp.L717–L720.

[3] M. Ikegami et al., submitted to PRL.

4.14 High energy proton generation from thin-foil targets with a high intensity laser

Akito SAGISAKA¹, Hiroyuki DAIDO¹, Akifumi YOGO¹, Koichi OGURA¹, Satoshi ORIMO¹, Jinglong MA¹, Michiaki MORI¹, Mamiko NISHIUCHI¹, Alexander S. PIROZHKOV¹, Sergei V. BULANOV^{1,2,3}, Timur Zh. ESIRKEPOV^{1,3}, Yuji OISHI⁴, Takuya NAYUKI⁴, Takashi FUJII⁴, Koshichi NEMOTO⁴, and Hideo NAGATOMO⁵

 ¹Advanced Photon Research Center, Japan Atomic Energy Agency, 8-1 Umemidai, Kizugawa-city, Kyoto 619-0215, Japan
 ²A. M. Prokhorov Institute of General Physics of the Russian Academy of Sciences, 38 Vavilov Street, 119991 Moscow, Russia
 ³Moscow Institute of Physics and Technology, 9 Institutskiy pereulok, 141700 Dolgoprudny, Moscow Region, Russia
 ⁴Central Research Institute of Electric Power Industry, 2-6-1 Nagasaka, Yokosuka, Kanagawa 240-0196, Japan
 ⁵Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka Suita, Osaka 565-0871, Japan

We observed the proton signals with thin-foil polyimide and copper targets with a high-intensity Ti:sapphire laser pulse. High-energy protons with the maximum energy of 2.3 MeV for 7.5 μ m thick polyimide target and 1.2 MeV for 3 μ m thick copper target are generated at the laser intensity of ~1 x 10¹⁹ W/cm² under preformed plasma condition.

Keywords: High intensity laser, Proton beam, Preformed plasma

1. Introduction

High-energy ions induced by laser-matter interactions have been observed experimentally [1-6]. The proton beam driven by a high-intensity laser is considered 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 is important as well as achieving high energy. The preformed plasma plays an important role in the absorption of the main pulse. Kaluza et al. reported that the optimal parameter of proton acceleration depends on the preformed plasma condition [8]. The experimental result indicated that the characterization of the preformed plasma is of essential importance for interpretation of ultra-short high-intensity laser-plasma interactions. Mackinnon et al. presented the maximum proton energy increase as reducing the target thickness [6]. Neely et al. observed the high-energy protons with thin-foil target with the thickness of < 1 μ m [9]. They used a plasma mirror to reduce the preformed plasma. Nayuki et al. reported that the maximum proton energy increased as the product of target thickness and target mass density decreased [10].

2. Experimental setup

We use a Ti:sapphire laser system at Central Research Institute of Electric Power Industry [11, 12]. In this laser system, the central wavelength is 800 nm and the pulse duration was 50 fs [full width at half maximum (FWHM)]. The contrast ratio of prepulse at ~ 5 ns before 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 pump and probe beams by a 5 µm-thick optical-grade nitrocellulose beam splitter. The pump beam is focused by an off-axis parabolic mirror with a focal length of f = 178.5 mm and a incidence angle of 45°. The spot size of the focused laser beam is 4 µm [vertical (FWHM)] x 5 µm [horizontal (FWHM)]. It contains the energy of ~61 % within $1/e^2$ from the profile of the focusing pattern. The estimated peak intensity was up to $\sim 1 \times 10^{19}$ W/cm² with the energy of 300 mJ at the target surface. The probe beam is frequency-doubled in 2 mm thick KDP crystal (Type-I). The pulse duration of the second harmonic pulse is estimated to be



Fig.1 Experimental setup

~200 fs because of an effect of group-velocity dispersion. We use both fundamental (800nm) and second harmonic (400nm) pulses for optical probe beam. The two-color probe beams pass through the optical delay line. A linear translation stage is used to vary the delay between the pump and probe beams. Interference fringes are produced using a Fresnel biprism [13, 14]. The plasma image is magnified by a factor of ~10 and detected by the CCD camera. The resolution in the object plane is approximately 10 μ m. The intensity of the probe beam is attenuated by neutral density filters so as to fall within the dynamic range of the camera. A narrow-band interference filters for each wavelength are placed in front of the CCD cameras to reject unwanted emission from the plasma. The band pass width is 10 nm for both wavelength filters. The electron density profiles are obtained from interferometric measurements using few hundred femtosecond probe pulses at the 50 ps before the pump beam. The protons are observed with a time-of-flight (TOF) ion energy analyzer [15, 16]. The protons produced by the intense laser are measured in the direction normal to the target with the TOF length of 2.1 m. The TOF proton measurement gives an on-line real time information of proton energy distribution.

3. Experimental results

High-energy protons are observed at the rear side of the thin-foil target at the laser intensity of $\sim 1 \times 10^{19}$ W/cm². The electron density distribution of preformed plasmas are measured with two-color probe

beam as interferometers. The preformed plasmas at the front side of the targets are generated by prepulses of a high-intensity Ti:sapphire laser pulse for both polyimide and copper targets. Figure 2 shows the proton energy distributions obtained from the TOF spectra with 7.5 μ m thick polyimide and 3 μ m thick copper targets. The solid and dashed lines show the energy distributions for 7.5 μ m thick polyimide and 3 μ m thick copper targets, respectively. The maximum proton energy of 7.5 μ m thick polyimide target is ~2.3 MeV. In the case of 3 μ m thick copper target the maximum proton energy is 1.2 MeV at the same laser intensity. The maximum proton energy of 7.5 μ m thick polyimide target is higher than that of 3 μ m thick copper target as shown in Ref. 10.



Fig.2 Energy distribution of protons

4. Summary

We observed the proton signals with thin-foil targets of a polyimide and copper. The preformed plasmas at the front side of the targets are generated for both polyimide and copper targets. In these preformed plasma conditions, high-energy protons with the maximum energy of 2.3 MeV for 7.5 μ m thick polyimide target and 1.2 MeV for 3 μ m thick copper target at the laser intensity of ~1 x 10¹⁹ W/cm².

Acknowledgements

We acknowledge the support of this work by Drs. T. Tajima, T. Kimura, and S. Kawanishi of the Japan Atomic Energy Agency. This work is partly supported by Special Coordination Funds for Promoting Science and Technology (SCF) commissioned by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) of Japan. This work is also partly supported by JSPS KAKENHI (No. 18540497). This work is also partly supported by JSPS KAKENHI (No. 18540497).

References

- [1] A. Maksimchuk, S. Gu, K. Flippo, D. Umstadter, and V. Yu. Bychenkov, Phys. Rev. Lett. 84, p.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, p.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, p.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, p.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, p.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, p.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, p.203 (2006).
- [8] M. Kaluza, J. Schreiber, M. I. K. Santala, G. D. Tsakiris, k. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn, and K. J. Witte, Phys. Rev. Lett. 93, p.045003 (2004).
- [9] D. Neely, P. Foster, A. Robinson, F. Lindau, O. Lundh, A. Persson, C. -G. Wahlstrom and P. McKenna, Appl. Phys. Lett. 89, p.021502 (2006).
- [10] T. Nayuki, Y. Oishi, T. Fujii, K. Takano, X. Wang, A. A. Andreev, K. Nemoto, and K. Ueda, J. Appl. Phys. 100, p.043111 (2006).
- [11] T. Fujii, Y. Oishi, T. Nayuki, Y. Takizawa, K. Nemoto, T. Kayoiji, K. Horioka, Y. Okano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura, and K. Kondo, Appl. Phys. Lett. 83, p.1524 (2003).
- [12] Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, Y. Takizawa, X. Wang, T. Yamazaki, K. Nemoto, T. Kayoiji, T. Sekiya, K. Horioka, Y. Okano, Y. Hironaka, K. G. Nakamura, K. Kondo, and A. A. Andreev, Phys. Plasmas 12, p.073102 (2005).
- [13] 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, p.919 (2004).
- [14] 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, and J. Lee, Appl. Phys. B 84 (2006) p.415.
- [15] S. Nakamura, Y. Iwashita, A. Noda, T. Shirai, H. Tongu, A. Fukumi, M. Kado, A. Yogo, M. Mori, S. Orimo, K. Ogura, A. Sagisaka, M. Nishiuchi, Y. Hayashi, Z. Li, H. Daido, Y. Wada, Jpn. J. Appl. Phys. 45, p.L913. (2006).
- [16] A. Yogo, H. Daido, A. Fukumi, Z. Li, K. Ogura, A. Sagisaka, A. S. Pirozhkov, S. Nakamura, Y. Iwashita, T. Shirai, A. Noda, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, I. W. Choi, J. H. Sung, D.-K. Ko, J. Lee, M. Kaneda, and A. Itoh, Phys. Plasmas 14, p.043104 (2007).

4.15 Shadowgraphy for laser plasma investigation

<u>J. Ma</u>, M. Mori, M. Kando, A. S. Pirozhkov, L.-M. Chen, I. Daito, Y. Fukuda, K. Ogura, A. Sagisaka, T. Homma, Y. Hayashi, H. Kotaki, T. Zh. Esirkepov, J. K. Koga, S. V. Bulanov, H. Daido, T. Kimura, and T. Tajima

Advanced Photon Research Center, Japan Atomic Energy Agency, 8-1 Umemidai, Kizugawa-shi, Kyoto-fu, 619-0215, Japan

Shadowgraph is one of the simplest diagnostics, while it shows abundant information in plasma directly. We report the application of time resolved shadowgraph to distinguish a picosecond time-scale post component in a laser pulse, and to overlap two femtosecond laser pulses in time and space in plasma.

Key words: shadowgraph, pre-pulse, post pulse

1. Introduction

In a laser-laser colliding experiment¹, a number of optical diagnostics are employed. These include time resolved shadowgraphy for plasma channel observation, interferometry for electron density measurement, Thomson scattering imaging for channel structure observation, spectral imaging for plasma wave observation, and laser mode monitoring for alignment. They provide important information for understanding the plasma processes involved. In this report we present the application of time resolved shadowgraphy for 1) distinguishing a post pulse which has been mistaken as a pre-pulse and posed difficulty on analyzing the plasma process, and 2) overlapping two pulses in plasma in time and space precisely.

In the experiment, a 2-TW Ti: sapphire driver laser pulse was focused onto the front edge of a supersonic helium gas jet with a F/13 off axis parabolic mirror. Another 0.16-TW source pulse, which was splitted from the driver with a pellicle, was delayed and focused by a F/4 lens into the gas jet at 45° to collide with the driver. A third probe pulse, which was splitted from the source beam, taking about 0.03 TW laser energy, delayed with another motorized linear stage, illuminated the plasma at 90° with respect to the driver pulse. The intersecting point was image relayed to a CCD camera.

2. Shadowgraphy to distinguish a post pulse

Pre-pulses are of fundamental importance for many femtosecond laser matter interactions, while the post pulses generally have no impact on the main process. By varying the delay of the probe beam relative to the driver pulse, a low contrast (weak) channel in helium started to emerge at -120ps in shadowgraph, which was considered caused by a pre-pulse. At time delay of 0, a high contrast (strong) channel appeared, which was easily recognized as made by the main pulse in the driver pulse (Fig.1). What peculiar was the weaker channel completely simulated the strong channel in shape. Because a "pre-pulse" was usually several orders weaker than the main pulse, therefore the channel made by it should be different with the channel made by the main pulse. To find the contrast of this undefined "pre-pulse," we made a measurement with a three-order autocorrelator. We observed a very stable "pre-pulse" with an intensity ratio of about 1% of the main pulse, located 120ps before the main. This pulse is so stable that it constantly appeared in every measurement with the same intensity ratio, while many other "pre-pulses" appeared or disappeared in different measurements, which could be easily attributed to the reflected ghosts. Unfortunately, autocorrelation measurement could not distinguish a pulse from its mirror image around the main. So we relied on the shadowgraph to distinguish whether it was a pre-pulse or a post pulse.



Fig.1 Plasma channel observed at different delay times. a) -123ps, b) -120.5ps, c) -118ps, d) 0ps. Since no channel is present in a), it is subtracted from b), c) and d) as the background to show the channels more clearly.

As in the autocorrelation, the shadowgraph might present in two different situations (Fig. 2): a) in the case that the pulse consists of a pre-pulse and a main pulse (pre-pulse case), the plasma was made by the prepulse and probed by the main pulse; b) in the case that the pulse consists of a main pulse and a post pulse (post pulse case), the plasma was made by the post pulse. With the intensity ratio of our special case, these two situations can occur evenly.



The maximum width of the weak plasma channel in Fig.1 is about 250µm. Assume the wing of the focused "pre-pulse" at r=125µm ionizes the helium to He⁺, its intensity should at least ² 10^{15} W/cm². This requires а "pre-pulse" be power of 10^{15} W/cm²×(125×10⁻⁴cm)²× π =5×10¹¹W at least. However, the total laser power is about 2.5TW, and the measured pre-pulse level is about 1% of that of the main, or 2.5×10^{10} W, which is more than one order lower than the observation. This rejects the pre-pulse assumption. On the other hand, if we assume a "post pulse" case, the plasma was made by the main pulse, therefore its shape should be the same whenever probed by the weak post pulse or the strong main pulse.

The post pulse analysis suggested us to search for the specific optical component in laser system which double reflection made a delay of 120p. We found in the regenerative amplifier (Thales), the Ti: sapphire crystal (n=1.76) was not cut in Brewster angle, with a length of 10mm. The first reflected pulse which experienced two reflections on the front and the rear surface, was exactly 120ps after the main. The intensity of the first reflected pulse is approximately $(1-T)^2G^2$ of that of the main pulse, in which T is the transmittance of the surfaces, and G is the gain if we assume a linear amplification. However, if we input a commercial transmittance of 99.8% and the measured intensity ratio of 1% into this formula, it produces a G of 50, which is too high. Assuming a moderate gain of 3, the formula produces an estimation of T=97%. This suggests the antireflection coating of the crystal has deteriorated. This post pulse intensity reduced greatly when the crystal was tilted 5° and disappeared when the crystal was tilted at 10° , where the reflected pulse deviated away partially from the pumped zone and lowered its intensity to noise level. Till now we can safely conclude the pulse appeared at -120ps in autocorrelation and time resolved shadowgraph is actually a post pulse which is caused by the reflection from the crystal surfaces in regenerative amplifier. The post pulse is expected to be lowered to noise level by a fresh antireflection coating.

3. Overlapping two pulses in plasma with shadowgraph

The second application of the shadowgraphy is to display two colliding pulses in plasma in order to overlap them temporally and spatially. The mission required a precise overlapping of one $\phi 30\mu$ m and one $\phi 15\mu$ m optical bullets within a time window of 80 fs. Several reasons made it necessary to use the shadowgraphy as an on line monitor of the overlapping. First, though the laser pointing stability was improved to 6μ rad rms with an additional pointing stabilizer, good overlapping was not guaranteed. Second, experiment showed the channel, especially that made by the source pulse, bent in plasma. Third, intersecting point was needed to vary to find optimal condition.

Helium was found to be better than argon, xenon or nitrogen to show the clear ionization front. In Fig.3, the sequence of the channels made by the two pulses approaching to the intersecting point was clearly visible. The velocity of the ionization front was calculated to be close to the speed of light in vacuum. If we assessed all the data at the 1/4 maximum as the front, the ionization front exhibited a jitter of about ± 18 fs.

This side view can only guarantee the alignment of the two pulses in its perspective plane. To overlap in its orthogonal plane, we measured the Thomson scattering. Associated with other signatures, such as spectral blueshift, near field diffraction of the source beam, we overlapped the two pulses precisely. Among all these diagnostics, the shadowgraph always played the primary role.

4. Summary

Shadowgraphy was applied in а laser colliding experiment to overlap two laser focuses in plasma within a space window of about 30µm, and a time window of 80 fs. Shadowgraph helped to distinguish a post pulse in laser, which was mistaken as a pre-pulse, and which might lead to incorrect conclusion when analyzing the plasma processes. It also helped to spot the origin of the post pulse. By alternating the crystal angle we proved this post pulse was really caused by the double reflection on the crystal surfaces. It also



Fig.3 Sequence of two laser pulses approaching to their intersecting point observed in time resolved shadowgraph.

suggested the antireflection coating on the crystal was degraded and a treatment was needed to improve the laser performance.

References:

¹ S.V. Bulanov, T. Esirkepov, and T. Tajima, "Light intensification towards the Schwinger limit," Phys. Rev. Lett. 91, p.085001(2003).

² S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly, "Tunneling Ionization of noble gases in a high-intensity laser field," Phys. Rev. Lett. 63, p.2212(1989).

JAEA-Conf 2008-007

4.16 キャピラリ放電管によるレーザープラズマ電子加速

Laser Plasma Electron Acceleration with Capillary Discharge

亀島敬、杉山精博、中島一久、黒川眞一、汲田哲郎、L.M. Chen、田島俊樹、W. Hong、X. L. Wen、Y.C. Wu、C.M. Tang、Q.H. Zhu、Y.Q. Gu、B.H. Zhang、H.S. Peng

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 中国工程物理研究院 レーザー核融合研究センター

Takashi KAMESHIMA, Kiyohiro SUGIYAMA, Kazuhisa NAKAJIMA, Shinichi KUROKAWA, Tetsurou KUMITA, L. M. CHEN, Toshiki TAJIMA, W. HONG, X.L. WEN, Y.C. WU, Y.C. TANG, Q.H. ZHU, Y.Q. GU, B.H. ZHANG, H.S. PENG

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency Laser Fusion Research Center, China Academy of Engineering Physics

In 2006, laser plsasma electron acceleration was performed under the collaboration research between High Energy Accelerator Research Organization (KEK), Chinese Academy of Engeneering Physics (CAEP), and Japan Atomic Energy Agency (JAEA). Here, 0.56 GeV electron beam with an energy spread of 0.21% r.m.s and a divergence of 0.58 mrad r.m.s was produced by means of 4 cm capillary plasma channel driven by a 24 TW, 27 fs laser pulse.

Keywords: Laser, Plasma, Discharge, Electron, Beam, GeV, Capillary, Energy

1. はじめに

1979年にレーザー航跡場を利用したレーザープラズマ電子加速が提案され[1]、2004年にはレ ーザープラズマ加速を用いて、単色電子ビームの生成に3つの研究グループが成功した[2]。以降、 世界中で高強度レーザーを用いた電子加速実験が盛んに行われており、次のステップがその高エ ネルギー化と応用であった。高エネルギー電子ビームの発生のために従来のガスジェットターゲット に代わる放電キャピラリ管を用いた手法が提案されていた[3]。これは従来のガスジェットターゲット おけるレーザーとプラズマの相互作用距離が数 mm スケールであったのに対し、数 cm スケールの プラズマチャネルを生成し相互作用する。2006年にLawrence Berkeley National Laboratory が 3cm のキャピラリ管を用いて 1GeV の単色電子ビーム(エネルギー広がり 2.5%、発散角 1.6 mrad)の発生 に成功した[4]。同時期に高エネルギー加速器研究機構(KEK)、四川省綿陽市にある中国工程物 理研究院(CAEP)、日本原子力研究開発機構(JAEA)の3つの研究機関が共同で同様の実験、 4cm のキャピラリ管及び、CAEP が実験開発を行っている 200TW チタンサファイアレーザーシステム SILEX-1 にてレーザープラズマ電子加速実験を行った。そこで使用されたキャピラリ管の詳細と、そ の実験結果について述べる。

2. アブレーションキャピラリー

レーザー航跡場をプラズマ内に発生させ るにはレーザーを集光させて~10¹⁸W/cm² クラスの強度が必要となる。レーザーを凸レ ンズやパラボラミラーを用いて集光させるの だが、集光した距離はレーリー長程度(数 mm程度)しかないため、その加速距離は大 きく制限される。ゆえにレーザー航跡場の



Fig. 1 Density profile of discharge plasma

加速勾配が大きくても加速距離が小さいため電子に十分なエネルギーゲインを与えることができない。加速距離を伸ばす為にはレーザーの集光伝播距離を伸ばす必要がある。これを実現する為に、放電プラ

ズマを用いて長いプラズマチャネルを生成 し、その中でレーザーを伝播させる。プラズ マチャネル内部は中心に向かうにつれてプ ラズマ密度が小さくなるよう分布させる(Fig. 1)。プラズマの屈折率はプラズマ密度が小 さいくなるにつれて高くなるため、レーザー はプラズマチャネル内で光ファイバーのよう に集光状態を保ちつつ伝播する。

現在、電子加速実験で使用されたキャピ ラリ管は2種類ある。一つ目はガスを使用す るタイプで、サファイアガラスに水素ガスを 封入させ、ガスを放電させプラズマを生成 する[3]。これを二つ目はアクリル樹脂などH



Fig.2 Density profile of discharge plasma

基を持つ材質のキャピラリを放電させアブレーションを起こし、樹脂自体がプラズマ化させる[5]。我々は 後者のキャピラリを用いた。使用されたキャピラリ内のプラズマ密度分布を Fig. 2 に示す。横軸は原点を キャピラリ中心軸として半径方向を表しており、縦軸がプラズマ密度を示す。高強度レーザーを入射する 前に放電を誘発させるために別の数十mJのYAGレーザーを使用している。Fig. 2には30mJ、及び80mJ の例をプロットしている。

3. 実験結果

実験のセットアップ図 Fig. 3を示す。使用したレーザー のパラメーターは最大パワーが 200TW、パルス幅 27fs、 スポット半径 $(1/e^2)$ が $\omega_x = 21$ um, $\omega_y = 13$ um、集光率 17%、レーザー強度 9.3 x 10¹⁸ W/cm²で、 $a_0=2$ である。尚、 ここで強度及び a_0 は集光率を考慮して計算している。キ ャピラリを放電させて高強度レーザーを高強度レーザー を入射する。発生した電子を二極磁石 (0.8T、30 cmサイ ズ)にて曲げて蛍光板に通し、そこで発する光を CCD で 捉え、エネルギーを計測する。また、カメラの視野外の高 エネルギー電子の通過する箇所にはX線フィルムを設置





した。また、キャピラリ内を伝播後のレーザーのスポ (a) 200 200 200 200 計測した。この実験で 160TW のレーザーを長さ 4c 10 m、500µm 径のキャピラリ内を集光伝播させることに -200 成功した。Fig. 4はキャピラリ出口のイメージである。 Fig .4(a)は伝播してきたレーザーのスポット径は入 射時のレーザーのサイズにほぼ等しい。一方 Fig. 4(b)はレーザーの入射タイミングを外したときのイメ



ージで通過してきた光量も大きく減り、一様に広がっている。キャピラリ内のプラズマ密度分布は時間変動するため、Fig. 3 で示した分布のタイミングでないと集光伝播できない。

X線フィルム設置後、レーザーを7回入射した。内、2回が140TWのレーザー、残りの5回は100TW 以下のレーザーパワーであった。Fig. 5はX線フィルムのイメージで中心エネルギー0.56GeVの電子ビ ームに相当する。エネルギー広がりは中心エネルギー0.21% r.m.s で、発散角は0.58 mrad r.m.s と非常

にコリメートされた高品質の電子ビームを検 出した。これと同様のスポットがもう一つ確認 されており、そのエネルギーも 560MeV 相当 であった。また、140TW のレーザーを入射し たときのみ高エネルギー電子の通過する箇 所に配置された BGO シンチレーション検出 器が大きいシグナルを出力した。ゆえに、2 つの 560MeV 電子ビームは 140TW のオペレ ーション時に発生したものと推測される。



4. まとめ

140TWのレーザーを長さ4cm、径 500µmのキャピラリ管へ入射時に0.56 GeVの電子ビームの発生に 成功した。そのエネルギー広がりは0.21% r.m.s、発散角は0.58 mrad r.m.s で非常に高品質のビームで あり、レーザープラズマ電子加速にて問題視されていたビーム品質を大きく改善した。さらにビームの高 品質化および高エネルギーを行うことで実用のレーザー駆動型の加速器が期待される。

参考文献

- [1] T. Tajima, J. M. Dawson, Phys. Rev. Lett. 43, p.267 (1979).
- S. P. D. Mangles, et al., Nature 431, 535 (2004); C. G. R. Geddes, et al., Nature 431, 538 (2004); J. Faure et al., Nature 431, p.541 (2004).
- [3] Y. Ehrlich, et al., Phys. Rev. Lett. 77, 4186 (1996); T. Hosokai et al., Opt. Lett. 25,10 (2000); D. J. Spence, S. M. Hooker, Phys. Rev. E 63, p.015401(R) (2001).
- [4] W. P. Leemans et al., Nature Phys. 2, 696 (2006); K. Nakamura et al., Phys. Plasmas 14, p.056708 (2007).
- [5] D. Kaganovich et al., Phys. Rev. E, 59 p.R4769 (1999).

4.17 Plasma density scale length effects on the electron injection into the acceleration regime via the wake wave breaking

A. V. BRANTOV¹, S. V. BULANOV², T. ESIRKEPOV²

 ¹P. N. Lebedev Physics Institute, Russian Academy of Science, Leninskii Prospect 53, Moscow 119991, Russia
 ²Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency, 8-1 Umemidai, Kizugawa, Kyoto, 619-0215

The electrons injection schemes in inhomogeneous plasma and electron acceleration have been investigated with the 2D and 3D PIC simulations. We show that electron trapping depends not only on the density change but also on the scale length of the plasma density inhomogeneity. The sharp density interface requires larger laser field in order to provide effective electron trapping compare to the profiles with gradually decreasing plasma density. The regimes are demonstrated, when the ultra-relativistic electron beams are generated with a low divergence and a small energy spread in the interaction of strong ultra-short laser pulse with underdense plasmas.

Keywords: Short laser pulse, Wake field acceleration, Mono-energetic electron beam.

The laser wakefully accelerator (LWFA) concept is one of most promising approaches to produce compact higher-energy electron sources [1]. In the conventional LWFA schema the properly injected electrons are accelerated by strong Langmuir wave induced by a short relativistic laser pulse. A production of high quality electrons beams requires the electron injection into the acceleration phase of the wake field, which can be achieved ether by external electron injection or by self-injection due to longitudinal or transverse wake wave breaking. Wave breaking induced by tailored density profile has been proposed [2, 3] to control electron self-injection in the wake field. In this scheme two main mechanisms are responsible for the electron injection. There are wave breaking due to gradually decreasing of the wake wave phase velocity at the smooth density gradient [2] and wave breaking due to the phase mixing at the plasma density discontinuity [3].

In this paper we present trapping condition analysis for electrons injected due to wake wave breaking at the density inhomogeneity. We show that wave breaking at the sharp density gradient not necessary results in electron trapping. The optimal conditions for the accelerations of electrons injected at a descending plasma density region have been found.

The energy of the electron bunch injected due to wake wave breaking at the density discontinuity is the order of the quiver electron energy. To be trapped these electrons should have energy larger compare to the minimum trapping energy. The condition of trapping can be estimated using 1D Hamiltonian approach for test particles which gives maximum and minimum test electron energy in the wake wave [4] in terms of maximum and minimum value of the wake potential. The maximum value of the wake potential (Ψ_{max})

also defines maximum electron energy in the wake field. This allows define maximum potential of the wake wave which must be induced by laser field to provide necessary condition for electron trapping due to wave breaking at the plasma density discontinuity (electron energy in the wake field should be larger compare to trapping energy). It gives $\Psi_{max} > \sqrt{2} - 1$. Such potential can be induced by short laser pulses with a > 1. Notes that increasing of density change does not influence on the trapping condition and results only to number of injected particles. The situation is different for gradual density gradient profile. In this case decreasing of wake phase velocity results in gradual wave breaking and electron trapping in the region of density descending [2]. The wave breaking at the smooth density gradient is happen later in time compare to wave breaking at the density discontinuity and always results in electron trapping.

To confirm these conclusions we investigate the injection schemes and electron acceleration with the PIC simulations. Numerical simulations are implemented through multidimensional fully relativistic particle-in-sell parallel code MANDOR. In these simulations linearly polarized Gaussian laser pulse with longitudinal FWHM (full width at half maximum) size $l= 10.5\lambda$ (λ is the laser wave length), maximum amplitude $a = eE/(mc\omega) = 1$ (or a = 2) and FWHM transverse size $d = 20 \lambda$ interact with tapered plasma profile. The simulation domain is 1000 λ x 80 λ . Ions are assumed to be immobile. The electron plasma density smoothly increase from zero to the maximum value of $n_e = 0.004 n_c$ at the longitudinal interval from 10 λ to 130 λ to provide a smooth entering of the laser pulse to the plasma. The plasma is homogeneous in the domain from 130 λ to 200 λ ; its density decreases to the $n_e = 0.0025 n_c$ and stay constant up-to the end of simulation box. The thickness of decreasing plasma density region is varied from zero to 30 λ .



Fig. 1: Comparison of electron energy spectrum (upper panel) for t=1000 and phase space in two different moments of time (t = 420 corresponds to middle panel and t = 1000 corresponds to bottom panel) for electrons injected to the wake wave at the sharp density interface (left column) or at the gradual density interface (right column)

In the case of moderate laser intensity (a = 1) the maximum quiver electron energy in the wake field is comparable with minimum electron trapping energy. The comparison of electron energy spectrum injected at the sharp density interface and at the gradual density interface presented in Fig. (1) allows conclude that for moderate laser intensity electron injection at the smooth gradient is more effective. PIC simulation shows that there is not trapping of injected electrons due to wave breaking at the plasma density discontinuity. For sharp density gradient profile wave breaking starts in first wake wave period and results in formation of the bunch of un-trapped particles moving with velocity smaller than wake wave phase velocity. Injected electrons are moving in third wake wave periods at t = 420 and in the seventh wake period at t = 1000 (see Figs (1). In the case of gradual density gradient wave breaking starts in tenth wake wave period and results in trapped electrons (see Figs (1) right panel). This is corresponds to the wave breaking time which is the order of 200 laser wave periods or 10 wake wave periods for our parameters.

Consider now interaction of the short strong laser pulse (a = 2) with plasma with tailored density profile. In this case wave breaking at density gradient always results in the trapping of injected electrons. At the same time the tuning of density gradient changes a number of injected electrons and there position in the wake field that can alter the final electron energy spectrum. In PIC simulation we increase simulation box in x direction up-to the 3000 λ to achieve maximum electron energy. Fig. (2) shows electron energy spectrum, which are produced by electrons injected due to wake wave breaking at plasma inhomogeneity with different density gradient scale length L. It is clear that there is optimal gradient which results in monoenergetic electron beam with maximum electron energy.



FIG. 2: Comparison of electron energy spectrum (bottom panel) at the final moment of calculation t=2900 for different electron density decreasing gradient scale length L. Upper panel illustrate initial electron density profile at the injected region (L = 0, $L = 15\lambda$ and $L = 30\lambda$ from left to right).

The wave breaking at the sharp density interface results in the electron injection beginning with the first period of wake wave and the electron further acceleration up to high energy with formation of the monoenergetic spectrum. But L = 0 does not provide best conditions for electron acceleration for given density change. The number of injected electrons (N = 6 x 10⁷) is too much for effective acceleration. The decreasing of density changes or increasing of density gradient results in decreasing of injected electrons.

For density gradient scale length $L = 15\lambda$ the number of electrons injected in the first period of wake wave due to phase mixing mechanism is reduced by factor 2. This electrons bunch is effectively accelerated by wake wave up to the higher energy. The electron injection due to phase mixing disappears than density changes scale length become larger compare to wake wavelength (30λ). In this case the electrons are injected in the second or/and following periods of the wake wave. The number of injected electrons ia rather large (N ~ 10^8) and their acceleration results in production of quasi-thermal (exponential) energy spectrum with the maximum cut-off at lower energy compared to the previous case. Fig. (3) demonstrate good quality electron beams produced by electron injection at the optimal density gradient and electron further acceleration. The resulting bunch of about 3 x 10^7 electrons with energy E = 280MeV has energy spread about 10%, transverse size 2λ and longitudinal size 3λ . The electron beam is localized inside the laser pulse, which results in additional energy gain.



FIG. 3: Phase portrait of accelerated electron bunch (upper panel) and electron density (bottom panel) in the case of optimal density gradient at the final moment of calculation t=2900.

Our simulation shows that quality of electron energy spectrum depends on the number of injected electrons. The regimes are demonstrated, when the ultra-relativistic electron beams with energy more than 300 MeV are generated with a low divergence and a small energy spread in the interaction of strong ultra-short laser pulse with underdense plasmas.

A.V.B. acknowledges the support of JAEA.

References

[1] T. Tajima, J. M. Dawson, Phys. Rev. Lett. 43, p.267 (1979)

- [2] S. V. Bulanov, N. Naumova, F. Pegoraro, J. Sakai, Phys. Rev. E 58, p.R5257 (1998)
- [3] H. Suk, N. Barov, J. B. Rosenzweig, E. Esarey, Phys. Rev. Lett. 86, p.1011 (2001)
- [4] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, A. Ting, IEEE Trans. Plasma Sci. 24, p.252 (1996)

4.18 関西光科学研究所におけるパルスレーザーを用いた分析加工技術の新展開

New Broader Approach by Pulse Laser Application in JAEA-KANSAI

〇島田 幸洋¹⁾、西村 昭彦¹⁾²⁾

Yukihiro SHIMADA¹⁾, Akihiko NISHIMURA¹⁾²⁾

1) 量子ビーム応用研究部門 レーザー物質制御研究グループ

Laser Chemistry Gr., Quantum Beam Science Directorate, JAEA

2) 敦賀本部 高速増殖炉研究開発センター

Tsuruga Head Office, Prototype Fast Breeder Reactor and Development Center

增住 考志³、土井 基尾³、月森 和之³

Takashi MASUZUMI³⁾, Motoo DOI³⁾, Kazunori TSUKIMORI³⁾ 3) 次世代原子カシステム研究開発部門 プラント信頼性グループ Component Integrity Research Gr., Advanced Nuclear System research and Development

Directorate, JAEA

We manufactured FBG by the non-heat process which used femto-second ultra-fast pulsed laser. Processing and a high temperature examination were previously done with the quartz board, and it checked that grating structure was tolerant to 950°C. As a result, we confirmed that the trial production of a heat-resistant FBG sensor was possible, with the combination of ultra-fast pulsed laser and the processing technology in a microscope.

1. 緒言

超短パルスレーザーの発展は数多くの分析 加工技術の発展をもたらした。特にフェムト秒レ ーザーを用いると、非熱的に材料加工が可能と なる。我々はこの特徴を活かして2002年に国 内で生じた原子炉構成機器の応力腐食割れ対 策としてステンレス鋼表層蒸発を実施し、他に 先駆けて冷間加工層の除去と割れ予防に有効 な圧縮応力層の導入が大気中でも可能である ことを示した。このレーザー非熱蒸発加工研究 を契機としてガラス等の透明高脆化材料におい



ても非熱加工研究を開始し、今後機構内外との連携から新たな展開が可能な3つの方向を示す。

1)高温構造物の変形監視: 光ファイバー内に回折格子の作成を行い測定対象に固定する。ここにプローブ光を入射し、反射または透過光スペクトルの波長シフトから高温構造物の変形、振動の監視を行う。
 2)レーザースクライビング: シリコンウエハ、サファイア等の加工技術ではレーザースクライビングが用いられているが、加工の際に発生するデブリスが問題である。今後は超短パルスレーザーの特長を活かした

低デブリス発生の加工が望まれている。

3) 陶磁器表面の装飾加工: 脆性のため機械加工が困難である陶磁器の表面の釉薬層内部にレーザー 加工を行い、回折効果による構造色を作成し付加価値を高める。

上記の3項目の内、1)の高温構造物の変形監視については、原子炉などの高温構造機器の局所ひずみ 監視技術として有効である。また、2)のレーザースクライビングは地域産業への貢献であり、3)の陶磁器表 面の装飾加工はレーザー技術の異分野へのアウトリーチ活動の側面が強い。図1に示すようにこれらの3軸 は、それぞれ研究、産業化、アウトリーチという3つの独立した価値で構成される立体を形作る。本稿では、H 19年度連携融合ファンドに採択された1)の高温構造物の変形監視を行うための耐熱 FBG(Fiber Bragg Grating)センサの開発について詳細に記す。

2. 耐熱 FBG センサの開発

2-1 背景と FBG センサの原理

発電用原子炉施設の保守管理におけるリスク情報の活用への取組みが拡大しており、状態監視技術を積 極的に活用することでプラントの安全・安定運転を確実なものにすることが求められている。土木建築分野で は光ファイバーセンサにより温度・ひずみを測定し構造健全性を監視する「構造ヘルスモニタリング」が実用 化されている。この点を鑑み原子力機構の高速実験炉「常陽」においても、余寿命診断と状態監視の観点か ら各種の光ファイバーセンサの導入が試みられた。余寿命診断としては歪分布・温度分布計測が重要であり、 ラマン散乱型温度センサやブリルアン散乱型歪センサが用いられる。一方、変位・振動計測にはFBGセンサ が用いられる[1]。

FBG センサとは石英光ファイバー中に周期的屈折率分布を作成し、透過または反射する光のスペクトルの 波長シフトを検出して温度または長さの変化を測定するものである[2]。透過または反射する光のスペクトル 特性は λ = 2nL で表され、λ は波長、n はコアの屈折率、L はグレーティングの周期を表す。測定対象物の変 位・振動による長さの変化は L に反映するため、反射光の中心波長を測定することで遠隔モニタリングを行う。 この方法は多点、遠隔、高速、高精度測定が可能であるが、現在実用化されている FBG センサは、水素雰囲 気と紫外光の干渉露光を利用するため、200°C以上では周期的構造が消失し高温構造物への適応は困難で ある。「常陽」においてもFBGセンサは 1 次主循環ポンプの異常振動や配管支持装置の固着や緩みの監視を 目的に 100 度以下の低温部分に取り付けられている。

2-2 実験装置と予備試験

1) 超短パルスレーザーシステム

超短パルスレーザーにはチャープパルス増幅チタンサファイアレーザーを用いた。本レーザーは CLARK 社 CPA-10をベースに利用研究専用に改良を施しており、平成18年4月からの施設供用制度のもとで幅広く 利用されている[3]。レーザーシステムは、超短パルスレーザー発振器、ストレッチャー、再生増幅器、4パス アンプ、コンプレッサーで構成されている。レーザーは防塵ブース内の光学テーブル上に展開されており、利 用目的に合わせて 300ps から 120fs までのパルスを 10mJ 程度のエネルギーで供給することが可能である。 コンプレッサー内には回折格子と折り返し型全反射鏡が設けられており、回折格子の角度と折り返し型反射 鏡の距離を変化させることでパルスのチャープ度を調整可能である。コンプレッサー後の超短パルスは、 FROG(周波数分解光ゲーティング)により、パルスを時間と波長の領域で診断することが可能である。

本実験では、石英内部に対して 10¹³から 10¹⁴W/cm²の集光強度でミクロン直径程度の高屈折率点の描画

が目的のため、パルスエネルギーは 100 µ J 以下が最適である[4]。このため、レーザーシステムは再生増幅 器の増幅パルスをコンプレッサーで圧縮して使用した。

2) 石英板を用いた回折格子製作と加熱試験

最初に加エシステムの性能を評価すべく石英板を用いた回折格子製 作を行った。加工は微小な屈折率差を観測するために、CCDカメラを 取り付けた位相差顕微鏡内にレーザー光を導光して行った。その結 果、リアルタイムで位置と結果を確認しながら出カ等のパラメーター を最適化したレーザー加工が可能となった。図2に加工後の試料の 位相差顕微鏡像を示す。用いた石英板は直径 15mm×厚さ 3mm の 円盤状であり、パルスの時間幅は約 120fs、繰り返しは 10Hz、パルス

エネルギーは 40 μ J である。集光には顕微鏡対物レンズ(×40)を用 いた。試料を繰り返し位置精度 1 μ mの自動精密 XY ステージに保持 し、周期的屈折率構造を作製した。格子点の大きさは 4 μ m×1 μ m、 加工間隔は 5 μ m×10 μ m である。図2で見られる通り、作製した各 加工点は縦長の長楕円状となっている。回折格子の性能向上のた め、この加工点の形状を改善することを試みた。図3はパルスエネル ギーの変化による加工点の形状変化を示す。加工点の形状はエネ ルギーを下げることで真円状に向上した。

加工後は He-Ne レーザーによる回折光のパターンの中から次数 による強度比を測定し、回折構造の評価を行った。図4は図2で製作 した回折格子によるパターン像を表す。この回折像の0次、1次、2次 光をピンホールにて切り出し強度を比較した。図5に加工後の試料を 試験したガラス製真空高温炉の様子を示す。高温炉はアルミナ断熱 材とタングステン製ヒーターの組み合わせ、6.3V × 26A の電力によ り960℃まで加熱した。温度は530℃、845℃、960℃、時間は1時間と した、昇温前後の回折光の強度比を比較した結果を表 1 に表す。こ のように 960℃の昇温の後でも回折光の強度比は変化せず、石英材



図 3 石英板中加工における加工 形状の光強度依存

10 µ m



料での加工回折構造の高温耐性が確かめられた。また 845℃の昇温後では回折光の強度比の向上が認め られる。これは昇温処理によるアニーリング効果により、回折構造のコントラスト改善が生じたと想われる。



	0 次光	1 次光	2 次光
昇温前	1	0.016	0.004
530°C	1	0.016	0.004
845°C	1	0.021	0.005
960°C	1	0.014	0.004

表1 昇温前後における石英板からの回折光 の強度比の変化

2-3 FBGセンサ加工試験と考察

次にポリイミドの被覆を持つ耐熱光ファイバーへの FBG 構造の書 き込みを行った。光ファイバーのコア径は 8μm、外皮は 140μm、加 エに持いた光強度は 20μJ である。前項実験で使用した板状試料と 異なり、光ファイバー等の円筒試料では光の入射面が曲面となり、内 部観察及び加工のための集光が困難である。この問題を回避すべく、 光ファイバーの周囲を屈折率:n=1.516 の屈折率整合液で充填し、観 察及び加工を行う光の入射方向にはカバーガラスにて平行面を作り 出した後にレーザー加工を行った。

加工後の光ファイバーの位相差顕微鏡像を図6に示す。上図では中 心付近に加工が為されているが、光ファイバーを回転させると下図の ように加工点が中心からずれていることがわかる。この原因は観察 を行う可視光と加工を行う光の波長(800nm)の相違により顕微鏡の 色収差が発生し、観察光と加工光の焦点位置が異なる点にある。今 後は加工レーザーの入射光学系に望遠鏡を挿入し、色収差の補正 を行う。また加工精度を向上すべくピエゾステージを導入する。



以上の実験結果から超短パルスレーザーと顕微鏡加工技術の組み合わせにより、耐熱 FBG センサの試 作が可能であることを確認した。

原子カプラントの保全活動において新しい検査制度への取組みでは、状態監視技術の積極的活用が求められている。「もんじゅ」主要機器について Na 漏えいリスクを含めた定性的リスク評価とリスク低減策検討を行った結果、静的機器や配管等に対しては、耐熱 FBG が実用化された場合、状態監視の手段として有望な技術の一つと考えられる[5]。

3. まとめと今後の展開

以上、本稿では超短パルスレーザーを用いた耐熱 FBG 製作の技術開発を例にとり、図1で述べた関西光 科学研究所が推進している社会に望まれる「価値」の発展を紹介した。研究、産業化、アウトリーチという3つ の独立した価値の軸がそれぞれ相補し合い伸張していけば、構成する立体の体積は最大となる。今後は、フ ァイバー加エシステムの高精度化、長時間安定化を図り、高品位の耐熱 FBG を製作すると共に周辺計測シ ステムの構築を行う。同時に敦賀本部国際原子力情報・研修センター保守研修棟にて高温試験を行い、原子 炉配管などの高温機器の振動監視システムの構築を目指す。

最後になりましたが、高速炉実験課の松場賢一氏らより「常陽」モニタリングシステムに関する情報を頂きました。また、福井大学大学院工学研究科小林喬郎教授より FBG 製作に関する助言を頂きました。共に深く 感謝いたします。

参考文献

[1] 松葉、伊藤、川原、青山、第12回動力・エネルギー技術シンポジウム、2007 年 6 月 14 日

[2] K.Matsuba C.Ito, Y.Kawahara, T.Aoyama ICON-15(2007)

- [3] http://www3.tokai-sc.jaea.go.jp/sangaku/3-facility/06-news/commonuse-2006b/20070914-6.html
- [4] Y.Kondo, K.Nouchi, T.Mitsuyu, M.Watanabe, P.G.Kazansky and K.Hirao, Optics Letter 24(1999)646

[5] 土井、橋本、渡士、月森、増住 JAEA-Technology(2008)発行予定

4.19 レーザー溶接・蒸発によるFBR熱交換器検査技術の高度化

Improvement of sensing technology for FBR heat exchanger by laser welding and ablation

西村 昭彦¹⁾、岡 潔¹⁾、山下 卓哉²⁾、山口 智彦²⁾、椎名 章²⁾ Akihiko NISHIMURA, Kiyoshi OKA, Takuya YAMASHITA, Toshihiko YAMAGUCHI, Akira SHIINA 1)量子ビーム応用研究部門 レーザー物質制御グループ 1)Laser Chemistry Gr., Quantum Beam Science Directorate, JAEA 2)次世代原子力システム研究開発部門 ナトリウム技術グループ 2)Advanced Nuclear System Research and Development Directorate, Sodium technology Gr., JAEA

Cutting edge techniques concerning about laser processing and eddy current testing are going to be combined in order to develop a new robot system for repairing heat exchanger on next generation Fast Breeder Reactors. The new robot system consist of sub-modules following with a snake shaped long body, a hybrid optical fiber scope, eddy current testing units, a laser processing head, a coupling device foe laser and image, an image processor and processing laser systems. Three sections in Japan Atomic Energy Agency are now developing the sub-modules independently to unit them for the complete new robot system in 2009.

Keywords: FBR, Heat Exchanger, Laser Welding, ECT, Hybrid Fiber Scope, Fiber Laser

1 はじめに

fs レーザー加工は透明材料の内部加工において有効な手法であるため光電子デバイス開発への応用が 積極的に展開されている。一方、原子力エネルギー分野での利用として、2002年に国内のBWRで生じた シュラウド応力腐食割れ問題を契機として、fs レーザーによる加工硬化層の蒸発除去を新たな応力腐食割 れ対策技術として発案した[1]。その後、原子力材料への適用拡大を模索した結果、2004年には我が国で初 めてfs レーザー補助による3次元アトムプローブ装置の高性能化を物質材料研究機構との連携により達成 した。この成果により2006年からは、JSTからのCRESTファンドの助成を得て、3次元広角アトムプロ ーブ開発の一環として高電圧印加時におけるfs レーザーイオン化機構の解明を実施している[2]。

一方、中期計画のもとではシュラウドを対象としたfs レーザー蒸発の大面積化技術開発を開始し、2005年に1cm²の面積での応力除去に成功した。幸い機構内の連携融合の推進により新たな応用分野の開拓が可能となり、昨年度の連携融合ファンドによりFBRの熱交換器伝熱管の補修技術の開発が可能となった。現在のFBR原型炉であるもんじゅの熱交換器は蒸発器と過熱器を組み合わせた構造であり、蒸発器の伝熱管内には高温水と蒸気が混相流として流れ、外側を液体ナトリウムが流れる(写真参照)。これまでは渦電流探傷(ECT)による検査により伝熱



図1 FBR 原型炉もんじゅ熱交換器伝熱管

管に欠陥が発見された場合、伝熱管を施栓により塞ぐのが対処の基本であった。一方、ITER 核融合ブラン ケットの枝管をレーザー溶接・切断するロボット装置として、1999年に複合光ファイバを用いたレーザー 熱加工技術が実証された。ITER プロジェクトでの開発終了後、この複合光ファイバは光ファイバ内視鏡と レーザーメスの融合技術として積極的な医療応用が進められている[3]。

著者らの連携融合グループは、図1に示す全長100mのヘリカル型伝熱管を検査補修する技術開発として、ECT 検査技術、複合光ファイバ技術、レーザー熱加工およびfs レーザー加工技術を統合させ、従来の 検査機能に補修・保全機能を加えた新型プローブ開発を開始した。昨年度、主要技術の整備は順調に進展 し、実機製作に向けての問題点を明確に出来た。昨年度の活動の概要を述べる。

2 活動概要

2-1 関連特許調査

これまでに、伝熱細管内の内壁を検査・補修するレーザー加工システム技術開発について、原子力機構 の公開特許の中から関連特許を5件抽出した。

①ステンレス鋼表面の超短パルスレーザーを用いた応力除去法(特開 2005-131704)

②レーザ加工装置およびこれを用いたレーザ加工方法(特開 1997-21087)

③) 複合型ファイバを用いたレーザ加工システム(特開 2003-1465)

④レーザー除染法(特許第3044188号)

⑤曲管部挿入型レーザー方式内面検査装置(特許第3075529号)

これらの特許発明者と連絡をとり、レーザー加 エヘッドの概念設計を実施した。

エックトの風感政計を美心した。

2-2 新プローブの概念設計準備結果

FEL 棟 32 号室にレーザーパルス長さ計測のた めのオートコリレーターとそのシステムアップパ ーツおよびパルス圧縮器クリーン機器、パワーメ ーター等を整備した。また、原子力基礎工学研究 部門と連携し、東北大学(大洗)より研究4棟405 号室にエネルギー補償型アトムプローブ(AP)を 移設した。また、JSTからの外部ファンド(CREST) により AP 高性能化のため、fs レーザーを導入し



た。レーザーシステムは Thales Laser 社チタンサファイヤ fs レーザーBRIGHT をベースに改造を行った。 発振器は標準仕様の Yb ファイバーレーザーを分散補償ミラー組み込みの小型チタンサファイヤモードロ

ックレーザーに変更した。また、パルス圧縮器の 回折格子間隔をステージ駆動により制御して 80fs~10psの間隔で可変できるように改造した。図 2に実験装置の概要を示す。以後このレーザーシ ステムを用いて負分散チャープパルスのファイバ 内伝送圧縮実験の推進が可能となる。

もんじゅ蒸気発生器で使用する低クロム鋼管と ステンレス管2種類について、内壁の4箇所に模 擬欠陥加工を施した伝熱管を製作した。図3には ISI 棟ではもんじゅの伝熱管を模擬したモックア ップ試験装置を利用し、圧縮窒素ガスを用いた模 擬プローブと模擬複合ファイバの搬送実験の様子



を示す。これにより、ヘリカル伝熱管内搬送可能なプローブの寸法と重量の上限、及び、内壁の目視観察 を行うための搬送速度の上限について確認を行った。

狭い配管内にて模擬傷を探索するため、内視鏡映像の拡大表示方法を検討した。図4は開発した広角画

像合成処理方法である。開発では、軟性光ファ イバ内視鏡を使用して配管内画像を撮影し、開 発したソフトウエアを用いて効果的に配管内の 映像を広角合成した結果である。内視鏡が配管 内を前進するのにつれて、効果的に撮影画像が 拡大表示されている。本手法は、リアルタイム で撮影される画像から形状を特定するための特 徴点を複数個抽出し、これらの特徴点を連結す ることで画像を繋ぎ合わせる手法である。更な るソフトウエアの改良と高速のハードウエアの 組み合わせにより、伝熱管内壁の検査技術だけ でなく腹腔内の観察や原子炉炉心構造体の観察 技術としても汎用に適用が可能な基盤技術と成



り得る。また、今年度のレーザー加工システムの概念検討の集大成として模擬レーザー加工ヘッド模型の 試作を行った。

3 結果に対する評価の経緯

関連特許調査の結果、機構公 開特許を複数を組み合わせるこ とで本テーマのような新規の流 れの企画立案が可能である。レ ーザー加工ヘッドの模型製作・ 概念設計をはじめとして、各サ ブテーマの機器購入と実験準備 の第一段階は順調に終了した。 上述の5件の特許を含め本テー マについて第9回オープンセミ



ナー(9月、敦賀市&福井市)にて、福井県内の関連企業に紹介した(9月14日に地元NHKテレビで 放映、福井新聞に掲載された)。また、1月29日には福井県鉄鋼連所属の企業数社による関西光研究所の 訪問が行われ、3月16日には研究担当者との詳細な意見交換を行った。

一方、2月22日に高速増殖炉サイクル連携推進会議個別課題作業部会(量子ビーム利用)第1回会合 が原科研情報交流棟第2会議室で実施された。この作業部会において、次世代原子力部門から2015年 までのFBR研究開発計画の概要(13課題)が提示された。本テーマは13課題中の第10課題に含まれ るものである。現行の中期計画においては、伝熱管はECT検査が主体であり異常発見時には施栓で対応す るのが原則である。これに対して本提案は、積極的にその場補修を試み、修理できた伝熱管は使用を続け るという新たな方針を持ち込むものである。

4 連携融合研究の意義

連携融合研究の趣旨を反映するものとして、1)異なる部門・拠点間の連携、2)複数の公開特許間の

連携、3)運営交付金と外部ファンドの連携、4)研究開発とアウトリーチ活動の連携の4つの展開が考えられる。

本テーマは、1)であり旧原研と旧サイクル機構の双方に跨る3部門・3拠点間の連携であり際立つ希 少性と独自性を有する。次に2)については、2-1関連特許調査で述べた5つの特許の中の①~③の西 村および岡による特許が中心である。関連が深い④と⑤についても今後に組み入れが可能である。特に、 ⑤の永井による特許については今回の調査で、以前のプロジェクトで作成された設計図面や試作部品の存 在を確認することができた。この特許については、産連部の企画による研究成果促進フェア(3月7日、 水戸で開催)で茨城県内の企業に紹介された。3)については JST からのファンドとの連携である。超短 パルスレーザーシステムについては、当初は原科研 FEL 棟の1TW レーザーを使用する予定であった。幸い JST から AP のレーザー駆動化の CREST ファンドが認可されたため、研究4棟405号室にレーザー駆動アト ムプローブの設置と新規レーザーシステムの購入が可能になった。パルス幅可変機能を有する新規レーザ ーシステムの利用が可能となれば、本テーマにとって極めて有益である。さらに新型プローブ本体の開発 そのものが、平成19年度を含めた3年間をかけて、JST 原子力システム研究開発事業「基盤研究開発分 野」の革新技術創出型研究開発(革新的原子炉技術)で推進してゆくことが決定した[4]。4)については、 関西木津サイトでは4年前より中高生を対象にスーパーサイエンスセミナー(S-Cube)を実施しており、 H19年10月26日で140回を数えている。さらに12月26日には、山城教育局所管の中学校教員 を対象とした教員研修において S-Cube の 142 回目を実施し、本研究の要素技術である複合型光ファイバス コープの開発の経緯と医療応用への挑戦についての講演を行った。

5 本テーマの今度の展開

本テーマのレーザーは、伝熱管の欠陥に対して熱加工用レーザー による溶接と超短パルスレーザーによる歪層の蒸発除去の2段階の 構成となる。熱加工用レーザーには、Yb ガラス強励起用に開発した フラッシュランプ励起チタンサファイヤレーザー[5]が熱加工プロ セスの模擬として利用可能である。図5に示すこのレーザーは現在、 施設供用制度の下で企業や大学にご利用頂いている。

以後、本テーマはJST原子カシステム研究開発事業において展開 してゆく。平成20年度には原科研核融合特別研究棟においてレー ザー加工ヘッドに関する総合試験を行い、平成21年度には高速増 殖炉研究開発センター内ISI棟での模擬伝熱配管補修試験を予定 している。この試験では、市販品として普及しているファイバーレーザー[6]を利用する。



図5 フラッシュランプ励起チタンサファ イヤレーザー(施設供用対象)

尚、本連携融合研究の採択と推進にご協力くださいました総ての方々に厚く御礼申し上げます。

参考文献

[1]西村昭彦、他、特許公開 2005-131704

[2]科学技術振興機構報 第317号、http://www.jst.go.jp/pr/info/info317/index.html [3] 岡潔、エネルギーレビュー、7月号、pp.7-10, (2007)

[4]科学技術振興機構報 第394号、http://www.jst.go.jp/pr/info/info394/index.html

[5]A. Nishimura, et al., SPIE-Proceedings, Vol.3265, pp.234-241, (1998)

[6]川人洋介、片山聖二、レーザー研究、12月号、pp.722-755,(2007)

4.20 原子炉構造材料における脆化メカニズム解明のための研究

Study of radiation hardening in reactor pressure vessel steels

野際 公宏, 西村 昭彦

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 レーザー物質制御研究グループ

Kimihiro NOGIWA, Akihiko NISHIMURA Laser Chemistry Group, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

In order to investigate the dependence of hardening on copper precipitate diameter and density, in-situ transmission electron microscopy (TEM) observations during tensile tests of dislocation gliding through copper rich-precipitates in thermally aged and neutron irradiated Fe-Cu alloys were performed. The obstacle strength has been estimated from the critical bow-out angle, ϕ , of dislocations. The obstacle distance on the dislocation line measured from in-situ TEM observations were compared with number density and diameter measured by 3D-AP (three dimensional atom probe) and TEM observation. A comparison is made between hardening estimation based on the critical bowing angles and those obtained from conventional tensile tests.

Keywords: In situ TEM observation, Dislocation, Laser, Three-dimensional Atom probe

1. はじめに

一般的に金属材料は材料に依存するある温度で中性子照射を受けると、マトリックス中に照射誘起析 出物、ボイド、転位ループおよびそれらの集合体が生成され、著しい延性劣化を引き起こす。このような 微細組織変化と、それらが巨視的な機械的性質に及ぼす影響についての理解は、軽水炉圧力容器鋼 の脆化予測式の構築や、次世代原子炉および核融合炉の構造材料開発にとって非常に需要である。

圧力容器鋼の場合は、不純物銅の照射誘起析出が照射脆化の主原因であることが古くから指摘 されており、次世代原子炉や核融合炉構造材においても、ボイド形成などが問題となっている。 しかしながら、照射脆化に最も影響を及ぼすと考えられるサブナノメートルオーダーサイズの照 射欠陥は通常の透過電子顕微鏡(TEM)観察でも検出が非常に困難な場合が多く、機械的性質とう まく関連付けて説明することができないことが、しばしばこの研究分野の進展の障害となってい る。これまでに3次元アトムプローブや中性子小角散乱および、最近では陽電子消滅を利用した 評価により、これらナノメートルオーダーサイズの照射欠陥の素性とその生成過程に関する詳細 な知見が得られつつある。しかしながら、それらが巨視的な機械的性質に及ぼす影響については、 最近になって、計算機シミュレーションを用いた解析が行われているだけで、実験的な評価は未 だほとんど行われていないのが現状である。

以上のような背景の下、本研究では通常の TEM では不可視なサブナノメートルオーダーサイ

ズの照射欠陥の検出およびそれらが運動転位に及ぼす定量的な影響を明らかにすることを目的として、TEM 内引張りその場観察による評価方法の確立および本手法を用いた微細組織と機械的性質の関係付けを行った。

2. 実験方法

(a)試料

試料には圧力容器鋼の脆化機構の主原因のひとつである銅析出物を模擬した Fe-1.0%Cu モデル合金の熱時効材および Fe-0.15%Cu の中性子照射材を用意した。非照射材である熱時効材を用いて実験手法を確立した後、中性子照射材にその評価を適用するという手順で実験を進めた。熱時効材は,825℃×4hの条件で溶体化処理を行った後,525℃にて熱時効処理を行った。熱時効時間は 20 min, 1h, 10 h, 100 h である。一方,照射材については、フルエンス:8×10²² n/m², 0.01dpa,温度:260, 290, 320℃の条件で日本原子力研究開発機構 大洗研究開発センター内にある材料試験炉 (Japan Materials Testing Reactor: JMTR)による中性子照射を行った。

(b)評価

微細組織の評価として、通常の TEM 観察および三次元アトムプロ ーブによる分析を行った。また、機 械特性試験として引張り試験およ び微小硬さ試験を行った。これらの 試験に加えて、微細組織と機械的 性質との関係付けを行うために TEM 内引張りその場観察法による 評価を試みた。

転位論における転位の線張 カモデルによれば(図 1)、転位が 析出物のような障害物から離脱 する臨界せん断応力 τ_c は、転位



図1 転位の線張力モデル。転位線 が障害物に引っかかり張り出してい る様子。



図 2 転位が障害物にピン止め される様子

の張り出し角: φ_c と障害物間隔: L_0 に依存し、 $\tau_c = (\mu b/L_0)\cos(\varphi_c/2)$ のように表される[1]。

従って析出物などの点欠陥障害物が機械特性に及ぼす影響を評価するためには、障害物強度を 表わす転位の張り出し角: φ_c と障害物間隔: L_0 を定量的に評価することが重要である。図2は引 張りその場観察結果の一例である。図2(a)では、銅析出物にピン止めされていた転位が、(b)では 銅析出物を通過している様子がわかる。転位の臨界張り出し角と障害物間隔の測定は、運動転位 が障害物を通過する直前の画像を用いて解析を行った。

3. 実験結果および考察

(a)熱時効材について

表1は三次元アトムプローブおよびTEMにより測定した銅析出物の平均サイズおよび数密度 である。熱時効時間の増加と共に析出物のサイズは増加していることがわかる。20分間および10 時間熱時効材では、銅析出物は TEM により観察されなかったが、三次元アトムプローブでは約 1nm の銅析出物が観察された。サイズや TEM では観察されないことを考慮するとこの析出物は b.c.c.構造であると考えられる。

数密度については1時間をピークと し、それ以降は減少していることがわ かる。これは析出の初期過程では母相 中に固溶した銅原子が原子空孔を介し た拡散(空孔拡散)により、クラスタ ーを形成し析出するが、ある一定以上 のサイズとなると、母相中の銅原子は 減少し、代わりにクラスター同士の結 合により銅析出物が成長するため数密 度の減少が起こることが知られている (オストワルド成長という)。

図3は TEM 内引張りその場観察に より得られた熱時効時間ごとの銅析出 物の障害物強度: $\cos(\varphi_c/2)$ および間 隔:Lの分布である。銅析出物のサイ ズ変化と同様に、熱時効時間の増加に 伴い障害物強度が増加しているのがわ かる。また、障害物間隔は10時間まで は減少し、それ以降の100時間では増 加していることがわかる。これまでの 研究では、表1のようなこのような銅 析出物の障害物強度の実験による評価 結果は本研究によりはじめて得られた。

(b)中性子照射材について

図4は320℃で中性子照射した Fe-0.15%Cu合金におけるTEM内引張 りその場観察である。中性子照射材に ついてのTEM内引張りその場観察実 験はこれまでに例がない。中性子照射 材では、熱時効により形成された銅析 出物とは異なり、原子空孔や鉄原子を 含むいわゆる銅濃縮クラスターや転位 ループなどをはじめとした格子欠陥が

表1 銅析出物のサイズおよび析出物

	20 min	1 h	10 h	100 h
分析手法	3DAP	3DAP	TEM	TEM
サイズ [nm]	1.2	1.2	5	20
数密度 [m-3]	4.5×10^{23}	6.6×10^{23}	5.5×10^{21}	1.1×10^{21}



図3 熱時効時間ごとの障害物強度(a)および間隔(b)の分布



図 4 320℃で中性子照射した Fe-0.15%Cu 合金における TEM 内引張りその場観察の結果。

形成される。図4ではこれらの障害物に運動転位がピン止めされている様子が観察されている。 これらのうち、運動転位と比較的大きな転位ループ(約 10nm 以上)との反応では、転位ダイポ ールを形成するように三次元的に相互作用する場合があり、障害物強度が 0.5 以上になることが 明らかとなった。これまでの研究における考察では、転位ループの障害物強度については、経験 的に得られた 0.2~0.3 程度の値が用いられるのが通常であった[2-4]。しかしながら、これらの値 を用いた場合、実際の材料強度を説明できないケースがしばしばあり、転位ループの障害物強度 について再検討する必要があることが指摘されていた[5]。このような障害物強度に関するパラメ ータ誤差は、微細組織観察と通常の引張り試験との比較により間接的に得られた値であり、複数 の障害物が存在する場合など、それらを分離して評価することが困難であることに起因している。 本実験では、運動転位の相互作用の様子の直接観察により、転位ループとの相互作用機構を明ら かになり、また確度の高い障害物強度の値を得られた。

4. 今後の予定

これまで原子炉構造材料研究として軽水炉圧力容器鋼を対象に、中性子照射により形成された照射 欠陥が機械的性質に及ぼす影響について、その微細構造組織に関する研究を行ってきた。一方、原子 炉構造材研究としては圧力容器鋼以外にも、新たに開発予定の次世代FBRやITERの構造新材料の開 発研究が喫緊の課題となってきている。今後はTEM観察と相補的な三次元アトムプローブを組み合わせ て、それら構造新材料の研究開発を行っていく。

現在、我々は、物質材料研究機構と共同で、三次元アトムプローブのレーザー補助イオン化の研究を 進めている[6]。これまでの電圧パルスを用いたアトムプローブでは、測定中にパルス電界による繰り返し 応力が印加されることになるため、高硬度材料では測定途中に試料破壊が頻発した。このため、照射材 や実用鋼の研究に対する三次元アトムプローブの適用は進んでいない。さらに、半導体や絶縁体など低 電導材料への適用は不可能であった。ところが、開発中のレーザーパルス補助アトムプローブでは、パ ルス電界による繰り返し応力を避けることができるため、測定成功率が飛躍的に改善され、効率的な実験 が可能となった。また低電導材料の分析も可能である。

図 5 は、レーザー補助エネルギー補償型三次 元アトムプローブにより実際に得られた純鉄の質 量スペクトルである。同位体の検出も十分可能 な分解能であることがわかる。今後は、パルス幅、 エネルギー、波長などレーザー条件の最適化を 行い、次世代 FBR および ITER の構造材料とし て有望視な酸化物分散強化型鋼の微細構造に ついての分析評価を進め、安定した製造条件を 見出したい。また、レーザー同位体分離により同 位体組成を調整した新材料の分析にも適用す る。



参考文献

[1] R.E. Stoller, S.J. Zinkle, J. Nucl. Mater., pp.283-287 (2000) 349.

- [2] F.A. Garner, M.L. Hamilton, N.F. Panayotou and G.D. Johnson, J. Nucl. Mater., 103 & 104 (1981) pp.803-808.
- [3] G.R. Odette and D. Frey, J. Nucl. Mater., 85 & 86 (1979) pp.817-822.
- [4] K. Yasunaga, H. Watanabe, N. Yoshida, T. Muroga, N. Noda, J. Nucl. Mater., 283-287 (2000) pp.179-182.
- [5] 木村晃彦, 斉藤匡史, 薮内聖皓, 笠田竜太, 鳴井実, 松井秀樹, 軽水炉材料の照射損傷機構に関す る研究会, (2005) 電力中央研究所.
- [6] 西村昭彦, 峰原英介, 特許公開 2006-260780.

4.21 フェムト秒レーザー蒸発を施したオーステナイト系ステンレス鋼 304L 表面内部残留応力分布 Residual stress distribution of austenitic stainless steel 304L with femtosecond laser ablation

<u>菖蒲敬久¹⁾</u>西村昭彦¹⁾²⁾小西啓之¹⁾²⁾ 独立行政法人日本原子力研究開発機構 1)量子ビーム応用研究部門 2)高速増殖炉研究開発センター <u>Takahisa SHOBU</u>, Akihiko Nishimura, Hiroyuki KONISHI 1)Quantum Beam Science Directorate, 2)FBR Research and Development Center Japan Atomic Energy Agency

Recently a femtosecond laser ablation was proposed as a mitigation method for stress corrosion cracking (SCC). This method cannot only ablate a thin hardened layer of the tensile stress surface, but can also induce a compressive residual stress to the ablated surface. Herein, the effect of different femtosecond laser ablation conditions on the in-depth residual stress profile was investigated for austenitic stainless steel 304L, which is used in core shrouds and recirculation pipes of boiling-water reactors (BWRs). The distribution of the in-plane residual stress was measured by a conventional X-ray method and a strain scanning method with high-energy synchrotron radiation X-rays at SPring-8. It was found that a relationship between the spot diameter and the influenced depth of femtosecond laser ablation exists. A small spot diameter can change the internal residual stress from a tensile stress to a compressive stress, while a large spot diameter can change the tensile residual stress beneath the surface to a compressive stress. Furthermore, the number of scans of the femtosecond laser ablation seems to be crucial in the shift of the tensile stress to a compressive stress in the territory influenced by femtosecond laser ablation.

Keywords: Femtosecond laser ablation, Austenitic stainless steel, Synchrotron radiation, Residual stress measurement

1. はじめに

平成17年度より量子ビーム応用研究部門では炉内構造機器で発生する応力腐食割れ(SCC)の対策 として、レーザー非熱蒸発による表面改質加工法の大面積化を実施している.本手法は空気中にて加 工硬化した最表層を蒸発除去できるだけでなく、すでに軽水炉で実用化されている水中でのレーザーピ ーニングと同様に材料内部に圧縮残留応力を付与できる[1].平成18年度は1 × 10 cmの非熱蒸発 を実施した.その際、1 × 1 cm 毎にレーザー照射条件を変え、X線応力測定により残留応力分布測定 を行い、効果的な照射条件の探査を行った. ライン BL22XU(以下放射光)を用いて行った.ここで, ラボ X 線では主に材料表面, BL22XU では材料

2. 実験方法

使用したレーザーは, 原科研 FEL 棟32号実験室に設置 されたチタンサファイヤ CPA レーザーシステム(Thales laser 社 α 10)であり, パルス幅 50fs, パルスエネルギー 50mJ, 繰り返し 10Hz の性能を有する.

試材はフライス加工を施したオーステナイト系ステンレ ス鋼 304L である.この供試材表面にフェムト秒レーザー (パルスエネルギー27mJ,パルス長 50 fs)を照射した.図 1(上)にXY移動ステージに取り付けた試材にレーザー加 工した様子を示す.試材の中央部に1 × 10 cm の領域 がアンバー色に変色している.図1(下)にはXYステー ジのスキャンニングの仕方も示した.また,表1にはレー ザー照射条件を示す.照射直径を変えて3 ケース,照 射繰り返し回数を変えて3 ケース,加工していない試験 片を加えて,合計 10 ケースについて照射実験を実施し た.

応力測定は,実験室系 X 線(以下ラボ X 線),およ び大型放射光施設 SPring-8 内原子力機構専用ビーム

内部のそれぞれ面内方向の残留応力を求めることが可能 である. ラボ X 線の線源には MoK α を使用し, sin2 ϕ 法 による面内応力測定を行った. 放射光では 30keV および 69.4keV の高エネルギーX 線を使用し, 前者では侵入深 さ一定法[2]により表面から40 μ mの深さの平均面内方向 残留応力を, 後者ではひずみスキャンニング法[3]により 表面から150 μ m の深さ分布測定をそれぞれ行った.

3. 実験結果と考察

図2にラボX線で測定した表面近傍の面内方向の残 留応力測定結果を示す.縦軸のプラスが引張,マイナ スが圧縮応力をそれぞれ示す.また図中の×および+ はレーザー蒸発による加工を加えていない試験片に関 するものである.図2よりわかることは以下の3つであ る.

- 300 μm および 600 μm の照射径に関しては,残留 応力は繰り返し回数にほぼ依存しない
- 2) 900 µmの照射径に関しては、繰り返し数1回とそれ 以外で大きく圧縮側に残留応力はシフトする.ただ し、それ以上ではあまり大きな残留応力の変化はな い





Fig. 1 Target on the XY translation stage (upper) and Scheme of laser pulse scanning (lower).

Table 1 Conditions for laser ablation.

	Number of scan, cycle				
	<u> </u>	0	1	3	7
Spot diameter , μm	300	No. 0	No. 1	No. 2	No. 3
	600		No. 4	No. 5	No. 6
	900		No. 7	No. 8	No. 9




3) 全体として、レーザー蒸発を行うことにより表面部の残留応力が引張側へシフトする. ただし、照射径 を大きくし、繰り返し数を増加させることにより表面の残留応力は圧縮側へシフトする.

本結果の中で最も重要なのは3)であり、以下の結論を得ることができる.

◎ 照射径の増加は表面部の残留応力を圧縮側へシフトさせる

図 3 に 30keV の放射光 X 線を用いて測定した表面から 40 µm までの面内平均残留応力を示す. 図3 よりわかることは以下の3つである.

1) 全体的に圧縮側へシフトした. 特に y 方向は圧縮の残留応力になった

- 2) x 方向に関して,繰り返し回数を増やすことで応 力が圧縮側へシフトする
- 3) x 方向の残留応力はレーザー加工を施していないものよりも応力が圧縮である本結果と、表面の残留応力の差を計算した結果を

図4に示す.図4より下記の3項目が得られる.

- 1) フライス加工のみを施した試験片のx方向の面内 応力σx以外はすべて負を示している
- 2) 照射径 00 µ m および 600 µ m における差の絶対 値が, 照射径 900 µ m における差の絶対値よりも はるかに大きい
- σxとσyを比べた場合,σyの方の絶対値が大 きい

本結果の中で最も重要なのは 2)であり,以下の結 論を得ることができる.

◎ 照射径の減少は内部の残留応力を圧縮側へ シフトさせる

なお、3)の理由に関しては、フライス加工の影響が 材料の深いところまで浸透しており、そのために繰り 返し回数が不足している場合には表面部が除去しき れていないためにフライス加工による引っ張り応力が 残っているためであると考えられる.

図5に69.4keVの放射光X線を用いて測定した表面から150µmまでの面内残留応力を示す.本実験結果より下記の3項目が得られる.

1) どのレーザー蒸発においても表面から 50 µ m ま での応力変化が大きい



Fig. 3 Rresidual stresses of all specimens using the constant penetration depth method with high-energy synchrotron radiation X-rays.



Fig. 4 Difference stress between the surface stress and inner stress.

- 2) 照射系が小さいほど表面から内部にかけて応力の変化が大きい
- 3) 900 µ m の照射径でかつ繰り返し数が7回の No.9 では 50 から 100 µ m の深さにおいて, 圧縮残留応 力が発生している

特に3)は、材料内部に圧縮残留応力を発生させるために必要な超短パルスレーザーの照射条件の糸 ロを表している、今後、レーザー照射条件の精査を行い、深さ方向の残留応力分布の定量的な測定が 必要となる.

4. まとめと今後の展開

条件が異なるフェムト秒パルスレーザー蒸発法をフラ イス加工を施した 304L 材に適用し,内在する残留応力 測定を行った.本研究で得られた結果を以下にまとめ る.

- 1) 照射径の大きさは応力改質が行われる深さと密接 な関係があり、照射径を大きくすると表面、照射径 を小さくすると内部の応力を圧縮側へシフトさせる
- 2) 繰り返し数は、1)の応力改質に関してより大きな変 化を及ぼす
- 3) 照射径 900 μm, 繰り返し数7回で 50 から 100 μm の深さに圧縮の残留応力を発生させることができた



Fig. 5 Distributions of residual stresses.

今後の展開として、このフェムト秒パルスレーザー蒸発法に発展させるためには以下の視点が重要である.

- 1) 実施した蒸発面積である1 × 10 cm に相当する適用例
- 2) 実機模擬材料への適用
- 3) 種々の蒸発条件下での深さ方向の残留応力の迅速且つ定量 的な分析

1)に関しては、先ず高速増殖炉の熱交換器で使用される 1 イン チ熱交換器伝熱管の内壁の補修技術開発が考えられる.この技術 開発については本プロシーディングにおいて別途詳細に報告する. 2)に関しては、SCCが生じる含有炭素量を低減していない 304 鋼に 対して本手法を試み、SCC 耐性を付与できるかの検証が考えられる. 具体的には、1980 年代に SCC が発見された「ふげん」発電所が対 象となる.図 6 に製作した蒸気ドラムの模擬配管を示す.模擬配管 はエンドミル加工により中心部の溶接線からの距離を変えて数種の サンプルを切り出し済みである.また、放射光ビームラインの高度化 としても 3)が重要であり、現在、独自に考案したスパイラルスリットを 作製し性能試験を実施し、蒸発深さと内在する残留応力の深さを一 層定量的に示す準備を進めている.



Fig. 6 Welded SUS304 pipe of FUGEN reactor.

参考文献

[1] A. Nishimura, E. Minehara and T. Tsukada, 特許公開 2005-131704.

[2] Y. Akiniwa, K. Tanaka, K. Suzuki, K. E. Yanase, K. Nishio, Y. Kusumi, H. Okado, and K. Arai, Journal of the Society of Materials Science, Vol. 52, No. 7 (2003) pp.764-769 in Japanese.

[3] T. Shobu, J. Mizuki, K. Suzuki, Y. Akiniwa and K. Tanaka, JSME International Journal, Series A, Vol. 49, No. 3 (2006), pp.376-381.

4.22 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 ㈱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 Tungsten Carbide (WC) ceramic and Silicon Nitride (Si₃N₄) ceramic by high-intense femtosecond laser pulse irradiation were investigated. The traces of melting were observed on the surface of WC ceramic but not on that of Si₃N₄ ceramic after one-pulse laser irradiation. With Raman spectrum and scanning electron microscopy obserbation of irradiated surfaces, it was shown that WC was decomposed into W and C, and Si₃N₄ was decomposed into Si and N.

Keywords: Femtosecond laser, Surface modification, Tungsten Carbide, Silicon Nitride, Raman spectrum, Scanning electron microscopy

1. はじめに

フェムト秒レーザーによる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、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。

上記の中でも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を 極めて短時間だけ注入できることから、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あり、それに因る新規な特性の発現が期待されている。

今回、化合物である WC 焼結体および Si₃N₄焼結体に高輝度フェムト秒レー ザーを照射することによる表面改質を試みた。 2. 実験

照射実験の装置概略を図1に示す。Ti:sapphire フェムト秒レーザー(波長 800 nm、パルス幅 38 fs、繰り返し1Hz)を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。ターゲット表面上でのレ ーザー照射径は $13 \times 20 \,\mu$ m、照射強度は 2×10^{16} W/cm² とした。ターゲットは 水平方向に 0.25 mm/s の速度で移動させて、1パルス毎の照射痕を形成した。 照射時の真空度は 2.6×10^4 Pa とし

た。

ターゲットは市販の WC 焼結体 と市販の Si₃N₄焼結体であり、形状 は各々10×12×4 mm と 10×10× 0.65 mm とした。

照射痕は SEM (Scanning Electron Off-axis Microscopy) による観察とラマン散 Parabolic mirror 乱分光分析により解析した。



図1 フェムト秒レーザ照射装置概略

3. 結果および考察

フェムト秒レーザー照射後の WC と Si₃N₄の焼結体表面の SEM 像を図2に 示す。WC 焼結体表面の照射痕は一度溶融後固化したようであり、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溶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る。

それに対し、Si₃N₄焼 結体の照射痕には、WC 焼結体にて観察された 溶融したような痕跡は 見られず、約 20 μ mの 穴が開いていた。また、 穴の内表面には約 2μ m 径の柱状晶がランダム に形成されていた。一般 的に、Si₃N₄焼結体は柱



図 2 フェムト秒レーザー照射後の WC と Si₃N₄の焼結体 表面 SEM 像

状晶のSi₃N₄結晶粒と低融点の粒界非晶質相から構成されている。Si₃N₄焼結体 への高輝度フェムト秒レーザー照射により低融点の非晶質粒界相が分解・蒸発 すると同時に柱状晶Si₃N₄結晶粒の一部表面が分解・蒸発したためと推定され る。 フェムト秒レーザ 一照射前後の WC と Si_3N_4 の焼結体表面の ラマンスペクトルを 図3に示す。WC 焼結 体おいてはフェム ト秒レーザー照射前 においてもカーボン 由 出されているが、照 射後にはこの C 由来 のピーク高さが約3 倍になっており、フェム

ト秒レーザー照射によ

り WC が W と C に分解





したと考えられる。分解した W は溶融し、さらにフェムトレーザーの圧力に より図1に示した痕跡になったと推定される。ただし、W の融点は3600 ℃で あり、この温度まで昇温したかの確認実験が必要である。

一方、フェムト秒レーザー照射後の Si₃N₄ 焼結体表面においては照射前には 存在した Si₃N₄ 由来のピークは消失し、Si 由来のピークのみが存在した。Si₃N₄ は融点を持たず、雰囲気にも依存するが 1800 ℃以上で Si と N に分解する。 それ故、フェムト秒レーザー照射においても Si₃N₄ 焼結体表面は Si と N に分 解して N は蒸発し、Si が残ったと推定される。また、図1において述べた様 に、この分解・蒸発の過程においては、まず融点の低い Si-O-N から成る粒界 が分解・蒸発し、さらに分解温度の高い Si₃N₄ 結晶粒の一部が分解・蒸発した と推定される。

4. まとめ

- WC 焼結体および Si₃N₄焼結体に38 fsレーザーを照射強度2×10¹⁶ W/cm² で照射することにより、WC 焼結体表面は溶融後固化した痕跡が、Si₃N₄ 焼結体表面は穴が開きその内表面には Si からなる柱状粒子が生成した。
- ② フェムト秒レーザー照射により、WC 焼結体は WC の分解→W の溶融→ W の凝固により W 相と C 相に相分離、Si₃N₄焼結体は Si₃N₄の分解→N の 蒸発により Si が残存したと推定される。

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, p.621(2002)

[3] J.Reif, F.Costache, M.Henyk and S.V.Pandelov: Appl. Surf. Sci. pp.197-198, 891(2002)

[4] H.Azuma, H.Daido, et. al. Jpn. J. Appl. Phys. 43, p.L1172 (2004)

[5] F.Qian, R.K.Singh, S.K.Dutta and P.P.Pronko, Appl. Phys. Lett. 67,p.3120(1995)

[6] N. Yasumaru, T. Shimizu and J. Kiuchi, Appl. Phys.A, 79, p.425(2004)

4.23 次世代半導体露光光源の実用化

Laser-produced Plasma EUV Light Source for Next Generation Lithography

遠藤 彰、溝口 計 ギガフォトン株式会社 Akira ENDO, Hakaru MIZOGUCHI Gigaphoton Inc.,

The development status of laser produced plasma EUV light source is presented for next generation lithography. Component technologies are high-power RF-excited CO_2 laser, Sn droplet target and collector mirror lifetime enhancement by electromagnetic method. Basic experiments that support the development, e.g. a conversion efficiency of 4.5% has been obtained with a 15ns TEA CO_2 laser and a Sn cavity plate, 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, CO2 laser, Tin, droplet

1. はじめに

プラズマから放射される 13.5mm 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精力的な研究開発がされている[1,2]。EUV リソグラフィー実用化の鍵のひとつは、高出力の実用的 EUV 光源の開発であり、レーザー生成プラズマ(LPP)方式と放電生成プラズマ(DPP)方式の光源開発が集中的に行われてきた。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(115-180 W [3])を得るには 10~20 k W 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

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。



図 1. Xe と Sn の共鳴線波長の価数依存(JAEA, Akira SASAKI) 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開発されてきている。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、そして錫の完全回収を考慮して開発を進める必要がある。Snキャビティ ターゲットをCO₂レーザーで照射した実験においては、最大で 4.5%のEUV変換効率が得られている。 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 2 倍以上の効率であり、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[5]。これは、CO₂レーザー波長の場合は、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、かつ少ないデブリ発生となったと考えられる。Snター ゲットとCO₂レーザーの組み合わせが高い変換効率とともに少ないデブリ発生の観点からベスト の選択である。

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、従来はNd:YAGレーザーが一般的に用い られてきた。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、10kW級の場 合には多数のビームが必要で装置価格が高額になる。一方、産業界で利用されているCO₂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、装置コストの面でも利点が ある。EUVAでの最近のデータとして、RF励起CO₂レーザーを増幅器としたMOPAシステムにより、 7.0kW(繰返し周波数100kHz)の出力が得られている[5]。 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、π 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[5]。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 製作が課題であるが、超伝導磁石の採用により最適化の実施中である。デブリの抑制に関しては、 ドロップレットターゲットに代表される、錫質量制限ターゲットを用いることにより、デブリの 発生を抑制可能であり、ドロプレットを高速化するとともに磁場設計の最適化により錫ターゲッ トの 100%回収を目指している。

2. 4 EUV 光の高出力発生実証

開発した 22ns, 100kHz, 5kW CO₂ レーザーを用いて、ダミーターゲットとして錫回転円盤に 照射を行いプラズマでのEUV発生パワー143W(2%バンド幅、2πsr)を実証した。(図2) この場 合の変換効率は 3%であり、集光点出力としては 50Wに相当する。発光の安定度はレーザーのパル ス安定度と相関を持ち、レーザー発振器の改善により実用レベルに達する見込みである。



図 2. EUV パルスエネルギー計測結果

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CO₂レーザーの組 み合わせが実用的と考えられる。115W以上の集光点出力の達成には、まず 20kW級のパルスCO₂レ ーザーの開発が必要であり、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、そして効率的な錫原子回収が有効と考える。これらを実用的な光 源装置として実現するためには、未だ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] V.Y. Banine: Requirements and prospects of next generation Extreme Ultraviolet Sources for Lithography Applications, Presentation of EUVL Symposium. October 2006, Barcelona
 [4] 中野真生 他、第 68 回応用物理学会学術講演会 6a-V-1
- [5] A. Endo, SPIE Optics + Photonics, 6703-7

4.24 Observation of Four-fold Azimuthal Angle Dependence in the Terahertz Radiation Power of (100) p-InAs

E. Estacio¹, H. Sumikura¹, H. Murakami¹, S. Saito¹, M. Tani¹, N. Sarukura¹, M. Hangyo¹, C. Ponseca², R. Pobre², R. Quiroga², S. Ono³ ¹Institute of Laser Engineering, Osaka University, ²Institute for Molecular Science, ³Nagoya Institute of Technology

The azimuthal angle dependence in the terahertz radiation power of (100) InAs under 1 T magnetic field is presented. Results show that although the dominant radiation mechanism is surge current, azimuthal-angle dependent radiation due to the nonlinear effect is also observed. The twofold symmetry of the p-polarized terahertz radiation power was modified to a fourfold symmetry with the transverse magnetic field. Moreover, results exhibited four-fold symmetry for the s-polarized terahertz power even with no applied field. The anisotropic intervalley scattering of photocarriers is tentatively proposed as the origin of quadrupole response and the fourfold emission symmetry. [E. Estacio et al, Appl. Phys. Lett. 90, 151915 (2007)]

Keywords: Terahertz radiation, InAs, magnetic field

1. Introduction

A subject of immense work in the terahertz (THz) regime in the past decade has been the generation of intense THz radiation from semiconductor surface (such as InAs) illuminated with ultrashort optical pulses [1, 2]. The THz radiation enhancement phenomenon with an applied magnetic field has also been thoroughly investigated [3-8]. The initial motivation of this study is the investigation of the dominant mechanism that gives rise to the intense terahertz radiation in p-type InAs. As such, it prompted work on the magnetic field enhancement in p-type and n-type InAs wafers. Here, we present the effects of a transversely applied 1-T magnetic field on the azimuthal dependence THz radiation in (100) p-type InAs.

2. Experiment

van der Pauw-Hall measurements were initially performed to determine the carrier concentration and the carrier mobility of the p-type InAs (100) sample at room temperature. The measured carrier concentration was 7.1×10^{16} cm⁻³ and the hole mobility was 150 cm²/Vs. Primarily, terahertz TDS (Time-Domain Spectroscopy) and excitation fluence dependence of the terahertz radiation power were measured to obtain some information on the dominant terahertz radiation mechanism. The TDS experiments were performed [9], as the set-up shown in Fig. 1. The beam diameter of pump light at the sample was ~0.5 mm. The transverse applied field was provided by a 1 T permanent magnet. Steady-state power measurements were also performed to investigate the excitation fluence and azimuthal angle dependence of the terahertz radiation power as described by Gu and Tani [6]. The azimuthal angle dependence was measured for the p- and s-polarized terahertz radiation components. In the steady-state case, the photoconductive antenna was replaced by an InSb hot-electrom bolometer as the THz detector.



Figure 1 Experimental setup for THz-TDS measurement with applied magnetic field.

3. Results and discussion

Migita et al., have shown that the Lorentz force-driven THz radiation due to the drift current will have a π -shifted TDS waveform when the applied B-field direction is flipped [10]. As shown in the results in Fig. 2(a), the dominant THz radiation mechanism appears to be the drift current from the photogenerated carriers. The excitation fluence dependence is shown in Fig. 2(b). The photocarrier-related radiation mechanism saturates at about 1.2 mJ/cm². Note that, all the subsequent azimuthal-angle-dependence measurements were performed at an excitation fluence of 0.2 mJ/cm², wherein the surge current THz radiation is expected to be dominant.



Figure 2 (a) Subtracted TDS wave forms for the B_{up} -No field and B_{down} -No field cases where the orientation of the applied magnetic field is shown in the inset. (b) Excitation fluence dependence of the emitted terahertz radiation.

JAEA-Conf 2008-007

The azimuthal angle-dependence of the THz radiation power was observed as shown in Fig. 3 and 4. In the figures, a large DC offset was observed, and the oscillatory signal did not exceed ~20 % of total signal amplitude. Moreover, the 1 T applied field amplified just the DC offset and not the oscillatory signals. These results lend proof that the dominant radiation mechanism is indeed, due to surge current and the applied field does not affect the contribution from the nonlinear effect. In Fig. 3, the twofold azimuthal symmetry (black trace) was modified into a fourfold angle dependence with a 1 T field (gray trace). It appears that the 1-T plot is a superposition of twofold and fourfold-symmetric THz radiation. In Fig. 4, the weak s-polarized THz radiation exhibited fourfold azimuthal symmetry with and without the applied field. These results suggests that the fourfold behavior is a weak contribution and is enhanced by the applied field.



Figure 3 Azimuthal angle-dependence of the p-polarized THz radiation power. The twofold symmetry of the bulk optical rectification effect for (100) InAs was modified to fourfold symmetry with the transverse magnetic field.

Figure 4 The weak fourfold dependence is observed in the *s*-polarized THz radiation even with no applied field. These results are suggested to be due to the anisotropic photocarrier scattering to the X or L valleys.

Calculations, taking into consideration the symmetry requirements for (100) zinc-blende crystals show that the magnetization-induced nonlinear optical susceptibility will not contribute to a fourfold symmetry, from the following equation,

$$P^{nl}(\Omega \sim 0 = \omega - \omega) = \chi^{cr} E(\omega) E(-\omega) + \chi^{magn} E(\omega) E(-\omega) M = 2\varepsilon_0 \sum_{jkl} \chi^{(2)}_{ijkl} E_j E_k H_l$$

Moreover, M. Reid et al., stated that a fourfold dependence in (100) InAs has to originate from a quadrupole contribution [11] but this has yet to be observed.

Due to the Lorentz force, the applied transverse field would drive the photocarriers in the y or -y directions (parallel to the InAs surface) on the reflection plane, depending on the polarity of B_{up} or B_{down} . This fourfold behavior enhanced by the magnetic field is possibly attributed to a weak quadrupole response from an anisotropic intervalley scattering to the L and X valleys in the <111> and <110> directions,

respectively, and their equivalent directions. It is deduced that the intervalley scatterings of carriers in four equivalent directions imply the creation of an electric quadrupole moment with or without an applied field. This quadrupole response is thought to cause the azimuthal fourfold symmetry. With a transversely applied field, the quadrupole- and dipole-related emissions maybe enhanced with the associated tilting of their electric moments from the surface normal according to the Lorentz force.

4. Conclusion

We have experimentally shown that in standard optical excitation conditions, the dominant THz radiation mechanism in (100) p-InAs is the surge current. The azimuthally-dependent signal that is attributed to optical rectification comprises no more than 20 % of the total THz radiation power. Moreover, a magnetic field-induced fourfold symmetry is observed for the p-polarized THz radiation power. Even with no applied field, the fourfold symmetry is seen in the weaker s-polarized THz radiation. The actual origin of these results is being studied but they are tentatively attributed to a weak quadrupole response from an anisotropic intervalley scattering to the L and X valleys in the <111> and <110> directions, respectively. This anisotropy in the intervalley scattering is possibly enhanced by the Lorentz force-driven photocarriers in the presence of a magnetic field.

5. References

[1] N. Sarukura, H. Ohtake, S. Izumida, Z. Liu, J. Appl. Phys., vol. 84, p.654 (1998).

[2] R. Adomavicius, G. Molis, A. Krotkus, V. Sirutkaitis, Appl. Phys. Lett., vol. 87, p.261101 (2005).

[3] M. B. Johnston, D. M. Whitaker, A. Corchia, A. G. Davies, E. H. Linfield, *Phys. Rev. B*, vol. 65, p.165301 (2002).

[4] M. Reid, R. Fedosejevs, Appl. Opt., vol. 44, p.149 (2005).

[5] C. Weiss, R. Wallenstein, R. Beigang, Appl. Phys. Lett., vol. 77, p.4160 (2000).

[6] P. Gu, M. Tani, *in Terahertz Optoelectronics, Topics in Applied Physics*, vol. 97, edited by K. Sakai (Springer, Berlin, 2005), p.63-76.

[7] H. Ohtake, S. Ono, M. Sakai, Z. Liu, T. Tsukamoto, N. Sarukura, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 76, p.1398 (2000).

[8] R. H. Takahashi, A. Quema, R. Yoshioka, S. Ono, N. Sarukura, Appl. Phys. Lett., vol. 83, p.1068 (2003).

[9] E. Estacio, H. Sumikura, H. Murakami, M. Tani, N. Sarukura, M. Hangyo, C. Ponseca Jr., R. Pobre,

R. Quiroga, S. Ono, Appl. Phys. Lett. vol. 90, p.151915 (2007).

[10] M. Migita, M. Hangyo, Appl. Phys. Lett., vol. 79, p.3437 (2001).

[11] M. Reid, R. Fedosejevs, Appl. Phys. Lett., vol. 86, p.011906 (2005).

4.25 Co/SiO2多層膜の耐熱性評価

Heat Stability Evaluations of Co/SiO₂ Multilayers

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 京都府木津川市梅美台 8-1

Masahiko ISHINO, Masato KOIKE

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency 8-1, Umemidai, Kizugawa, Kyoto 619-0215, Japan

兼平美香, 佐藤二美, 寺内正己

東北大学 多元物質科学研究所 〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1

Mika KANEHIRA, Futami SATOU, Masami TERAUCHI

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University 2-1-1, Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, 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-ku, Osaka 541-0041, Japan

The heat stability of Co/SiO₂ multilayers was evaluated. Co/SiO₂ multilayer samples were deposited on Si substrate by means of an ion beam sputtering method, and annealed at temperatures from 100°C to 600°C in a vacuum furnace. For the structural and optical evaluations, small angle x-ray diffraction (XRD) measurements, soft x-ray reflectivity measurements, and transmission electron microscopy (TEM) observations were carried out. As the results, the Co/SiO₂ multilayer samples annealed up to 400°C maintained the initial multilayer structures, and kept almost the same soft x-ray reflectivities as that of the as-deposited Co/SiO₂ multilayer sample. A deterioration of the multilayer structure caused by the growth of Co grains was found on the Co/SiO₂ multilayer samples annealed over 500°C, and the soft x-ray reflectivity dropped in accordance with the deterioration of the multilayer structure.

Keywords: Co/SiO₂ multilayer, Heat stability, Multilayer structure

1. はじめに

1-8 keV 領域用の分光光学素子として開発した Co/SiO₂多層膜回折格子は 4-6 keV のエネルギー 領域で 40%以上の効率を、W/C 多層膜回折格子は 8 keV で 38%の効率をそれぞれ達成した[1]。達 成した回折効率は十分実用的なレベルにあることから、多層膜回折格子の応用として放射光ビー ムライン分光器への適用[2]などが検討されている。しかし、高輝度放射光のような高い熱負荷を 伴う光源での利用や実験装置のベーキング処理などを考えたとき、光学素子には高い効率だけで なく高い耐熱性も要求される[3]。

多層膜回折格子の回折格子基板については、SiO₂やSiCを用いたマスター(オリジナル)回折 格子を使用することにより高い耐熱性が保証される[4,5]。また、W/C多層膜の耐熱性については 多くの報告がなされており、400℃程度の実用的な耐熱性をもつことが報告されている[6,7]。しか し、Co/SiO₂多層膜の耐熱性についての知見はない。そこで、Co/SiO₂多層膜試料に対して真空加 熱処理を行い、多層膜構造と光学特性の温度変化をX線回折測定、軟X線反射率測定、そして透 過型電子顕微鏡による観察を行い、Co/SiO₂多層膜の耐熱性を評価した[8]。

2. Co/SiO₂多層膜の生成

Co/SiO₂多層膜はSiウェハーを基板に用いて、イオンビームスパッタリング法により成膜した。 Co/SiO₂多層膜の設計値は、周期長を6.5nm、周期長に対するCo層の膜厚比を0.4、そして周期数 を30周期(60層)とした。

成膜した各 Co/SiO₂多層膜に対して CuKa 線による X 線反射率測定を行い、周期長と 1 次 Bragg ピーク反射率をそれぞれ導出した。Table I に Co/SiO₂多層膜試料の周期長と 1 次 Bragg ピーク反 射率を示す (before annealing)。多層膜の周期長は Bragg ピークの角度位置から導出した[9]。

Sample No.		1	2	3	4	5	6	7
Annealing		As-	100	200	200	400	500	(00
temperature (°C)		deposited	100	200	300	400	500	600
Periodic length (nm)	Before annealing	6.50	6.51	6.51	6.55	6.55	6.53	6.53
	After annealing		6.51	6.56	6.64	6.70	6.80	6.92
First-order Bragg	Before annealing	0.495	0.484	0.484	0.496	0.496	0.497	0.497
peak reflectivity	After annealing		0.497	0.505	0.519	0.516	0.357	0.001

Table I. Periodic lengths and the first order Bragg peak reflectivities of the Co/SiO₂multilayer samples

3. Co/SiO2多層膜の耐熱性評価

熱による Co/SiO₂多層膜の構造変化を評価するため、Nos. 2 - 7 の Co/SiO₂多層膜に対して、真空加熱炉を用いた熱処理を 100°C、200°C、300°C、400°C、500°C、そして 600°Cの各温度で 1 時間 ずつ行い、X 線反射率測定から熱処理後の多層膜周期長と 1 次 Bragg ピーク反射率の導出を行った。Table I に熱処理後の Co/SiO₂多層膜の周期長と 1 次 Bragg ピーク反射率を示す (after annealing)。 Figure 1 には熱処理温度に対する Co/SiO₂多層膜の周期長と 1 次 Bragg ピーク反射率の変化の様子 をそれぞれ示す。周期長および反射 率は熱処理前の値で規格化している。

Co/SiO₂ 多層膜の周期長は熱処理 温度に比例して増加しているが変化 の割合は小さい。周期長の変化は、 400℃の熱処理に対して 2%の増加、 500℃では 4%の増加となっている。 周期長の変化割合とは対照的に X 線 反射率は 500℃の熱処理後に大きく 減少し、600℃の熱処理後には熱処理 前の 0.2%まで減少している。

多層膜構造を直接確認するために、 東北大学多元物質科学研究所におい



Fig. 1 Relative periodic length and relative first-order Bragg peak reflectivity of the Co/SiO₂ multilayers

て透過型電子顕微鏡(TEM)による断面観察を行った。Figure 2(a)から 2(c)に as-deposited 試料 (Sample No. 1) と 500℃で熱処理を行った試料(Sample No. 6)、そして 600℃で熱処理を行った 試料(Sample No. 7)の断面 TEM 像をそれぞれ示す。TEM 像には観察時に取得した電子回折パタ ーンを挿入している。Figure 2(a)に示した as-deposited 試料では、Co 層(図中で黒く見える層)と SiO₂ 層(図中で白く見える層)が良好な周期構造を有していることが確認できる。電子回折パタ ーン中にリング状の強度分布が見られることから、Co 層はランダムな向きをした微結晶の集合体 であることがわかる。Figure 2(b)に示す 500℃で熱処理を行った多層膜試料では多層膜の周期構造 が確認できるが、SiO₂ 層厚が減少し、Co 層厚が増加していることがわかる。Co 層の像コントラ ストは Fig. 2(a)と比べると濃淡があることから、Co 濃度が一様でないことがわかる。これは SiO₂ 層の一部が Co 層中に拡散したことが原因と考えられる。多層膜における成膜物質の拡散は、界面 における光学的コントラストを低減させる。500℃の熱処理における X 線反射率の急激な減少は、 この光学的コントラストの低減が原因であると考えられる。Figure 2(c)に示す 600℃の多層膜試料 では、Fig. 2(a)や 2(b)に見られる多層膜構造が完全に消失している。TEM 像には Co が凝集して塊 になっている様子がみられる。電子回折パターンには、大きくなった Co 結晶粒からの弱い回折点 が現れている。以上のことから、熱処理による Co/SiO₂ 多層膜の構造劣化は、Co 層の凝集と Co



Fig. 2 TEM images and the selected area electron diffraction patterns of the Co/SiO₂ multilayer specimens of (a) as-deposited, (b) annealed at 500°C, and (c) annealed at 600°C.

結晶の成長が原因であると考えられる。

Co/SiO₂ 多層膜の光学特性を評価す るため、1keV 領域での軟 X 線反射率測 定を立命館大学 SR センターの BL-11 に設置された軟 X 線光学素子評価装置 [10]で行った。Figure 3 に as-deposited 試料と 400℃および 500℃で熱処理を 行った多層膜試料の軟 X 線反射率を示 す。熱処理温度が 400℃の多層膜試料 は as-deposited 試料と同等の軟 X 線反 射率を維持している。500℃で熱処理を 行った多層膜試料の軟 X 線反射率は、 多層膜構造の劣化に対応して大きく減 少している(Fig. 1 および Fig. 2 参照)。



Fig. 3 Measured soft x-ray reflectivity curves of the as-deposited and annealed Co/SiO₂ multilayers

以上の結果から、Co/SiO₂多層膜は400℃までの熱処理に対して安定した多層膜構造と軟 X 線反 射率を維持していることがわかった。

4. まとめ

Co/SiO₂多層膜の耐熱性評価を目的として、Si 基板上に成膜した多層膜試料に対して 600℃まで の真空加熱処理を行い、多層膜構造と光学特性の温度変化を評価した。その結果、Co/SiO₂多層膜 は 400℃までの熱処理に対して安定した多層膜構造と熱処理前と同等の軟 X 線反射率を保持して おり、十分実用的な耐熱性を有することを確認した。そして、熱処理による多層膜構造の劣化は Co 層の凝集と Co 結晶の成長が原因であることがわかった。

参考文献

- M. Ishino, P.A. Heimann, H. Sasai, M. Hatayama, H. Takenaka, K. Sano, E.M. Gullikson, and M. Koike, Appl. Opt. 45, p.6741 (2006).
- [2] M. Koike, M. Ishino, and H. Sasai, Rev. Sci. Instrum. 77, p.023101 (2006).
- [3] V. Rehn, A. Franks, and P. Eisenberger, Nucl. Instrum. Methods 172, p.271 (1980).
- [4] S. Matsui, K. Moriwaki, H. Aritome, S. Namba, S. Shin, and S. Suga, Appl. Opt. 21, p.2787 (1982).
- [5] A. Franks, B. Gale, K. Lindsey, M. Stedman, and W.P. Bailey, Nucl. Instrum. Methods 208, p.223 (1983).
- [6] E. Ziegler, Y. Lepetre, L.K. Schuller, and E. Spiller, Appl. Phys. Lett. 48, p.1354 (1986).
- [7] H. Okada, K. Mayama, Y. Goto, I. Kusunoki, and M. Yanagihara, Appl. Opt. 33, p.4219 (1994).
- [8] M. Ishino, M. Koike, M. Kanehira, F. Satou, M. Terauchi, and K. Sano, J. Appl. Phys. 102, p.023513 (2007).
- [9] J.B. Kortright, St. Joksch, and E. Ziegler, J. Appl. Phys. 69, p.168 (1991).
- [10] 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, p.300 (2002).

4.26 軟X線領域における偏光評価解析装置の開発 Development of an Apparatus for Polarization Analysis in Soft X- Ray Region

今園孝志¹、鈴木庸氏¹、佐野一雄²、小池雅人¹
 1 日本原子力研究開発機構
 2 島津エミット(株)

Takashi IMAZONO,¹ Yoji SUZUKI,¹ Kazuo SANO,² and Masato KOIKE,¹ ¹ Japan Atomic Energy Agency (JAEA) ² Shimadzu Emit Co. Ltd.

Circularly polarized soft x-ray of the 1-keV region benefits studies of magnetic properties of materials. In magnetic circular dichroism (MCD) measurement, experimenters need the information on the actual polarization state of light used as a probe beam to discuss the experimental result because the MCD signal is proportional to the degree of circular polarization. Polarizing elements such as a polarizer and a phase shifter are indispensable to determine the polarization state of light. In our previous study, mica crystalline has been clarified to work as a high efficient reflection-type polarizer at 0.88 keV and it has made it possible to quantitatively characterize the degree of linear polarization of light emitted from a variable-polarization undulator at the SPring-8. Also, the result of simulation calculation based on the dynamical theory of x-ray shows that mica crystalline has a promising candidate as a transmission-type quarter-wave plate (OWP) at around 1 keV, where the OWP is the phase shifter which gives the phase retardation of 90° . This means the polarizing elements made with micas have a possible to determine the actual polarization state of light in the 1-keV region although the polarizing ability of the QWP with mica has not been performed yet. An evaluation system on the basis of the rotating-analyzer method is needed to verify above result. We have been developing a new apparatus for polarization analysis. It consists of a phase shifter unit and a rotating-analyzer unit having nine drive-shafts which can be changed independently. It will be installed as a supplemental apparatus of the evaluation beamline for soft x-ray optical elements (BL-11) at the SR Center, Ritsumeikan University.

Keywords: Polarizer, Phase shifter, Soft x-ray, Rotating-analyzer, Polarization analysis

1. はじめに

0.7~0.9 keV(以下、1 keV)領域の円偏光軟X線を励起光源として用いる内殻磁気円二色性(MCD)測 定は磁性材料研究に有効な計測法である。左右の円偏光に対する吸収スペクトルの差分として得られる MCD の信号強度は励起光の円偏光度に比例する。そのため測定データの解析や実験結果に関する議 論を行う上でプローブ光として用いる光源の円偏光度などの偏光状態を予め決定しておくことは極めて 有用である。

軟X線光源の偏光状態を定量的に評価するには偏光子や移相子が必要である。多層膜生成技術の進展により約700 eVより低エネルギー側では Mo/Si や Sc/Cr 多層膜偏光素子が開発され、偏光測定に利用された[1]。一方、6 keV 以上の領域では格子欠陥の無い良質な Si やダイヤモンド単結晶を用いたものが開発され、偏光評価の他、円偏光の生成、制御にも利用されている[2]。しかし、1 keV 領域は多層膜型素子と結晶型素子の境界領域であるため、高い偏光特性を有する偏光素子がなく、偏光評価研究はこれまで殆ど行われてこなかった。

筆者らは SPring-8 の軟X線ビームライン BL23SU において SPring-8 保有の軟X線偏光解析装置[3]を 用いて雲母結晶の偏光性能に関する評価実験を行い、同結晶が 0.88 keV で高効率、高偏光能な反射 型偏光子として機能することを明らかにし、同ビームラインの直線偏光度を決定することに成功した[4]。ま た、雲母結晶が位相差±90°を生成する透過型移相子としても機能する可能性をシミュレーションにより見 出した[5]。これは雲母結晶偏光素子を用いた偏光評価実験が可能であることを示唆しているが、雲母結 晶の移相子としての性能評価はまだ行っていない。

偏光素子の性能評価や光源の偏光評価には回転検光子法がしばしば用いられる。そこで、今回新た に回転検光子型の偏光解析装置を開発したのでその設計概念や特徴等について報告する。

2. 回転検光子法

回転検光子型解析装置は偏光素子の性能評価及び軟X線光源の偏光評価を目的に設計・開発された。これを実現するには回転検光子法が用いられる。図 1(a)に反射型の回転検光子の概略図を示す。回転検光子は、偏光子(検光子)と検出器から成る(以下、回転検光子ユニット)。まず、検光子の入射角(ω)と検出角(θ を $\theta \cong 2\omega$ に固定した状態でユニットの方位角(η)を光軸周りに1回転させた時に得られる検光子の反射率(透過型の場合は透過率)を計測する($I(\eta)$)。もし、光が完全な円偏光または非偏光であれば得られるプロファイルは方位角 η に依存しない。一方、楕円偏光(直線偏光を含む)であれば $\cos^2\eta$ 型のプロファイルを得る。これに、Malusの法則で定義されるフィッティング関数

$$I(\eta) = (I_{\text{max}} - I_{\text{min}})\cos^2(\eta - \delta) + I_{\text{min}}$$
(1)

を適用することでコントラストファクタ(C)

$$C = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \tag{2}$$

を得る。ここで、 $I_{max} \ge I_{min}$ は信号強度の最大値及び最小値を表している。 $\eta = \delta$ の時、 $I(\delta) = I_{max} \ge \delta$ なり、光の偏光楕円の長軸の傾きが分かる。検光子の偏光能(P)が既知であれば

$$P_{\rm L} = C/P \tag{3}$$

によって光の直線偏光度(P_L)が直ちに与えられる。一方、P が未知であっても、P_L が既知であれば(3)からPを決定することが出来る。

新たに偏光素子を開発する場合、検光子も新規に開発しなければならない。したがって、検光 子の偏光能 P は未知である。この場合、図 1(b)に示すように、もう 1 枚の偏光素子を検光子の上 流側にマウントする必要がある(図は反射型を表している)。これが偏光子なら、偏光子の方位角 (χ) を $\chi = \delta \pm 45^{\circ}$ とし、回転検光子法を実施することで入射光の $P_{\rm L}$ と δ 、及び偏光子と検光子の それぞれの偏光能が得られる。一方、移相子の場合、いくつかの χ について回転検光子法を実施し、 フィッティング関数を適用することで移相子の P、位相変化量(Δ) を決定することができる。こ の時、入射光の円偏光度($P_{\rm C}$)、楕円率角(ε) も同時に決定される。



Fig. 1 Schematics of the rotating-analyzer method (a) and optical configuration for characterization of all polarization parameters of light (b).

い。このことを念頭において回転検光子型解析装置の設計を行った。

3. 回転検光子型解析装置

3.1 装置の仕様

回転検光子型解析装置は、真空チェンバー、偏光解析ユニット、測定・制御プログラム、装置架台等からなる。図2に偏光解析ユニットの概略図を示す。これは回転検光子ユニットと移相子ユニットから成る。上述のように、偏光解析を実施する上で必要な駆動軸は6軸であり、その各ユニットに搭載されている駆動軸は下記の通りである。

回転検光子ユニット

- 検光子の入射角(ω): 検光子の入射角を走査するための軸で、自動ステージ(KS401-60、駿河精機)により駆動させる。駆動範囲は 360°であるが、測定時には-90°から+90°までを利用する。
- 検出器用アーム角(検出角)(θ): 検出器の角度を走査するための軸で、自動ステージ(KS401-60、 駿河精機)により駆動させる。駆動範囲は-90°から+128°である。ω 軸とは独立に駆動させることが出来 る。
- 方位角(η): 検光子の方位角を走査するための軸で、自動ステージ(KS401-60、駿河精機)により駆動させる。 駆動範囲は 360°である。 ωとθを固定した状態でηを光軸の周りに 360°走査することができる(回転検光子法)。

移相子ユニット

- 移相子(または偏光子)の入射角(φ):移相子(または偏光子)の入射角を走査するための軸で、自動 ステージ(KS401-60、駿河精機)により駆動させる。駆動範囲は 360°であるが、測定時には-90°から +90°までを利用する。
- 検光子ユニット用アーム角(ψ):移相子の入射角の回転軸を中心に回転検光子ユニットの位置を変化させるための軸で、自動ステージ(KS401-60、駿河精機)により行う。駆動範囲は-90°から+145°である。検出器用アーム角θ=0°の時、φとψを用いて通常の反射率測定も可能である。
- 方位角(χ):移相子ユニットの方位角を走査するための軸で、自動ステージ(KS402-100、駿河精機) により駆動させる。駆動範囲は 360°ある。 χ 軸と η 軸はそれぞれ独立に駆動させることができるが、回転 検光子ユニットはアームと一体であるため χ 軸を変化させると回転検光子ユニットの方位角も同時に変 化する。また、検光子を取り出し、検出器用アーム角を $\theta = 0°$ 、検光子ユニット用アーム角を $\psi \cong 2\phi$ とす ると、 χ 軸を使った回転検光子法も実施できる。

この他、検光子の高さ(Z)、移相子の高さ(H)、偏光解析ユニットのチルト(T)を光軸調整用駆動軸として

有し、クロスローラガイド自 動ステージにより駆動させ ることが出来るようにした (ZとH軸はKS101-20、T 軸はKX0830C-Lで、どち らも駿河精機製)。これら の駆動軸(全9軸)は全て 独立に駆動制御が可能で ある。

試料ホルダ

各ユニットには検光子及 び移相子(または偏光子) を1個ずつマウントできる。 最大試料寸法は20mm x 10mm x 5mmでスペーサ により試料の厚さを調整す ることが出来るようにした。



Fig. 2 Schematic of the polarization analysis unit which consists of a phase shifter unit and a rotating-analyzer unit. It has nine driving shafts which can be independently controlled.

移相子(偏光子)用ホルダと検光子用ホルダは共通仕様である。試料ホルダのハウジングにはガイドを設け 直線導入機を用いて試料の出し入れが容易にできるようにした。

検出器

検出器は高ゲインかつ低偏光依存であることが要求される。また、角度走査範囲を広げ(装置のフレーム との干渉を避ける)、自動ステージへの荷重負荷を低減させるためには検出器は小型・軽量であることも求 められる。そこで、外形 \$18 mm のマイクロチャンネルプレート(MCP)アッセンブリ(F4655CsI、浜松ホトニク ス)を検出器として採用した。有効検出領域は \$14.5 mm、MCP の枚数は 2 段である。

ピンホール機構

χ軸及びη軸の上に可変ピンホール機構を設けた。これは高軸調整及び入射光の切り出しに用いる。ピンホールはφ1 mm、5 mm、10 mm の3 種類用意した。

自動ステージ用接続ケーブル

自動ステージ1 台につき、モータ線 5 本、センサ関連(リミットセンサ、原点センサ、及びその電源)5 本、 フレームグランド1 本の計 11 本のリード線がある。これらはフレームグランドを除く10 本を1 組として真空対 応ケーブルで多ピンフィードスルーに接続できるようにした。大気側でモータリード線とセンサ用リード線は それぞれをステッピングモータドライバ(H583 及び H718、メレック)及びステッピングモータコントローラ (PM16C-04、ツジ電子)に接続される。

制御システム

ステッピングモータコントローラの制御は GPIB-USB-B(ナショナルインスツルメンツ)を介して制御用ノートパソコンにより行う。全ての自動ステージの制御はリモートにて行う。また、MCP からの出力は電流計 (R8252、アドバンテスト)で計測され、GPIB ケーブルを介してノートパソコンにデータを取り込む。これらの 制御システムは LabVIEW(ナショナルインスツルメンツ)を用いて現在開発中である。

3.2 装置の特徴

回転検光子型解析装置は、偏光別反射率・透過率測定、偏光測定、偏光別ロッキングカーブ測定を行う ことが出来る。偏光測定で可能な偏光素子の光学配置は、①反射—反射、②透過—反射、③反射—透過、 ④透過—透過の4通りある。上述の雲母結晶の偏光特性を評価する場合、移相子が透過型、検光子が反 射型であるため②の光学系を用いる。

回転検光子ユニットでロッキングカーブ測定が出来ること、すなわち、全ての駆動軸が独立に制御できる ということは雲母等の結晶を検光子として用いる際に有用である。なぜなら、検光子の反射半値幅は雲母 結晶の場合、1 keV 近傍で約 0.1°と狭く、また、s 偏光とp 偏光ではピーク位置が僅かに異なる[6]。そのた め、ロッキングカーブを測定することで最適化条件を見つけることが可能になる。

現在、各駆動軸の調整作業やそれらの制御プログラム、測定データの入出力などを行うためのプログラムを開発中であるが、これが完了し次第、立命館大学 SR センターに設置している軟X線ビームライン BL-11 に接続し、雲母結晶偏光子や多層膜偏光素子等の各種偏光素子の性能評価や同ビームラインが カバーしている軟X線光源の偏光測定を開始する予定である。

参考文献

- H. Kimura, T. Hirono, Y. Tamenori, Y. Saitoh, N. N. Salashchenko, and T. Ishikawa, J. Electr. Spectr. Relat. Phenom. 144-147, pp.1079-1081 (2005).
- [2] M. Suzuki, N. Kawamura, M. Mizumaki, A. Urata, H. Maruyama, S. Goto, and T. Ishikawa, Jpn. J. Appl. Phys. 37, pp.L1488-L1490 (1988).
- [3] H. Kimura, T. Hirono, T. Miyahara, M. Yamamoto, and T. Ishikawa, AIP Conf. Proc. 705, pp.537-540 (2004).
- [4] T. Imazono, T. Hirono, H. Kimura, Y. Saitoh, Y. Muramatsu, M. Ishino, M. Koike, and K. Sano, Rev. Sci. Instrum. 76, p.126106 (2005).
- [5] T. Imazono and M. Koike, AIP Conf. Proc. 879, pp.690-693 (2007).
- [6] T. Imazono, T. Hirono, H. Kimura, Y. Saitoh, Y. Muramatsu, M. Ishino, M. Koike, and K. Sano, Rev. Sci. Instrum. 76, p.023104 (2005).

4.27 高 Yb2O3 添加ガラスの分光特性 Spectroscopic properties of high Yb2O3 doping glass

 へ保 亮一、 加道 雅孝、 杉山 僚、 小池 雅人
 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

 Ryouichi KUBO, masataka KADO, Akira SUGIYAMA, masato KOIKE
 Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency,

We have been developing Yb³⁺ -doped laser glass for next ultra short pulse laser amplifier. We measured absorption and emission spectra of New Yb³⁺ -doped phosphate glass and evaluated cross section and absorption coefficient. New Yb³⁺ -doped phosphate glass have twice large absorption coefficient of QX/Yb glass.

Keywords: Yb³⁺, Yb[:]glass, phosphate glass, spectral property, solid-state laser material

1.はじめに

Yb³⁺を添加したレーザー媒質は、上下2つの単純なエネルギー準位(2F_{5/2、}2F_{7/2})を持つため EAS(Excited State Absorption)による励起エネルギーの損失が無く、また励起波長とレーザー波 長が近いために量子効率が高い。 高出力 InGaAs 半導体レーザーの発振波長帯に比較的広い吸 収帯をもつために半導体レーザーによる励起が容易である。 更に、比較的広い蛍光スペクトル を持ち、蛍光寿命も長いことからエネルギー蓄積型の超短パルス増幅媒質として有用と考えられ る。 しかし、結晶を母材としたものは大きく品質のよいものを育成させることが困難である。 更に、フェムト秒領域の増幅においては結晶の増幅帯域幅では十分とはいえずゲインナローイン グが起こり、パルス幅が広がってしまう^[1]。

我々は超短パルス増幅媒質として Yb³⁺を添加したガラスに着目して研究を進めてきた。 Yb3+ を添加したレーザーガラスは不均一広がりにより広い蛍光、吸収スペクトルを持つ。更に 比較的長い蛍光寿命(~2ms)を持つ^[2-3]。これらの特徴はエネルギー蓄積型の超短パルス増幅に対 して最適であると考えられる。更に、母材がガラスであるために大きさについての制限は無いと 考えてよい。

しかし Yb³⁺を添加したレーザーガラスは広い吸収、蛍光スペクトルを有する反面、吸収係数が 小さいため、効率のよい励起を行うためには励起光の吸収長を長くする必要がある。また熱伝導 率が結晶と比較した場合一桁小さいためガラス内部の発熱をいかに排出するかが問題となる。

これらの問題を解決するためには光学系の工夫と共に、レーザー媒質側では吸収係数を大きく し、吸収長を短くすることによって速やかな熱の排出ができるようにする必要がある。

今回、我々は新しい燐酸系ガラスに Yb³⁺を添加すると大きな吸収係数を持つことに気づいた。 本論文では新たに作成した燐酸系ガラスと市販されている QX/Yb ガラスの吸収、蛍光スペクト ルの測定結果を示す。

2.Yb ガラスの吸収、蛍光断面積

測定に用いたガラスの形状は新しいガラスは 5mm×10mm×0.5mmt、QX/Yb ガラスは 6mm×6mm×0.5mmt である。両サンプルは薄くすることによって 975nm 付近での再吸収の影響を 極力小さくしてある。蛍光断面積の測定の際には励起光源として OptoBright 社製の 940nm レー ザーダイオードを用いた。Fig.1 に測定した新しい Yb 燐酸系ガラス、Fig.2 に QX/Yb ガラスの吸 収、蛍光断面積を示す。



Figure.1 Absorption and Emission Cross Section of New Yb:phosphate glass at temperature 15K (a), 300K (b)



Figure.1 Absorption and Emission Cross Section of QX/Yb glass at temperature 15K (a), 300K (b)

3.まとめ

測定結果と Yb³⁺の添加量、比重、吸収係数を Table.1 にまとめる。 従来の QX/Yb ガラスと比較して比重が大きいため常温での吸収係数が約2倍となり、単純なエンドポンプ方式を仮定した場合同じ量の励起光を吸収させるためには QX/Yb ガラスの 1/2 の厚さでよいこととなる。また、新しいガラスは温度による吸収、蛍光断面積の変化が小さいため媒質の温度変化によるレーザー動作への影響が少ないものと考えられる。

今後、実際にレーザー動作をさせての発振特性、増幅特性についての評価を行っていく予定で ある。

	Yb_2O_3 Concentration	density	Absorption Cross Section	Absorption Coeficient	Emission Cross Section
New Yb glass (15K)	20wt%	4.76(g/cc)	1.55 × 10 ⁻²⁰ (cm2)	42.3 (cm ⁻¹)	$7.72 \times 20^{-21} (\text{cm}^2)$
(300K)			$1.38 \times 10^{-20} (cm2)$	39.2(cm ⁻¹)	$7.52 \times 20^{-21} (\text{cm}^2)$
QX/Yb glass (15K)	19wt%	2.81(g/cc)	$2.27 \times 10^{-20} (\text{cm}2)$	37.1(cm ⁻¹)	$8.12 \times 10^{-21} (\text{cm}^2)$
(300K)			$1.26 \times 10^{-20} (cm2)$	20.3 (cm ⁻¹)	$4.09 \times 10^{-21} (\text{cm}^2)$

Table.1 Propaties of New Yb glass and QX/Yb glass

4.参考文献

[1] S. Keichi, H. Kazuhiro, M. Shinichi, T. Tetsuji, K. Sakae, K. Takao, Technical report of IEICE. LQE, Vol.105, No.52(2005) pp. 21-24

[2] R. Koch, W.A. Clarkson, D.C. Hat-ma, S. Jiang b, M.J. Myers, D. Rhonehouse, S.J. Hamlin,U. Griebner, H. Schijnnagel, Opt Comm, 134(1997) pp.175-178.

[3] Data sheet 'QX laser glasses', Kigre Inc., 1996.

4.28 Fabrication of SiN-membrane-based zirconium filter for separating coherent EUV beam from collinear visible laser beams

Hisataka TAKENAKA*, Masatoshi HATAYAMA*, Tadayuki OHCHI*, and Eric Gullikson**

* NTT Advanced technology cooperation

162 Shirakata Tokai, Ibaraki, 319-1193, Japan

** Lawrence Berkeley National Laboratory

2-400, 1 Cylcotron Road, Berkeley, California 94720

A new EUV filter for separating coherent EUV beam from colliner visible laser beam has been demonstrated. This EUV filter has freestanding zirconium central part and SiN-membrane surrounding part, and the transmitted EUV and visble beams are separated each other as the EUV beam inside of the annular visible beam. This filter will be useful for varias applications such as EUV / visible pulses cross correlation, EUV / visible lights interferometry, and attosecond pulse duration measurement.

Keywords: EUV filter, Thin foil, Ultrashot pulse

1. はじめに

近年、EUV 光の高輝度化と短パルス化に関する研究が目覚しい速度で進展しており、特にフェムト秒 レーザー光を用いた高次高調波発生研究の進展により、EUV 領域においてアト秒パルスの発生と計測、 非線形光学現象の観測などが行われるようになっている[1-3]。また EUV 光用の多層膜反射鏡の開発も 進展していて、さまざまな波長で広帯域かつ高反射率を持つものが発表されている[4-6]。しかし EUV 光 を可視光や不必要な他の EUV 光から分離するためのフィルタの高品質化、高機能化に関する研究はほ とんど報告されていない。従来から用いられているメッシュやリングなどで金属薄膜を液中ですくいあげる 手法で作製するフィルタは、すくいあげる際に金属薄膜にたわみやしわが発生することを回避することが 困難であった。更に、メッシュですくいあげたものについては、透過光のプロファイルにメッシュの影が入 ってしまうことが問題とされ、リングですくいあげたものについては、大面積化に問題があった。

フェムト秒レーザー光を用いた高次高調波発生による EUV 光のパルス幅は、発生条件を最適化する ことによりアト秒パルスに達し、このパルスを用いることで、これまでに観測されていない超高速の現象が 観測されている[3,7]。しかしながら、この EUV 光は発生に用いたフェムト秒レーザー光や低次の紫外光 と共軸で伝播するため、利用のためには選択的に波長を透過させる EUV フィルタが不可欠である。特に、 EUV 光と可視光の相互作用実験を行うためには、共軸で伝播するそれぞれの光を空間的に分離する機 能を EUV フィルタに持たせなくてはならない。Krausz らは、中央に直径数 mm の穴を開けたニトロセルロ ース膜に、ジルコニウム膜をすくいあげた金属リングを接着剤で貼り付けた素子をフィルタとして用い EUV 光と可視光の分離を行い、それぞれの光の相互相関を取ることにより EUV 光のパルス幅の測定を 行った[1,8]。図 1 は彼らの用いたフィルタの模式図である。しかしながらこの素子にはニトロセルロース膜 の不均一性、ジルコニウム膜のたわみやしわ、金属リングのニトロセルロース膜への貼り付け不均一性な ど、EUV 光の時間幅測定精度を低下させる要因が含まれていたと推測される。 そこで、我々は、ニトロセルロース膜の代わりに均一性の高い SiN メンブレンを用い、マイクロファブリケ ーション技術を用い SiN メンブレン上に直接ジルコニウムの自立薄膜パタンを形成することにより金属リン グの貼り付けによる不均一性を排除し、またジルコニウム膜の応力を制御することによりたわみやしわをな くした EUV フィルタの開発を行った。この新しいフィルタは EUV 光と可視光の相互相関実験に十分適用 しうると考えられる。



[図 1] EUV フィルタ素子の模式図

2. EUV フィルタの作製

この EUV フィルタの作製のために、Krauszらの実験系を参考にし、各パラメータを設計した。高次高調 波発生に用いる可視光の中心波長は 770 nm、発生する EUV 光の中心波長は 13.1 nm であるため、SiN メンブレンの厚さを 770 nm で透過率が最大になるよう 190 nm に、また EUV 光の透過する中心部のジル コニウム厚さを 200 nm とした。それぞれの膜の期待される透過率は図 2 のとおりである。また彼らのそれ ぞれのビーム径から自立ジルコニウム部の大きさを φ 2 mm、SiN メンブレンの大きさを 10 mm 角とした。



[図 2] EUV フィルタ透過率計算値。(a)ジルコニウム部、(b)SiN 部

EUV フィルタの作製方法を図 3 に示す。まず、Si(100)基板の両面に減圧化学気相成長法 (Low-Pressure Chemical Vapor Deposition; LP-CVD)により 200 nm の SiN 膜を形成する(図 3(a))。次に、 紫外線露光工程により、Si 基板の裏面側中央部に 10 mm 角の感光性膜パタンを形成し(図 3(b))、この 感光性膜をマスクとして SiN 膜を CF4 ガスによりエッチングする(図 3(c))。さらに、感光性膜を取り除いた 後、SiN 膜をマスクとして Si 基板を裏面から KOH 水溶液でエッチングし、SiN メンブレンを形成する(図 3(d))。メンブレン表面に ϕ 3 mm の感光性パタンを紫外線露光工程により形成し(図 3(e))、厚さ 100 nm のジルコニウム膜をマグネトロンスパッタ法により形成する(図 3(f))。その後、感光性膜を除去し、ジルコ ニウム膜をリフトオフすることによりメンブレン中央部に φ 3 mm のジルコニウム薄膜が形成される(図 3(g))。 最後に、メンブレンの裏面から φ 2 mm だけ SiN 膜をドライエッチングで除去し、中央部は自立したジルコ ニウム膜、周辺部は SiN メンブレンからなるフィルタ素子が作製される(図 3(h))。



[図 3] EUV フィルタの作製工程。(a)SiN 膜形成、(b)裏面感光性パタン形成、
 (c)裏面 SiN 窓加工、(d)Si エッチング加工、(e)表面感光性パタン形成、
 (f)ジルコニウム膜形成、(g)リフトオフ加工、(h)裏面 SiN 穴あけ加工。

図 4 は作製されたフィルタの写真である。弱い引っ張り応力を有 するように SiN 膜、ジルコニウム膜を形成している。また、すくい上げ 工程や接着の工程を持たないため、それぞれの膜にはたわみやし わがなく、また Si 基板の平滑性を引き継いでいる。



[図 4] 作製した EUV フィルタ

3. 透過率の測定

作製したフィルタの透過率を、中央の自立ジルコニウム部は Advanced Light Source の Beam Line 6.3.2 で、周辺の SiN メンブレン部は分光光度計でそれぞれ測定した[8]。図 5 にそれぞれの透過率の測定結果を計算値と比較して示すように、中央のジルコニウム部は波長 13.1 nmの EUV 光に対して 40%以上の、周辺の SiN 部は波長 770 nm の可視光に対して 90%以上の透過率が得られた。



[図 2] EUV フィルタの透過率測定結果。(a)ジルコニウム部、(b)SiN 部

4. まとめ

EUV 光を共軸で伝播する可視光から空間的に分離するためのフィルタを開発し、その透過率の測定 を行った。従来のニトロセルロース製のものと比較してたわみやしわがなく、面の平滑なフィルタの作製に 成功し、中央のジルコニウム部は13.1 nm の EUV 光に対して 40%以上、周辺の SiN 部は 770 nm の可 視光に対して 90%以上の透過率を有していた。このフィルタはアト秒時間分解能を持つような高次高調 波を用いた相互相関実験などに適用の可能性があり、EUV 領域での非線形現象の観測など新たな EUV 光科学への応用が期待される。

参考文献

- [1] M. Drescher et. al., Science 291, p.1923 (2001).
- [2] Y. Nabekawa et. al., Phys. Rev. Lett. 96, p.083901 (2006).
- [3] Y. Kobayashi et. al., Opt. Lett. 23, p.64 (1998).
- [4] H. Takenaka et. al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 144-147, p.1047 (2005).
- [5] J. Gautier, et. al., Appl. Opt. 44, p.384 (2005).
- [6] Yu.A. Uspenskii et. al., Opt. Lett. 23, p.771 (1998).
- [7] N. A. Papadogiannis et. al., Phys. Rev. Lett. 90, p.133902 (2003).
- [8] R. Kienberger et. al., Appl. Phys. B 74, p.3 (2002).

This is a blank page.

付録. 出席者名簿

Appendix Participants List

This is a blank page.

氏名	所属(平成19年6月時点)
久保 文敬	(株)フジクラ
鳥谷 智晶	(株)フジクラ
室内 直二	(株)島津製作所
<u>山口 兵一</u> 毎 井 浩行	(株) 自注制作所民生品部開発課
	(体)自注制作品民生日報開発理工学デバイス相当
<u> </u>	
果一時純	
加滕 見	(株)豊田中央研究所情報・エレクトロニクス分野光テハイス・システム研究室
稿本 誠司	(財)関西文化字術研究都市推進機構
大浦 俊彦	(財)京都高度技術研究所産学連携事業部京都ナノテククラスター本部
松浦 祥次郎	(財)原子力安全研究協会
大石 祐嗣	(財)電力中央研究所
Alexei Zhidkov	(財)電力中央研究所電力技術研究所
大野 安里	(狆)利学技術振興機構
Nowak Krzysztof	ELIVA Hirateuka R&D Center
NOWAR IN 2932101	Institut für Lasor, und Plasmanhysik, Heinrich Heine Universität Düsselderf
Oswald Willi	nisului iui Lasei- uliu Flasiliapilysik, Heilillül-Heilie-Oliiveisilai Dusseluoli,
11 1 6 4	Germany
竹中 久貴	NTTアドバンステクノロジ(株)
Andrei V. Brantov	P.N.Lebedev Physical Institute, Russian Academy of Science
山崎 誠一郎	カワサキプラントシステムズ(株)
遠藤 彰	ギガフォトン(株)
岸本馨	タレスレーザー(株)
<u>//// [</u> 百瀬 圭介	タレスレーザー(株)
	· 使用光州利学技術院光量子利学研究所
DU-Ryeong Ru 四村 后宝	科画ル川科ナ牧州院ル里丁科ナッカ川 古柳ギ門社領集大如志如本社はいけした本里
	京御利闻社福耒平即用即又社りいは心は又向 古初十労ル労取免託
<u> 野田 早</u>	尿郁入子化子研究所 左直士受士受防害受罚应利
難波!!	
<u>滕井 貞天</u>	川崎重工業(株)技術研究所光技術研究部
森本 巌	川崎重工業(株)技術研究所光技術研究部研究一課
菜嶋 茂喜	大阪市立大学大学院工学研究科
井澤 靖和	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
猿倉 信彦	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
岡野 泰彬	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
河仲 準二	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
古川 裕介	大阪大学レーザーエネルギー学研究ヤンター
<u>高端 密支</u>	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
而材 诸阳	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
<u> 〒ふ エハ</u> Fp 畑	大阪大子レーダーエイルマーナリスとノメート ナ阪ナ学しーザーエクリギー学研究センター
<u> </u>	八阪八ナレーリーエイルイーチザカビノンー 土阪土営」 ギーエクルギー営工内という
<u>膝半 明</u> 共伝 工実	八阪八子レーリーエイルヤー子研究センター
秋行 止意 ちちちょう おうちょう おうしょう しょうしょう しょうしん しょうしん しょうしん しんしょう しょう しんしょう しんしょ しょ しんしょ しょ し	人阪人子レーサーエイルヤー子研究センター
	大阪大学レーサーエネルキー学研究センター
近滕 公旧	
<u>川下 洋輔</u>	筑波大字大字院数埋物質科字研究科
佐野 一雄	島津エミット(株)
並河 一道	東京学芸大学自然科学系
山内 薫	東京大学大学院理学研究科
寺内 正己	東北大学多元物質科学研究所
高島 弘	奈良女子大学理学部
保智己	奈良女子大学理学部
<u>北野</u> 美穂	奈良女子大学理学部
河口 雅弘	ハ(ハ) ハー・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・
<u>小山 :</u>	日本アドバンストテクノロジー(株)
<u>心巴 口沿</u> 市駅 正文	ロホノー・シンクトノノノビン (11/) ロホマドバンフトテクノロジー(体) 明声支社
<u> 中野 正义</u> //	ロキナンジェクロンで(杯) 月四又仁
化滕	日本エノンーヤリンクセナル(株)
<u>水内 盛士</u>	
	日本放送協会京都放送局字研都市報道室
高橋 宏典	浜松ホトニクス(株)中央研究所第11研究室
祝原 勇治	富士通関西中部ネットテック(株)

原子力機構外からの出席者

	氏名	所属(平成19年6月時点)
野田	健治	理事
月森	和之	次世代原子カシステム研究開発部門FBRプラント技術ユニットプラント信頼性グルー プ
増住	考志	次世代原子カシステム研究開発部門FBRプラント技術ユニットプラント信頼性グルー プ
土井	基尾	次世代原子カシステム研究開発部門FBRプラント技術ユニットプラント信頼性グルー プ
長島	章	関西光科学研究所
勢納	敏雄	関西光科学研究所
宮崎	有史	関西光科学研究所
伏尾	章功	関西光科学研究所
田中	綾子	関西光科学研究所プロジェクト推進室
田上	学	関西光科学研究所プロジェクト推進室
金沢	修平	関西光科学研究所プロジェクト推進室
近藤	修司	関西光科学研究所プロジェクト推進室
加藤	義章	量子ビーム応用研究部門
田島	俊樹	量子ビーム応用研究部門
小池:	雅人	量子ビーム応用研究部門
横山	淳	量子ビーム応用研究部門
大道	博行	量子ビーム応用研究部門
菖蒲	敬久	量子ビーム応用研究部門放射光科学研究ユニット放射光技術開発グループ
河野	秀俊	量子ビーム応用研究部門中性子生命科学ユニット生体分子シミュレーション研究グ ループ
木村	豊秋	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
永島	圭介	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X線レーザー利用研究グループ
岸本	牧	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X線レーザー利用研究グ ループ
河内	哲哉	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X線レーザー利用研究グ ループ
長谷」	川 登	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X線レーザー利用研究グ ループ
越智	義浩	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X線レーザー利用研究グ ループ
錦野	将元	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X線レーザー利用研究グ ループ
山谷	寛	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X線レーザー利用研究グ ループ
國枝	雄一	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X線レーザー利用研究グ ループ
山内	俊彦	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レーザー物質制御研究グ ループ
西村	昭彦	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レーザー物質制御研究グ ループ
横山	啓一	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レーザー物質制御研究グ ループ
大場	弘則	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レーザー物質制御研究グ ループ
村上	洋	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レーザー物質制御研究グ ループ

原子力機構の出席者

氏名	所属(平成19年6月時点)
板倉 隆二	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レーザー物質制御研究グ ループ
島田 幸洋	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レーザー物質制御研究グ ループ
山田 秀尚	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レーザー物質制御研究グ ループ
野際 公宏	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レーザー物質制御研究グ ループ
杉田 明宏	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レーザー物質制御研究グ ループ
中垣 圭太	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レーザー物質制御研究グ ループ
岡 潔	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高強度利用研究グループ
	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高強度利用研究グループ
小倉浩一	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高強度利用研究グループ
包坂 明人	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高強度利用研究グループ
<u> </u>	<u>単子ビーム応用研究部門光量子ビーム利用研究コニット高強度利用研究グループ</u>
而内 法主子	
	<u>重了に 云応用明光即日光重了に 云桁用明光ユーア間度反桁用明光アル ノ</u>
Direchles	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高強度利用研究グループ
中开 吾奉	重チビーム応用研究部門充重チビーム利用研究ユニット高強度利用研究クルーノ
浅井 利紀	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高強度利用研究グループ
余語 寛文	量子ヒーム応用研究部門光量子ヒーム利用研究ユニット高強度利用研究クルーフ
馬景龍	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高強度利用研究グループ
Sergei V. Bulanov	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レーザー電子加速研究グ ループ
静間 俊行	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レーザー電子加速研究グ ループ
小瀧 秀行	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レーザー電子加速研究グ ループ
神門 正城	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レーザー電子加速研究グ ループ
本間 隆之	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レーザー電子加速研究グ ループ
福田 祐仁	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レーザー電子加速研究グ ループ
大東 出	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レーザー電子加速研究グ ループ
陳黎明	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レーザー電子加速研究グ ループ
川瀬 啓悟	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レーザー電子加速研究グ ループ
亀島 敬	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レーザー電子加速研究グ ループ
加道 雅孝	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先端光量子機能デバイス開 発研究グループ
石野 雅彦	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先端光量子機能デバイス開 発研究グループ
今園 孝志	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先端光量子機能デバイス開 発研究グループ
久保 亮一	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先端光量子機能デバイス開 発研究グループ

氏名	所属(平成19年6月時点)	
佐々木 明	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光量子シミュレーション研究 グループ	
森林 健悟	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光量子シミュレーション研究 グループ	
守田 利昌	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光量子シミュレーション研究 グループ	
乙部 智仁	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光量子シミュレーション研究 グループ	
青山 誠	量子ビーム応用研究部門先進光源開発研究ユニッ高強度レーザー開発研究グルー プ	
辻 公一	量子ビーム応用研究部門先進光源開発研究ユニッ高強度レーザー開発研究グルー プ	
沢村 勝	量子ビーム応用研究部門先進光源開発研究ユニットERL光量子源開発研究グループ	
飯島 北斗	量子ビーム応用研究部門先進光源開発研究ユニットERL光量子源開発研究グループ	
岡崎 良子	(独)科学技術振興機構CREST	
河西 俊一	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
栗原 和久	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
石黒 正幸	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
原山 清香	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
小林 純	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
黒坂 桂子	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
炭谷 利佳	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
辻 美保	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
伊藤 幸代	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
大賀 美也子	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
山口 美保	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
橋本 健吾	量子ビーム応用研究部門研究推進室	
表1.	SI 基本单位	<u>」</u>
-------	---------	----------
甘木昌	SI 基本]	単位
本平里	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	А
熱力学温度	ケルビン	Κ
物質量	モル	mol
光 度	カンデラ	cd

如去早	SI 基本単位			
和1.12.里	名称	記号		
面積	平方メートル	m ²		
体積	立法メートル	m ³		
速 さ , 速 度	メートル毎秒	m/s		
加 速 度	メートル毎秒毎秒	m/s^2		
波 数	毎 メ ー ト ル	m-1		
密度(質量密度)	キログラム毎立法メートル	kg/m^3		
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m ³ /kg		
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2		
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m		
(物質量の) 濃度	モル毎立方メートル	$mo1/m^3$		
輝 度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2		
屈 折 率	(数の) 1	1		

表5. SI 接頭語

A. 0. 01 夜頭阳									
乗数	接頭語 記号		乗数	接頭語	記号				
10^{24}	Э 9	Y	10^{-1}	デシ	d				
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	с				
10^{18}	エクサ	Е	10^{-3}	ミリ	m				
10^{15}	ペタ	Р	10^{-6}	マイクロ	μ				
10^{12}	テラ	Т	10^{-9}	ナノ	n				
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	р				
10^{6}	メガ	М	10^{-15}	フェムト	f				
10^{3}	+ 1	k	10^{-18}	アト	а				
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z				
10 ¹	デ カ	da	10^{-24}	ヨクト	у				

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 SI 組立畄位

			31 제고 푸끄	
組立量	夕敌	記早	他のSI単位による	SI基本単位による
	2日 1小	記与	表し方	表し方
平 面 角	ラジアン ^(a)	rad		$\mathbf{m} \cdot \mathbf{m}^{-1} = 1^{(b)}$
立 体 角	ステラジアン ^(a)	$\mathrm{sr}^{(\mathrm{c})}$		$m^2 \cdot m^{-2} = 1^{(b)}$
周 波 数	、ヘルツ	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	Ν		$m \cdot kg \cdot s^{-2}$
压力, 応力	パスカル	Pa	N/m^2	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
エネルギー,仕事,熱量	ジュール	J	N•m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
工率,放射束	ワット	W	J/s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
電荷,電気量	フーロン	С		s•A
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^3 \cdot A^2$
磁東	ウェーバ	Wb	V•s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$
磁束密度	テスラ	Т	Wb/m^2	$kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C		K
光東	ルーメン	1m	$cd \cdot sr^{(c)}$	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot cd = cd$
照度	ルクス	1x	1m/m^2	$m^2 \cdot m^{-4} \cdot cd = m^{-2} \cdot cd$
(放射性核種の)放射能	ベクレル	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 質量エネル	HIZ	Cu	T/lza	22
ギー分与, カーマ		Gy	J/ Kg	m•s
線量当量,周辺線量当			4	
量,方向性線量当量,個	シーベルト	Sv	J/kg	m ² • s ⁻²
人禄量当量, 組織線量当				

(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の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℃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

	SI 組立単位			
組工重	名称	記号	SI 基本単位による表し方	
粘度	モパスカル 秒	Pa•s	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$	
力のモーメント	ニュートンメートル	N•m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$	
表 面 張 ナ	リニュートン毎メートル	N/m	kg • s ⁻²	
角 速 厚	ミラジアン毎秒	rad/s	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1} = s^{-1}$	
角 加 速 厚	E ラジアン毎平方秒	rad/s^2	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2} = s^{-2}$	
熱流密度,放射照度	E ワット毎平方メートル	W/m^2	kg • s ⁻³	
熱容量,エントロピー	- ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$	
質量熱容量(比熱容量)	ジュール毎キログラム 毎ケルビン	$J/(kg \cdot K)$	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$	
質量エネルギー		x (1	2 _2 _1	
(比エネルギー)	シュール毎キロクフム	J/kg	m ² • s ² • K ¹	
熱伝導率	³ ワット毎メートル毎ケ ルビン	₩/(m•K)	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{K}^{-1}$	
体積エネルギー	ジュール毎立方メート ル	J/m^3	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$	
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{A}^{-1}$	
体 積 電 荷	クーロン毎立方メート ル	C/m^3	$m^{-3} \cdot s \cdot A$	
電気変位	クーロン毎平方メート ル	C/m^2	$m^{-2} \cdot s \cdot A$	
誘 電 🖣	「ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$	
透磁率	国ヘンリー毎メートル	H/m	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-2} \cdot \mathbf{A}^{-2}$	
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$	
モルエントロピー	ジュール毎モル毎ケル	T (1 12)	2211	
モル熱容量	L ビン	J/(mol·K)	m [*] •kg•s [*] •K [*] •mol [*]	
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1} \cdot s \cdot A$	
吸収線量率	ミグレイ 毎秒	Gy/s	$m^{2} \cdot s^{-3}$	
放 射 強 厚	E ワット毎ステラジアン	W/sr	$\mathbf{m}^4 \cdot \mathbf{m}^{-2} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} = \mathbf{m}^2 \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3}$	
放射輝 厚	リット毎平方メートル	$W/(m^2 \cdot sr)$	$\mathbf{m}^2 \cdot \mathbf{m}^{-2} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} = \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3}$	

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	0	$1^{\circ} = (\pi / 180)$ rad
分	,	$1' = (1/60)^{\circ} = (\pi/10800)$ rad
秒	"	1" = $(1/60)$ ' = $(\pi/648000)$ rad
リットル	1, L	$11=1 \text{ dm}^3=10^{-3}\text{m}^3$
トン	t	1t=10 ³ kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	В	1B=(1/2)1n10(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	$1 \text{eV}=1.60217733(49) \times 10^{-19} \text{J}$				
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg				
天 文 単 位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 ¹¹ 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

	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		1 海里=1852m				
1	ツ	F		1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s				
P		ル	а	$1 \text{ a=} 1 \text{ dam}^2 = 10^2 \text{m}^2$				
ヘク	ター	ル	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²				
バ	-	ル	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa				
オンク	「ストロ・	- 4	Å	1 Å=0. 1nm=10 ⁻¹⁰ m				
バ	-	\sim	b	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=10^{-28} \text{m}^2$				

表9 固有の名称を含むCGS組立単位

	A.J. 固有974标准占包605福立半位							
	名称		記号	SI 単位であらわされる数値				
工	N	グ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J				
ダ	イ	\sim	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N				
ポ	ア	ズ	Р	1 P=1 dyn⋅s/cm²=0.1Pa・s				
ス	トーク	ス	St	1 St =1cm ² /s=10 ⁻⁴ m ² /s				
ガ	ウ	ス	G	1 G 110 ⁻⁴ T				
T.	ルステッ	F	0e	1 Oe 🛔 (1000/4π) A/m				
7	クスウェ	ル	Mx	1 Mx #10 ⁻⁸ Wb				
ス	チル	ブ	sb	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd/cm}^2 = 10^4 \text{ cd/m}^2$				
朩		ŀ	ph	$1 \text{ ph}=10^4 1 \text{ x}$				
ガ		ル	Gal	$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{m/s}^2$				

	表10. 国際単位に属さないその他の単位の例							
	4	3称		記号	SI 単位であらわされる数値			
キ	ユ	IJ	ĺ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq			
\mathcal{V}	\sim	トク	゛ン	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$			
ラ			F	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy			
\mathcal{V}			L	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv			
Х	線	単	位		1X unit=1.002×10 ⁻⁴ nm			
ガ		ン	7	γ	$1 \gamma = 1 nT = 10^{-9}T$			
ジ	ャン	(ス:	キー	Jy	$1 \text{ Jy}=10^{-26} \text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Hz}^{-1}$			
フ	л.	ル	5		1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m			
メー	ートル	系カラ	シット		1 metric carat = 200 mg = 2×10^{-4} kg			
ŀ			ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa			
標	準	大 気	〔 圧	atm	1 atm = 101 325 Pa			
力	口	リ	~	cal				
Ξ	ク		ン	u	$1 \text{ u} = 1 \text{ um} = 10^{-6} \text{m}$			

この印刷物は再生紙を使用しています