JAEA-Conf
2011-001

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門
第11回光量子科学研究シンポジウム 論文集

2010年6月24日～25日、木津川市

Proceedings of The 11th Symposium on Advanced Photon Research
June 24 - 25, 2010, Kizugawa, Kyoto, Japan

（編）シンポジウム事務局
(Ed.) Secretariat of Symposium on Advanced Photon Research

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

March 2011
Japan Atomic Energy Agency
日本原子力研究開発機構

JAEA-Conf

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（http://www.jaea.go.jp）
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, 2011

日本原子力研究開発機構
量子ビーム応用研究部門　第１１回光量子科学研究シンポジウム
論文集
2010 年 6 月 24 日～25 日、木津川市

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

（2011 年 1 月 12 日受理）

平成 22 年 6 月 24 日～25 日の 2 日間にわたり、「第 11 回　光量子科学研究シンポジウム」を関西光科学研究所木津地区において開催した。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。

関西光科学研究所：〒619-0215　京都府木津川市梅美台８－１－７

Proceeding of The 11th Symposium on Advanced Photon Research
June 24- 25, 2010, Kizugawa, Kyoto, Japan

(Ed.)Secretariat of Symposium on Advanced Photon Research

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

(Received January 12, 2011)

The 11th Symposium on Advanced Photon Research was held at Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency (JAEA-KPSI) in Kizugawa, Kyoto on June 24 - 25, 2010.

This report consists of invited and contributed papers presented at the oral and poster sessions in the Symposium.

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

目　次

１．はじめに 1

２．概要 2

2.1　第 11 回光量子科学研究シンポジウム　プログラム 3

2.2　第 11 回光量子科学研究シンポジウム　ポスター発表一覧 9

３．講演

3.1　今中期計画における光源開発プロジェクト 15

杉山　僚（原子力機構）他

3.2　レーザー駆動粒子線加速の研究 19

近藤　公伯（原子力機構）

3.3　Observation of Nano-scale Dynamics of Materials using Soft X-ray Laser Probe 23

河内　哲哉（原子力機構）他

3.4　放射線による初期生物影響解明のための革新的な診断技術の開発 27

加道　雅孝（原子力機構）他

3.5　レーザー逆コンプトンガンマ線を用いた核共鳴蛍光散乱実験とその同位体検出法への応用 31

大垣　英明（京都大学 エネルギー理工学研究所）他

3.6　量子効果と同位体分離 36

藤井　靖彦（東京工業大学名誉教授／日本原子力研究開発機構客員研究員）

3.7　高強度レーザーを用いた物質科学の研究 40

横山　淳（原子力機構）他

４．ポスター発表

4.1　粒子線による DNA 損傷メカニズム：電場の効果 47

森林　健悟（原子力機構）

4.2　XFEL 照射により放射線損傷を伴う生体分子の回折像強度 51
甲斐　健師（原子力機構）
4.3　細胞内器官の蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像との直接比較..... 55
石野　雅彦（原子力機構）他
4.4　Development of Silver Tape Target System for 0.1-Hz Repetition X-ray Laser 59
錦野　将元（原子力機構）他
4.5　フェムト秒レーザーアブレーションにおけるパルスの蓄積効果 63
山本　稔（原子力機構）他
4.6　低エネルギー軟 X 線平面結像型回折格子の開発..... 67
今園　孝志（原子力機構）他
4.7　同一の正分散媒質をパルス伸張・圧縮に用いた実用的フェムト秒チャープパルス増幅レーザーの開発 71
赤羽　温（原子力機構）他
4.8　保全分野に利用する核融合用マイクロカプセル作製技術..... 75
伊東　富由美（原子力機構）他
4.9　HfO_2/SiO_2 誘電体多層膜のレーザー光ダメージ部分の結晶化に関する考察..... 78
立野 亮（原子力機構）他
4.10　光医療研究連携センターにおけるレーザー駆動粒子線治療器に向けた小型・高強度レーザーシステム開発..... 82
鈴木将之（原子力機構）他
4.11　高エネルギーイオンのリアルタイム計測結果の解析 86
谷本　壮（原子力機構）他
4.12　テラワットレーザー励起により固体ターゲットから放射されたテラヘルツ波の放射角度特性..... 90
菜嶋　茂喜（大阪市立大学大学院　工学研究科）他
4.13　First layer のクーロン爆発を効果的に利用した陽子加速 94
守田　利昌（原子力機構）他
4.14　太陽風から電磁気学的推力を得る磁気プラズマセイルの推力評価 97
梶村　好宏（宇宙航空研究開発機構）他
4.15　超高強度レーザーを用いたＸ線発生および配管の透過画像撮影 101

大石　祐嗣（(財)電力中央研究所）他

4.16　2 段階レーザー航跡場加速のためのプラズママイクロオプティクス形成 105

水田　好雄（大阪大学大学院　工学研究科）他

4.17　二段階レーザー航跡場加速実験に用いる非対称超音速ガスジェット標的の密度分布評価 109

梶野　祥平（大阪大学大学院　工学研究科）他

4.18　同位体選択的振動励起における分子配向効果：最適制御理論による研究.....113

黒崎　譲（原子力機構）

4.19　レーザー光還元による白金族元素分離回収技術の開発　―レーザー光還元における波長依存性－ 115

大場　弘則（原子力機構）他

4.20　FBG を使用する配管モニタシステムの設計と実装 118

島田　幸洋（原子力機構）他

【施設供用】

4.21　高強度 X 線レーザー照射によるキセノンクラスターの内殻電離ダイナミクス 122

難波　愼一（広島大学大学院工学研究科）他

4.22　フレネルゾーンプレート集光軟X線レーザーによる ZnO シンチレーターの空間分解能測定.....126

田中桃子（原子力機構）他

５．出席者名簿 129

Contents

1. Introduction 1

2. Outline 2

2.1 Program 3

2.2 Poster list 9

3. Oral presentations

3.1 Laser R&D Project in This 5-year Term. 15

Akira SUGIYAMA (JAEA) et al.

3.2 Study on Laser Driven Particle Beam Acceleration 19

Kiminori KONDO (JAEA)

3.3 Observation of Nano-scale Dynamics of Materials using Soft X-ray Laser Probe 23

Tetsuya KAWACHI (JAEA) et al.

3.4 Development of Advanced Diagnostic Technology to Study Initial Radiation Effects on Biological Specimens 27

Masataka KADO (JAEA) et al.

3.5 Nuclear Resonance Fluorescence Experiment with Laser-Compton Gamma-ray Beam for Isotope Detection 31

Hideaki OHGAKI (Institute of Advanced Energy, Kyoto University) et al.

3.6 Isotope Separation based on Quantum Effects 36

Yasuhiko FUJII (Professor Emeritus, Tokyo Institute of Technology / Invited Researcher, Japan Atomic Energy Agency)

3.7 Study on Material Science by using an Intense Laser 40

Atsushi YOKOYAMA (JAEA)et al.

4. Posters

4.1 DNA Damage Mechanism Irradiated by Particles:Effect of Electric Fields 47

Kengo MORIBAYASHI (JAEA)

4.2 Diffraction Intensity of Biomolecules with Radiation Damage by XFEL Irradiation 51

Takeshi KAI (JAEA)

4.3 Direct Comparison of Soft X-ray Images of Organelles with Optical Fluorescence Images 55

Masahiko ISHINO (JAEA) et al.

4.4 Development of Silver Tape Target System for 0.1-Hz Repetition X-ray Laser 59

Masaharu NISHIKINO (JAEA) et al.

4.5 Incubation Effect of Femtosecond-laser Ablation 63

Minoru YAMAMOTO (JAEA) et al.

4.6 Development of Low Energy Soft X-Ray Flat-Field Grating 67

Takashi IMAZONO (JAEA) et al.

4.7 Research for Robust Femtosecond Chirped-Pulse Amplification Laser with an Identical Positive Dispersive Media as Pulse Stretcher and Compressor 71

Yutaka AKAHANE (JAEA) et al.

4.8 Application of the Nuclear Fusion Micro Capsule Manufacturing Technology to Facility Maintenance 75

Fuyumi ITO (JAEA) et al.

4.9 Negative Effect of Crystallization on the Mechanism of Laser Damage in HfO_2/SiO_2 Multilayer Dielectric Mirrors 78

Ryo TATENO (JAEA) et al.

4.10 Development of a Compact a High-Intensity Laser System for Integrated Laser-Driven Ion Accelerator at PMRC 82

Masayuki SUZUKI (JAEA) et al.

4.11 Analysis of High Energy Ion Measured by Real Time Measuring Instrument 86

Tsuyoshi TANIMOTO (JAEA) et al.

4.12 Measurement of Terahertz Radiation Pattern Emitted From Solid Targets by Exciting Terawatt Lasers 90

Shigeki NASHIMA (Department of Applied Physics, Graduate School,

Osaka City University) et al.

4.13 Using the Coulomb Explosion Effect of a First Layer on Proton Acceleration 94

Toshimasa MORITA (JAEA) et al.

4.14 Thrust Evaluation of Magneto Plasma Sail that Obtains an Electromagnetic Thrust from the Solar Wind 97

Yoshihiro KAJIMURA (Japan Aerospace Exploration Agency) et al.

4.15 X-ray Generation using Ultraintense Laser Pulses and Its Application to X-ray Imaging of a Pipe 101

Yuji OISHI (Central Research Institute of Electric Power Industry) et al.

4.16 Formation of a Transient Plasma Micro Optics for Two-Staged Laser Wake Field Acceleration 105

Yoshio MIZUTA (Graduate School of Engineering, Osaka University) et al.

4.17 Asymmetric supersonic Gas Jet Target For Two-staged Laser Wake-field Acceleration 109

Shohei KAJINO (Graduate School of Engineering, Osaka University) et al.

4.18 Molecular Orientation Effect on Isotope-selective Vibrational Excitations : Quantum Optimal Control Study 113

Yuzuru KUROSAKI (JAEA) et al.

4.19 Development of Novel Separation and Extraction of Platinum-Group Metals by Laser Photo-Reduction : Dependence of Laser Wavelength 115

Hironori OHBA (JAEA) et al.

4.20 Design and Implementation of Piping Monitor System Using FBG 118

Yukihiro SHIMADA (JAEA) et al.

【Report of the Common-Use Facility Program of JAEA】

4.21 Innershell Ionization in Xenon Clusters Irradiated with an Intense X-ray Laser Pulse 122

Shinichi NAMBA (Graduate school of Engineering, Hiroshima University) et al.

4.22 Evaluation of ZnO Fast Scintillator Spatial Resolution Using the FZP-focused X-ray Laser 126

Momoko TANAKA (JAEA)　et al.

5. Participants List 129

This is a blank page.

１．はじめに　Introduction

平成 22 年 6 月 24 日～25 日の２日間にわたり、「第 11 回光量子科学研究シンポジウム」（The 11th Symposium on Advanced Photon Research）を関西光科学研究所木津地区において開催した。

光量子科学研究シンポジウムは、光量子科学研究における最新の研究成果および計画を報告するとともに、光量子科学分野の国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、平成 11 年度から開催している。

第 11 回目である今回は、木津地区の新たなユニットの各グループ（先進ビーム技術研究ユニット、レーザー応用技術研究ユニット、量子生命・バイオ技術研究ユニットの３ユニット９グループ）から今中期計画における研究方針および目標の発表を行った。また産学分野から講演者を招き、今後の光量子科学研究の展開について議論が行われた。

また関西光科学研究所木津地区の施設供用の成果、平成 21 年度の共同研究および、新ユニットの各グループの最近の成果についての発表を行い、全体を通じて活発な議論が行われた。プログラムを 3～8 ページに示す。またポスター発表リストを 9～11 ページに示す。

２日間で機構外からの参加者 43 名を含む 127 名の参加があった。

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２２年６月２４日（木）　～　２５日（金）
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

２．概要　Outline

本シンポジウムでは、今年度から新しい中期計画が始まり、木津地区においてもこれまでのユニット、グループが再編され、新しいユニット、新しいグループが発足した。そこで今中期計画における研究方針および目標について各グループから発表を行うとともに、産学分野から講演者を招き、今後の光量子科学研究の展開について議論を行った。

特に招待講演では渡部俊太郎教授（東京理科大学　総合研究機構）からアト秒光科学―短パルス・短波長極限を目指した研究の報告、佐野雄二技監（(株）東芝電力システム社　電力・社会システム技術開発センター）から高出力レーザーによる原子力プラントの予防保全に関する報告、大垣英明教授（京都大学　エネルギー理工学研究所）からレーザー逆コンプトンガンマ線を用いた核共鳴蛍光散乱実験とその同位体検出法への応用研究の報告、藤井靖彦教授（東京工業大学　名誉教授）から量子効果と同位体分離についての報告が行われた。

ポスターセッションでは、他の研究機関や企業との共同研究、関西光科学研究所（木津地区）の施設供用制度を利用した研究成果を含め、機構内外から計５１件の発表が行われた。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。

２．１　第11回光量子科学研究シンポジウム プログラム

第1日目　6 月 24 日（木）　13:10～

13:00-13:10 (10)	理事挨拶 *岡田　漱平（理事）*
13:10-13:20 (10)	部門長挨拶 *南波　秀樹（量子ビーム応用研究部門長）*
	座長：横山　淳（先進ビーム技術研究ユニット長、レーザー応用技術研究ユニット長）
13:20-14:00 (40)	【招待講演】「アト秒光科学-短パルス・短波長極限を目指して」 *渡部　俊太郎（東京理科大学　総合研究機構）*
14:00-14:30 (30)	「今中期計画における光源開発プロジェクト」 *杉山　僚（次世代レーザー開発研究 Gr）*
14:30-14:50 (20)	休憩
14:50-15:30 (40)	【招待講演】「高出力レーザーによる原子力プラントの予防保全 」 *佐野　雄二（(株)東芝電力システム社　電力・社会システム技術開発センター）*
15:30-16:00 (30)	「伝熱管内壁に対するレーザー溶接補修の試みと関連基盤技術開発」 *西村　昭彦（光量子融合研究 Gr）*
16:00-16:10 (10)	休憩
16:10-17:50 (100)	ポスター発表(50分×前半、後半)
18:00-	懇親会

第 2 日目　10 月 22 日（木）　9:30～

	座長：永島圭介　（研究推進室長代理）
9:30-10:00　(30)	「レーザー駆動粒子線加速の研究」 *近藤　公伯（レーザー駆動粒子線研究 Gr）*
10:00-10:30 (30)	「高強度レーザーによるプラズマ中の電子制御－電子ビームとコヒーレント X 線生成－」 *神門　正城（レーザー電子加速研究 Gr）*
10:30-10:50 (20)	休憩
10:50-11:20 (30)	「軟X線レーザープローブによるナノスケールダイナミクスの計測」 *河内　哲哉（X 線レーザー応用研究 Gr）*
11:20-11:50 (30)	「放射線による初期生物影響解明のための革新的な診断技術の開発」 *加道　雅孝（DNA 損傷修復・細胞影響研究 Gr）*
11:50-13:00 (70)	昼食
	座長：山極　満　（プロジェクト推進室長）
13:00-13:40 (40)	【招待講演】「レーザー逆コンプトンガンマ線を用いた核共鳴蛍光散乱実験とその同位体検出法への応用」 *大垣　英明（京都大学　エネルギー理工学研究所）*
13:40-14:10 (30)	「レーザーコンプトン X/γ 線による核物質の非破壊分析」 *羽島　良一（ガンマ線核種分析研究 Gr）*
14:10-14:30 (20)	休憩
14:30-15:10 (40)	【招待講演】「量子効果と同位体分離」 *藤井　靖彦（東京工業大学　名誉教授）*
15:10-15:40 (30)	「高強度レーザーを用いた物質科学の研究」 *横山　淳（高強度場物質科学研究 Gr）*

15:40-16:10 (30)	「放射性廃棄物分離への貢献を目指した光量子利用研究」 *横山　啓一(レーザー量子制御研究 Gr)*
16:10-16:20 (10)	閉会挨拶 *河西　俊一(関西光科学研究所所長、量子ビーム応用研究部門　副部門長)*

The 11th Symposium on Advanced Photon Research　Program

1st day　June/24th 13:10-

13:00-13:10 (10)	Opening *Sohei OKADA (Executive Director)*
13:10-13:20 (10)	Message from Director General *Hideki NAMBA (Director General of Quantum Beam Science Directorate)*
	Chair：Atsushi YOKOYAMA
13:20-14:00 (40)	【Invited】Attosecond optical science-toward short pulse・short wavelength extreme *Shuntaro WATANABE (Research Institute for Science & Technology, Tokyo University of Science)*
14:00-14:30 (30)	Laser R&D project in this 5-year term *Akira SUGIYAMA (JAEA)*
14:30-14:50 (20)	Coffee Break
14:50-15:30 (40)	【Invited】Preventive Maintenance by High-intensity Lasers in Nuclear Power Plants *Yuji SANO (Power Systems Company, TOSHIBA)*
15:30-16:00 (30)	Cutting Edge Technologies on Maintenance for FBR Heat Exchanger Tubes and applied technologies *Akihiko NISHIMURA(JAEA)*
16:00-16:10 (10)	Coffee Break
16:10-17:50 (100)	POSTER (50min × 2)
18:00-	Banquet

2nd day June/25th 9:30-

Chair：Keisuke NAGASHIMA

9:30-10:00(30)	Study on laser driven particle beam acceleration *Kiminori KONDO (JAEA)*
10:00-10:30(30)	Control of plasma electrons by high-intensity laser – Generation of electron beams and coherent X-rays – *Masaki KANDO (JAEA)*
10:30-10:50(20)	Coffee Break
10:50-11:20(30)	Observation of nano-scale dynamics of materials using soft x-ray laser probe *Tetsuya KAWACHI (JAEA)*
11:20-11:50(30)	Development of advanced diagnostic technology to study initial radiation effects on biological specimens *Masataka KADO (JAEA)*
11:50-13:00(70)	Lunch Time

Chair：Mitsuru YAMAGIWA

13:00-13:40(40)	【Invite】Nuclear Resonance Fluorescence Experiments by Using Laser-Compton Backscattering Gamma-rays:Application for Isotope Detection *Hideaki OHGAKI (Institute of Advanced Energy, Kyoto University)*
13:40-14:10(30)	Laser Compton scattered X/ -ray sources for non-destructive isotope measurement *Ryoichi HAJIMA (JAEA)*
14:10-14:30(20)	Coffee Break
14:30-15:10(40)	【Inhvited】Quantum Effects and Isotope Separation *Yasuhiko FUJII (Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology)*

15:10-15:40(30)	Study on Material Science by using an Intense Laser *Atsushi YOKOYAMA (JAEA)*
15:40-16:10(30)	Photon science toward separation of radioactive waste *Keiichi YOKOYAMA (JAEA)*
16:10-16:20(10)	Closing *Shunichi KAWANISHI (Director General of KPSI, Deputy Director General of Quantum Beam Science Directorate)*

２．２　第 11 回　光量子科学研究シンポジウム　ポスター発表一覧

NO	題目	氏名	所属
P-01	粒子線による DNA 損傷メカニズムの新展開:粒子線が生成する電場の効果	森林　健悟	原子力機構　DNA 損傷修復・細胞影響研究 Gr.
P-02	XFEL 照射により放射線損傷を伴う生体分子の回折像強度	甲斐　健師	原子力機構　DNA 損傷修復・細胞影響研究 Gr.
P-03	細胞内器官の蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像との直接比較	石野　雅彦	原子力機構　X 線レーザー応用研究 Gr.
P-04	X線レーザー発生のためのテープターゲット装置開発	錦野　将元	原子力機構　X 線レーザー応用研究 Gr.
P-05	フェムト秒レーザーアブレーションにおけるパルスの蓄積効果	山本　稔	原子力機構　X 線レーザー応用研究 Gr.
P-06	低エネルギー軟 X 線平面結像型回折格子の開発	今園　孝志	原子力機構　X 線レーザー応用研究 Gr.
P-07	軟X線レーザー干渉計によるナノスケール構造の観察	長谷川　登	原子力機構　X 線レーザー応用研究 Gr.
P-08	軟X線スペックルの高速時間分解測定法の開発とナノスケール×ピコ秒での原子ゆらぎ現象の観測	並河　一道	東京理科大学
P-09	Nd 添加複合型ディスオーダーセラミックスを用いたサブピコ秒固体レーザー材料の開発	岡田　大	原子力機構　次世代レーザー開発研究 Gr.
P-10	単色エックス線を用いた K 吸収端/蛍光エックス線分析	静間　俊行	原子力機構　ガンマ線核種分析研究 Gr.
P-11	核保障措置のためのレーザーコンプトン散乱ガンマ線非破壊検査装置	早川　岳人	原子力機構　ガンマ線核種分析研究 Gr.
P-12	時間分解 CARS を用いた固体内分子振動緩和の研究	熊田　高之	原子力機構　ガンマ線核種分析研究 Gr.
P-13	テラヘルツパルス光の増幅に関する考察	坪内　雅明	原子力機構　ガンマ線核種分析研究 Gr.
P-14	円偏光・高強度レーザー場によるエタノール分子の解離性イオン化	赤木　浩	原子力機構　ガンマ線核種分析研究 Gr.
P-15	Electronic excitation dynamics of molecules ionized in intense laser fields observed by photoelectron-photoion coincidence momentum imaging	板倉　隆二	原子力機構　ガンマ線核種分析研究 Gr.
P-16	同一の正分散媒質をパルス伸張・圧縮に用いた実用的フェムト秒チャープパルス増幅レーザーの開発	赤羽　温	原子力機構　光量子融合研究 Gr.
P-17	保全分野に利用する核融合用マイクロカプセル作製技術	伊東富由美	原子力機構　光量子融合研究 Gr.
P-18	HfO_2/SiO_2 誘電体多層膜のレーザー光ダメージと結晶化に関する考察	立野　亮	原子力機構　次世代レーザー開発研究 Gr.
P-19	光パラメトリックチャープパルス増幅器の高効率増幅	小菅　淳	原子力機構　次世代レーザー開発研究 Gr.

NO	題目	氏名	所属
P-20	長焦点・準相対論的レーザー励起による高品質 Sub-MeV 電子線発生	森　道昭	原子力機構　次世代レーザー開発研究 Gr.
P-21	軟 X 線レーザープローブ干渉計によるアブレーション初期過程の解明	末元　徹	東京大学 物性科学研究所
P-22	光医療研究連携センターにおけるレーザー駆動粒子線治療器に向けた小型・高強度レーザーシステム開発	鈴木　将之	原子力機構　光医療産業研究特別 Gr.
P-23	レーザー駆動準単エネルギー陽子線照射装置の開発とその生物学応用	余語　覚文	原子力機構　光医療産業研究特別 Gr.
P-24	短パルスレーザによる金属表面の加工について	大東　出	原子力機構　光医療産業研究特別 Gr.
P-25	Efficient generation of high-order harmonics by relativistic laser in gas jet target	Pirozhkov Alexander	原子力機構　レーザー駆動粒子線研究 Gr.
P-26	高エネルギーイオンのリアルタイム計測結果の解析	谷本　壮	原子力機構　レーザー駆動粒子線研究 Gr.
P-27	医療用レーザー駆動陽子線加速器開発 ～伝送・照射テストビームラインにおける汎用粒子線伝送コード（PARMILA）のベンチマーク実験～	西内満美子	原子力機構　レーザー駆動粒子線研究 Gr.
P-28	レーザー駆動プロトンを用いた核反応	小倉　浩一	原子力機構　レーザー駆動粒子線研究 Gr.
P-29	テラワットレーザー励起により固体ターゲットから放射されたテラヘルツ波の放射角度特性	菜嶋　茂喜	大阪市立大学
P-30	レーザー加速電子ビームにおける2種類の振動の観測	小瀧　秀行	原子力機構　レーザー電子加速研究 Gr.
P-31	高強度レーザー対向入射型実験のための複合的アライメントシステム	川瀬　啓悟	原子力機構　レーザー電子加速研究 Gr.
P-32	超短パルス高出力レーザーを用いたキセノン Kα線の生成	林　由紀雄	原子力機構　レーザー電子加速研究 Gr.
P-33	磁気渦加速による高エネルギーイオン発生	中村　龍史	原子力機構　レーザー電子加速研究 Gr.
P-34	レーザー粒子加速の PIC シミュレーション	守田　利昌	原子力機構　レーザー電子加速研究 Gr.
P-35	太陽風から電磁気学的推力を得る磁気プラズマセイルの推力評価	梶村　好宏	宇宙航空研究開発機構
P-36	超高強度レーザーを用いたX線発生および配管の透過画像撮影	大石　祐嗣	(財）電力中央研究所
P-37	2 段階レーザー航跡場加速のためのプラズママイクロオプティクス形成	水田　好雄	大阪大学大学院工学研究科
P-38	二段階レーザー航跡場加速実験に用いる非対称超音速ガスジェット標的の密度分布評価	梶野　祥平	大阪大学大学院工学研究科

NO	題目	氏名	所属
P-39	長寿命放射性核種分離を目指したレーザー分離システムの研究開発	田村　浩司	原子力機構　レーザー量子制御研究 Gr.
P-40	回転コム同位体分離における量子ウォーク過程の研究	松岡　雷士	原子力機構　レーザー量子制御研究 Gr.
P-41	誘導ラマン遷移による同位体選択振動多段階励起	笠嶋　辰也	原子力機構　レーザー量子制御研究 Gr.
P-42	同位体選択的振動励起における分子配向効果:最適制御理論による研究	黒崎　譲	原子力機構　レーザー量子制御研究 Gr.
P-43	レーザー光還元による白金族元素分離回収技術の開発　－レーザー光還元における波長依存性－	大場　弘則	原子力機構　レーザー量子制御研究 Gr.
P-44	ヨウ化セシウムの Cs 交換反応に関する理論的解析	橋本　雅史	原子力機構　レーザー量子制御研究 Gr.
P-45	FBG を使用する配管モニタシステムの設計と実装	島田　幸洋	原子力機構　敦賀本部　レーザー共同研究所
P-46	Characterization of preformed plasmas for laser-driven proton generation	匂坂　明人	原子力機構　レーザー駆動粒子線研究 Gr.

施設供用制度　成果報告（ポスター）

NO	題目	氏名	所属
供用-01	ベッセルモードのフェムト秒パルスによるフィラメント発生	中嶋　隆	京都大学　エネルギー理工学研究所
供用-02	高強度 X 線レーザー照射によるキセノンクラスターの内殻電離ダイナミクス	難波　愼一	広島大学　大学院工学研究院
供用-03	レーザープラズマ X 線源の放射線生物学応用	佐藤　克俊	大阪大学大学院医学系研究科
供用-04	フレネルゾーンプレート集光軟X線レーザーによる ZnO シンチレーターの空間分解能測定	田中　桃子	原子力機構　次世代レーザー開発研究 Gr.
供用-05	クリーンレーザーパルスによる高密度プラズマからの単色 X 線の高効率発生	Zhe Zhang	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

発表時間：奇数番号　16:10～17:00　偶数番号　17:00～17:50

This is a blank page.

３．第 11 回光量子科学研究シンポジウム　講演

The 11th Symposium on Advanced Photon Research

– Oral Presentations

This is a blank page.

3.1　今中期計画における光源開発プロジェクト

Laser R&D Project in This 5-year Term.

杉山　僚*、桐山　博光、越智　義浩、森 道昭、田中　桃子、笹尾　文崇、
小菅　淳、岡田　大
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
先進ビーム技術研究ユニット
〒619-0215　京都府木津川市梅美台 8-1-7

Akira SUGIYAMA*, Hiromitsu KIRIYAMA, Yoshihiro OCHI, Michiaki MORI, Momoko TANAKA, Fumitaka SASAO, Atsushi KOSUGE, Hajime OKADA

Advanced Photon Research Center, Quantum Beam Science Directorate,
Japan Atomic Energy Agency
8-1-7 Umemidai Kizugawa-shi, Kyoto 619-0215 Japan

Main theme of our group in this middle term JAEA program is a development of high-averaged power short pulse laser system pumped by LDs (laser diodes). To realize this next term laser system, we have just started considering a Yb doped ceramics laser with a several members of KPSI. We have also developed a laser s ystem named QUADRA (high-Quality Ultra ADvanced RAdia tion Sources) in C-Phost program. In the first term up to FYH22, essential studies for QUADRA have been investigated. In the second term, QUADRA development will be merged with the next term laser system in JAEA to p roduce high powered THz radiation. In addition to these developments, we support to improve the performances of conventional high-power laser system, J-KAREN, for the requirement of advanced application studies in this middle term JAEA program.

Keywords: short pulse laser, LD, C-Phost, QUADRA, J-KAREN

光源開発プロジェクト

①　次期レーザー開発

今中期計画における当グループのレーザー開発の主眼は、高効率・高繰り返し動作などの特長をもつＬＤ直接励起型の次期極短パルスレーザーを開発することである。パルスの発生頻度が高く、出力安定性に優れた kHz 級の極短パルスレーザー光は、レーザー量子制御や陽子線発生等、これからの利用研究において強く望まれている。そこで、今中期計画の事前検討のために昨年末に開催された関西研でのレーザー施設利用委員会の中で、このレーザーを「次期レーザー」と名付けて、本年 4 月より着手した。

図 1.　光源開発の体制
（ユニット・グループ横断的取組）

図 1 に示すようなユニット・グループ間の横断的な体制で開発を行っている。
これまでの実作業チームにおける検討から、図 2 に示すシステム構成を提案している。今年度からの第 1 期 2 年間において、100mJ の kHz ピコ秒レーザーを開発する。さらに 3 年目からの第 2 期では、より高出力化を目指して、融合光新創生ネットワーク（光ネット）などの他の事業と連携した開発を進めることにより、J 級の 100Hz ピコ秒レーザーを開発する計画である。

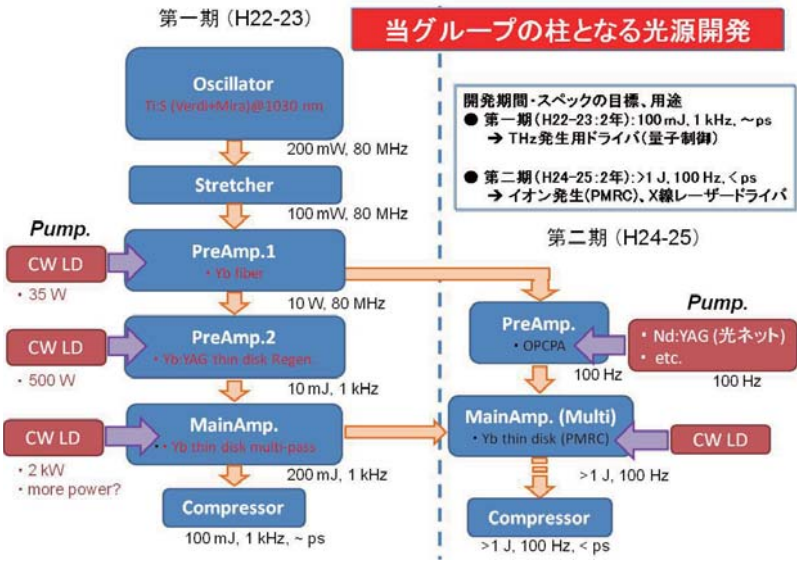


図 2. 次期レーザーシステム構成図

② QUADRA（high-Quality Ultra ADvanced RAdiation sources）用レーザー開発

次期レーザー開発と共に、現在、光ネット(C-Phost)での光源開発を行っている。今年度は、H20 年度から開始した第 1 期計画の最終年にあたる。図 3.に示すように第 1 期の開発目的は、kHz 級の半導体レーザー励起システムに必要な要素技術を開発することである。我々は、開発対象として、水冷型の Nd : YAG ジグザグスラブ増幅器を選択し、200mJ の高出力ピコ秒パルス発生と、これによって励起される OPCPA 極短パルスレーザーからの 10fs 級パルスの発生、さらにＶＵＶ～ＴＨｚ波の発生等を目標に研究開発を行っている。

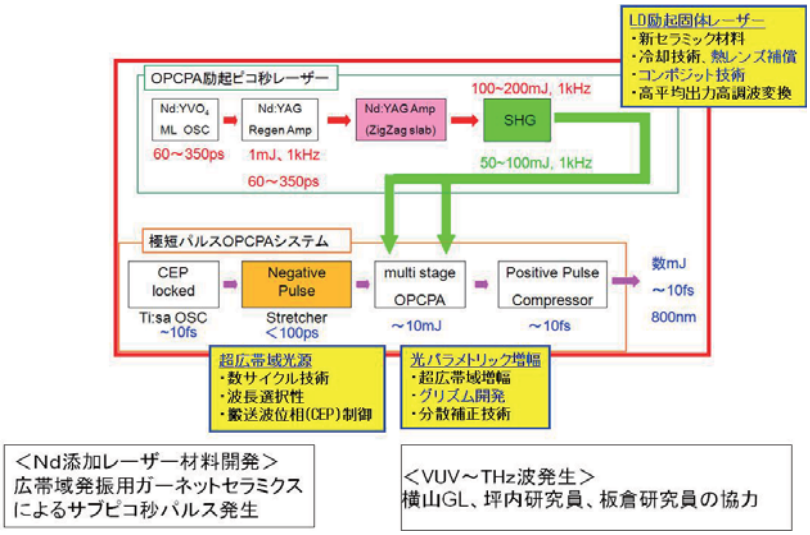


図 3. 第 1 期の QUADRA 用レーザー要素技術開発

第 2 期以降における光ネットの光源開発では、利用研究のためのレーザープロト機のシステム開発が目的である。光ネット事業当初の案では、第 1 期での水冷型 Nd : YAG ジグザグスラブ増幅器を高出力化することを計画していた。しかし、その後、QUADRA 光源の利用及び利用研究上必要な光源性能について検討した結果、我々は、将来の核廃棄物減少処理に繋がる長寿命核種の同位体分離技術の原理実証に必要な THz 波発生用光源 QUADRA-T(THz)の開発を主眼とした開発を進めるために、上述のように、次期レーザーと連携して水冷型の Yb セラミクス増幅器を開発することを決めた。

図 4.に、光ネットでの拠点構想を示す。次期レーザー開発と連携することで、早期に 100 μ J 級の THz 波を発生させるための Yb ポンプレーザーを開発する。さらに多段増幅化によりサブ J 出力を目指すと共に、短パルス化に適した Yb ガーネットセラミクスの材料開発を実施する。第 3 期のシステム化においては、THz 波出力の 1 桁アップを目指して、J 出力のピコ秒レーザー開発を進める計画である。

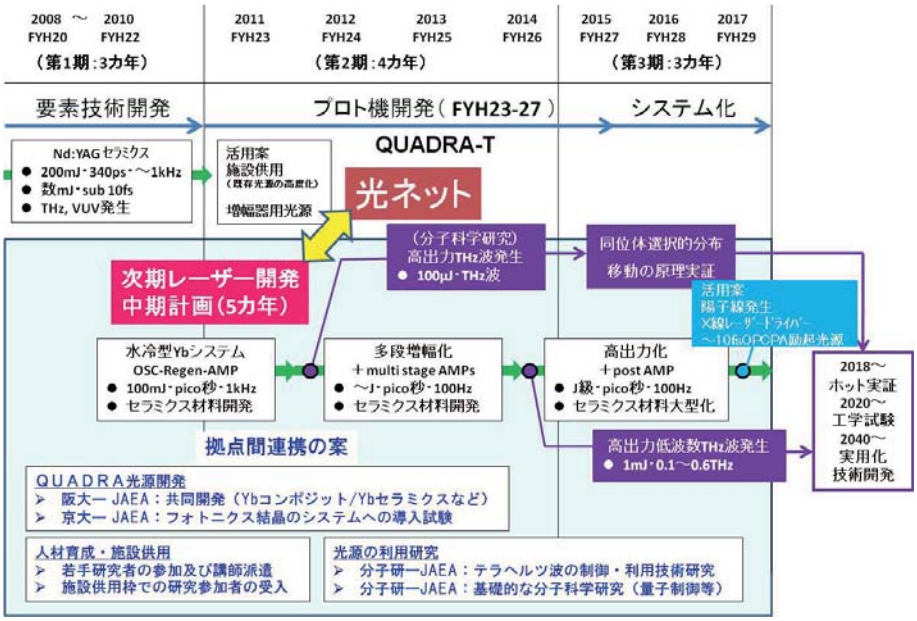


図 4.　　光ネットにおける QUADRA-T（JAEA）の拠点構想

③　核種分析用レーザー開発

より高い MHz 級の発振繰り返し数が求められる核種分析用ガンマ線発生に必要なレーザーシステムについて、ピコ秒モードロックファイバーレーザーと高出力化に不可欠なエンハンスメント共振器（ＥＣ）の要素技術開発をタスクフォースの中で行っている。

これまでの開発から、モードロック発振に成功すると共に、ファイバー増幅によって、10 数Wの出力が得られている。しかし、ASE 成分が増幅と共に増大するため、現在、低減化に向けた改良を進めている。

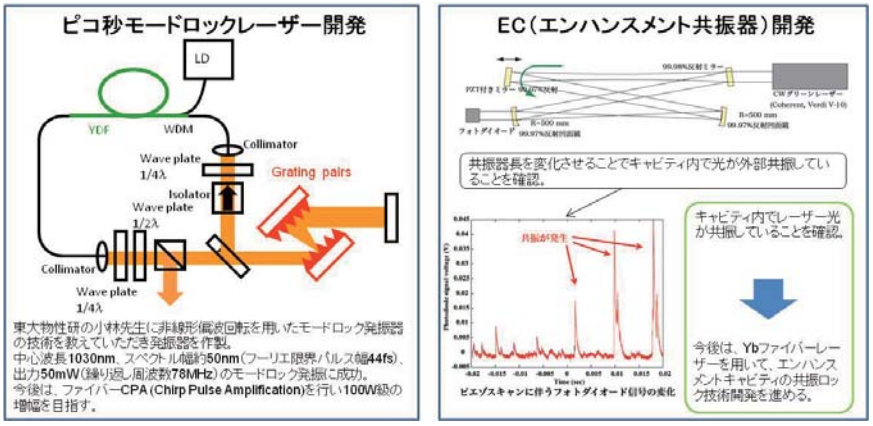


図 5.　核種分析用レーザー開発の進捗・計画

EC については、図 5.に示すように入射光のキャビティー内での共振を確認した。

④　J-KAREN 極短パルスレーザーの整備・高度化

昨年までの中期計画で開発を進めてきた J-KAREN 極短パルスレーザーは、2×10^{10} の高いコントラスト比をもつペタワット級のレーザーとして、今後も高エネルギー電子・陽子加速、高輝度X線等の量子ビーム発生技術にさらに高強度レーザーを活用することが期待されている。今中期計画では、表 1.に示す各項目について、プロジェクト推進室にて利用研究に適した整備・高度化が進められることが計画されており、当グループはその支援について行なっている。特に、「3. AOPDF 関連部品」で示す高度化に関しては、ダズラーによる精密なスペクトル･位相制御を導入し､100 ピコ秒のペデスタルの低減を目指すと共に、これによって 11 桁の高コントラスト化を試験する。また、従来のパルス幅 36 フェムト秒を約半分の 20 フェムト秒程度に短パルス化することで、ペタワット出力発生のポテンシャルを引出すことを計画している。レーザー光を利用研究に供給しつつ、今年度後半において、高度化並びに整備を行い、より利用研究に適したユニークな光源として活用できることを目指す計画である。

表 1. J-KAREN の整備・高度化案

件 名	概 要	効 果
1. パルス圧縮器の改良･移設	後段伝送ラインのビームの欠けを無くすため、パルス圧縮器を移設し、ペリスコープおよび伝送用ミラーを大口径化する。	[圧縮器移動･伝送鏡大口径化] 12インチ系ミラーの導入により 後段伝送ラインでのビーム伝送効率が向上する。
2. 10⇒12インチビーム径拡大用光学部品	パルス圧縮器および後段伝送ラインでのビーム径を拡大するため、エキスパンダーおよび必要となる光学系を整備する。	12インチ径に対応した光学系により、パルス圧縮器および後段伝送ラインでの光学部品のダメージ発生リスクを低減させることで、耐用年数が向上する。
3.AOPDF関連部品	位相および波形を制御する音響光学素子を導入するため、必要となる光学系を整備する。	[短パルス化(～PW)･高コントラスト化(ペデスタル軽減)] パルス幅が短くなることでピーク強度が向上する。
4. データ取得用機器	各種計測器からのデータを管理･運用するため、コンピュータおよびソフトウェアを導入する。	[レーザー運転ログ] 実験時のショット毎のビーム品質の保証が可能となる。
5.計測器用光学部品	ビームの時間･空間特性を日常的に監視するため、各種計測器へのピックアップ光学系を整備する。	[レーザー運転ログ] 各種計測器によるビームの日常的な監視が可能となる。
6. 自動アライメント装置	後段伝送ラインのアライメントを自動化およびフィードバック制御するため、自動アライメント装置を導入する。	[安定化] 後段伝送ラインでのビーム位置安定性が向上する。

3.2 レーザー駆動粒子線加速の研究

Study on Laser Driven Particle Beam Acceleration

近藤 公伯
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
Kiminori KONDO
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Following the mission of these 5 years-middle term plan of our group, the development of laser drivin particle therapy machine was presented. Research results show the possible planning of this development in the next 7 years's Photo Medical Valley project.

Keywords: Laser driven particle acceleration, Hadron therapy

1. はじめに

レーザー駆動粒子線研究グループの今中期計画目標は医療に利用可能な粒子線発生であり、それはレーザー駆動粒子線がん治療器の開発を目標とする光医療産業バレープロジェクトが直面する最重要課題でもある。ここでは、このようなレーザー駆動粒子線がん治療器の実現のための、特に高強度レーザーによる粒子線加速について、必要とされる仕様、それに対する現在の研究開発のアプローチについて述べる。

2. レーザー駆動 粒子線がん治療

がん治療の方法として、体にメスを入れずに治療する放射線治療法がある。現在 X 線利用する方法が一般的であるが、X 線の生体に対する吸収特性が、体表面近傍で吸収が大きく、体内へ行くに従って減少するため、体表面から深い部位に発生した腫瘍をピンポイントで照射することは困難である。これに対し、粒子線（陽子線、炭素線）を用いれば、ブラッグピーク形成をその吸収特性として有するため、体表面近傍、さらには腫瘍周辺の正常組織における放射線吸収量を極力抑えた状態でがん組織のみを攻撃できる。現在、このような粒子線治療法は、1. 早期社会復帰が可能で、2. 外来治療可能であり、3. 高い QoL を有する患者にやさしい治療であることから、その実現により医療分野にイノベーションをもたらした。然るに、この粒子線がん治療に必要とされる粒子線エネルギーが核子当たり 200MeV 程度と高いため、その発生には 100m サイズの加速器施設が必要である。このことは粒子線がん治療の普及を遅らせている原因であり、また、高額の治療費が必要という状況を生んでいる。この状況を打破するためには加速器のサイズを大幅に小さくする必要があるのだが、従来法を用いる限り単位長さ当たりの加速勾配に限界が生じる。これに対し、我々原子力機構で進めてきた高強度レーザーを使ったイオン加速法は、単位長さ当たりの加速勾配が桁違いに大きく取れるため、この状況を打破できる可能性を有する。実際に、光医療産業バレープロジェクトでは大きさ 10m 程度のがん治療器の開発を実現し、「いつでも、どこでも、誰でも」人にやさしい粒子線がん治療が可能な社会の実現を目指している。

3. がん治療器実現に必要とされる加速エネルギーと発生量

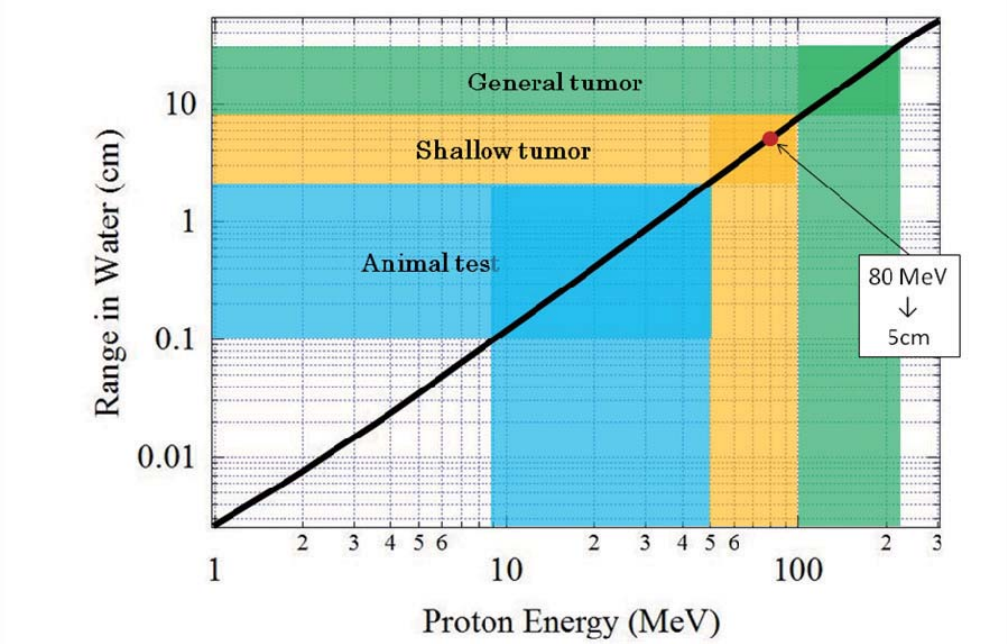


Fig.1 Stopping rage of proton for water

上述のように、粒子線がん治療では人間の体の深部まで粒子線が届く必要があるため核子当たり200MeV程度加速エネルギーが必要とされている。Fig.1には、陽子に対する水中での飛程を示す。陽子の場合、200 MeV で飛程は 25 cm である。また、80 MeV では 5 cm であり、浅い部位の腫瘍に適用可能である。また、臨床試験に入る前には、動物実験を前臨床試験として実施する必要があるが、マウスを想定した場合、10 MeVから可能と考えられる。すなわち10 MeVあれば皮膚直下の腫瘍に対する試験が開始できる。次に必要とされるイオンの数についておよその見当をつけてみる。100 MeV の陽子線を使って、一回の治療時に 10 Gy を腫瘍に照射するような場合、まず 100 MeV の陽子線は体内に侵入し、最終的にブラッグピークを形成するのは入射線量の1割程度であって、エネルギーは10 MeV程度になっていると仮定できる。1Gy は 1 kg あたりの照射量として 1 J を意味するので、対象とする腫瘍の大きさを 1 cm^3 程度とすると、体組織はほとんど水であり比重 1 g/cm^3 と考えて 10 Gy 照射のためには腫瘍に 10 mJ を照射する必要があると考えられる。10 MeVの陽子の数に換算すると6.25×10^9個必要ということになる。従って、100 MeV の入射陽子線も同じく6.25×10^9個必要となる。仮に患者に対する照射を 10 分と仮定すれば 1 秒間あたり 1.0×10^7 個の 100 MeV 陽子線を照射できればよいということになる。従って、30 Hz のレーザーによるパルス陽子線源であれば 1 ショット当たりの陽子線は、対象が 1 cm^3 の腫瘍とした場合およそ 3.5 $\times10^5$ 個で十分という評価になる。もちろんビームの伝送効率などが考慮されなければならないが目安として、数十ヘルツの繰り返しパルス源の場合、陽子線ならば 200 MeV で 1 ショット当たり 10^6 個以上は最低でも必要と評価できる。

4. レーザー駆動イオン加速

さて、高ピーク出力レーザーを固体薄膜に照射すれば高エネルギーのイオンが発生するが、このことは 2000 年にローレンス・リバモア研究所から初めて報告された[1]。当時、核融合研究用の大型ガラスレーザー装置に CPA 法を適用し、世界に先駆けて作られたピーク出力ペタワットの装置を使った実験で得られた結果である。薄膜表面に高ピーク出力レーザーを集光すればレーザーの照射強度できまる温度の

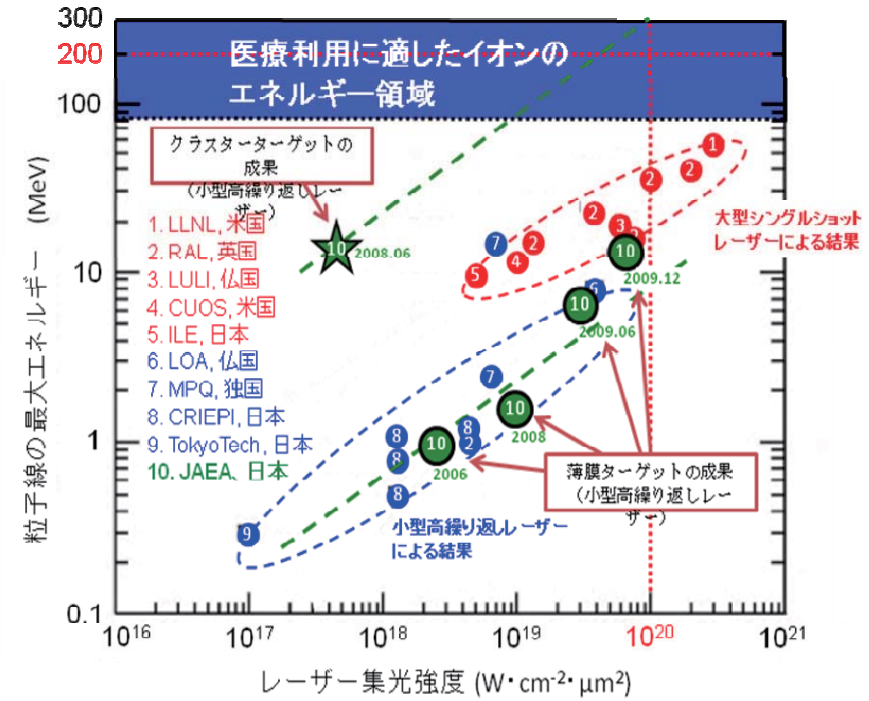


Fig. 2 Maximum ion energy vs laser intensity

電子が発生し、主にレーザーの進行方向へ放出される。この電子はターゲット薄膜の裏面に上述の温度に対応するシースを形成し、このシースがターゲット裏面に付着していた水分等が起因の陽子を MeV 以上に加速すると考えられている。このような加速現象は TNSA(Target Normal Sheath Acceleration)と呼ばれている。このような現象に関する研究は、元々ピコ秒程度のパルス幅を有しながらもある程度高いピーク出力を持つ比較的大型のガラスレーザーを用いて行われ、百フェムト秒以下のパルス幅を有するいわゆる卓上型チタンサファイアレーザーによる研究は比較的後発であった。パルス幅が百フェムト秒以下と短い場合は、従来の TNSA モデルの高速電子ビームの供給が極初期に切れると考えられるので、メカニズムの解釈に若干の変更が必要になる[2]。しかしながら最も重要なポイントは、レーザー照射の際に発生する高速電子の温度であり、これがシースを形成する源になるため、加速されるイオンのエネルギーは結局発生電子の温度、すなわちレーザー照射強度でほとんど決まると言える。最近のレーザー照射実験では、レーザー照射強度が 10^{18}W/cm^{2}を大きく上回るため、レーザー照射の際の電子温度は 0.5 MeV 以上、すなわち相対論的な領域で実施される。このような領域では最大イオンエネルギーは高速電子発生時の電子温度にほぼ比例し、その電子温度はレーザー照射強度の平方根に比例する。Fig.2 に、これまでに得られている最大加速エネルギーとレーザー照射強度の関係を示した。Fig.2 の赤丸は上述の比較的大型のガラスレーザー装置を用いて得られた結果であり、青丸と緑丸は卓上型チタンサファイアレーザーを用いて得られた結果である。青は原子力機構以外で得られたものであり、緑は原子力機構で得られた結果である。7 番を除き、実験結果は照射強度の 0.6 乗程度に比例することが分かる。このことは先に記した照射強度の 0.5 乗に比例することと大きく矛盾しない。なお、昨年 11 月に行った J-KAREN レーザーを用いたイオン加速実験では、以前より多くのエネルギーをターゲット相互作用に供することに成功し、オンターゲットでの照射エネルギー2 J であったものを 4 J 以上まで引き上げて実験を行った。これにより最大で 14 MeV の陽子線発生に成功し、光医療産業バレープロジェクトの上期 3 年で提案していた 5～10 MeV の加速エネルギー達成というミッションステートメントを大幅に上回ることにフェムト秒パルスによる TNSA 方式でも成功することができた。また、その一方でレーザー集光性能が理想的な状態からかな

り遠い状況であることも分かり、実質的な照射強度を大幅に良くするためにはシステムの改良が必要不可欠であることが分かった。これらの課題に関しては、今年度の J-KAREN レーザー高度化計画に含まれており、徐々に改善していくものと考えている。

以上の議論では、典型的なレーザーイオン加速法である TNSA について述べたが、最近はより効率のよいレーザーイオン加速の理論的、実験的検討が進んでおり、次にそのような新たな展開について述べる。ドイツのミュンヘン工科大、マックスプランク研究所、マックスボルン研究所の合同チームはナノメートル厚さのダイヤモンド様炭素薄膜を用いたナノ薄膜加速実験を行い、卓上型チタンサファイアレーザーを利用して Fig.2 の 7 番のプロットを得ることに成功した[3]。より少ない照射強度でより高い最大加速エネルギーを得ることに成功しており、レーザー照射強度とターゲット面密度をうまくマッチングさせることで理想的な加速ができたと報告している。レーザー照射強度がターゲット面密度に対して低すぎれば、より高い照射強度で照射することにより加速エネルギーが上げられると考えられ、逆に照射強度が高すぎれば、電子プラズマが急速に加速されて、着目しているイオンプラズマが取り残されると考えられ、照射強度にマッチしたターゲット面密度を準備することが味噌だと報告されている。もちろんレーザー照射強度が十分に高くなり（4×10^{24}W/cm^2）、被加速粒子として想定する陽子がクイバー運動で相対論的になる程度になれば、状況はもっと単純になると考えられる。いずれにせよ、このような実験結果はレーザー駆動粒子線治療器の実現に対して極めてサポーティブな結果であり、より低い照射強度での装置設計を可能にする。これに加え、我々原子力機構で発見したユニークなイオン加速法は CO_2 と He の混合ガスによるクラスターを利用したイオン加速である[4]。Fig.2 の緑の星印で示したプロットが得られた実験結果である。点線は、TNSA で得られた照射強度の 0.6 乗の依存性を示しており、レーザー照射強度を 10^{20}W/cm^2 程度に高めることができれば目標とする 200 MeV をクリアできる可能性があることが分かる。このことは光医療産業バレープロジェクトを継続課題として再提案する上で重要な発見であり、昨年度認められなかった「継続」へ向けて大いに拍車が掛かったといえる。すなわち、従来のフェムト秒 TNSA 方式で考えた場合、これまでに得られている実験結果のスケーリングを使う限り、加速エネルギー200 MeV を得るためには集光強度を 10^{22}W/cm^2 程度まで高める必要があるが、仮に 10Hz の繰り返し動作可能なレーザーを想定した場合、ピーク出力は高々100TW 程度と考えられるので、集光サイズを 1μm まで小さくできなければいけない。これは原理的に不可能ではないのだが、現在の技術レベルを考慮すれば、がん治療器の中に組み込む装置としてはあまり現実的ではないと言える。これに対し、クラスター法が示すスケーリングは 10^{20}W/cm^2 程度で目標エネルギーがクリアできることを示しており、集光サイズが 10μm 程度で達成可能になる。実際に 10μm 程度の集光であれば極めて現実的であり、レーザー駆動粒子線治療器の開発の可能性が飛躍的に向上したと言える。

5. まとめ

これまでのレーザー駆動イオン加速に関連する研究開発結果により、光医療産業バレーの目指すレーザー駆動がん治療器の実現がさらに一歩近づいた。今後とも、その実現に向けて精進していきたい。

参考文献

［1］R. Snavely et al., Phys Rev. Lett. **85** 2945-2948 (2000).
［2］M. Nishiuchi, et al., Phys. Lett. A, **375** 339-344 (2006).
［3］A. Henig, et al., Phys. Rev. Lett., **103** 245003 (2009).
［4］Y. Fukuda, et al., Phys. Rev. Lett., **103** 165002 (2009).

3.3 Observation of Nano-scale Dynamics of Materials using Soft X-ray Laser Probe

Tetsuya KAWACHI[1], Aikra SASAKI[1], Hoboru HASEGAWA[1], Masahiko ISHINO[1], Masaharu NISHIKINO[1], Takashi IMAZONO[1], Maki KISHIMOTO[1], Yoshihiro OCHI[1], Momoko TANAKA[1], Katsutoshi SATO[1,2], Minoru YAMAMOTO[1,3], Kazumichi NAMIKAWA[1,4], Tohru SUEMOTO[1,5], Kota TERAKAWA[5], Anatoly FAENOV[1], Sergei BULANOV[1] and Takuro TOMITA[3]
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)[1],
Faculity of Medicine, Osaka University[2]
Faculity of Engineering, The University of Tokushima[3]
Research Institute of Science and Technology, Tokyo University of Science[4]
Institute of Solid State Physics, The University of Tokyo[5]

This paper gives an overview of recent progress of laser-driven plasma x-ray lasers in JAEA. Fully spatial coherent plasma x-ray laser (XRL) at 13.9 nm with 0.1 Hz repetition rate has been developed using new driver laser system TOPAZ, and the succeeding optimization of the pumping condition has realized more efficient generation of the coherent x-ray pulse. The 0.1 Hz XRL is now routinely used for wide variety of applications: The highlights of these applications are the first observation of temporal correlation of domain fluctuation of ferro-electric substances under the phase transition using the double XRL probe beam technique and pico-second time-resolved observation of nano-scale surface distortion of metal under the femto-second laser illumination by use of x-ray laser interferometer.

……..

Keywords: Soft X-ray Lasers, High power lasers, Laser-produced plasma, Coherent x-ray optics

1. INTRODUCTION

The Advent of transient collisional excitation (TCE) laser makes it possible for us to realize small size coherent soft x-ray lasers (XRLs) [1]. In JAEA, we have firstly demonstrated fully spatial coherent XRL beam at the wavelength of 13.9 nm by the method of double target geometry, in which the first gain medium works as the soft x-ray oscillator and the second gain medium works as soft x-ray amplifier [2]. Successive optimization of the pumping condition such as the pumping intensity and temporal separation of the pre- and main-pulses allows us to obtain the high quality, intense XRL beam with the typical parameters of beam divergence of better than 1 mrad and the output energy of 1 μJ [3].

In the applications of soft XRLs, one of the most serious limitations so far was the repetition-rate. Typical shot interval of CPA Nd:glass driver was ~ 10 min and prohibited many potential users from conducting application experiments. The demonstration of GRIP (grazing incidence pumping) scheme partly solved this problem. Spatially coherent x-ray lasers with the output energy of several tens nJ has been obtained under the repetition-rate of 5 Hz by the combination of GRIP and higher-order harmonics

light as the x-ray seeder [4]. While multiple-shot exposure of this high average power soft XRLs is useful for soft x-ray imaging, however, there is strong interest and requirement from material science for more energetic coherent x-ray probe: For an example, nano-scale domain fluctuation under the phase transition of substances is essentially unrepeatable phenomena, therefore the single-shot probe is indispensable to observe and understand these phenomena.

In 2008 we have developed new driver laser system, TOPAZ (Twin OPtical Amplifier using Zigzag slab) [5], which can operate under the repetition-rate of 0.1 Hz due to the noticeable cooling efficiency of the zigzag slab amplifiers. Now TOPAZ laser provides fully spatial coherent XRL beam with the output energy of a few μJ and is routinely used for the applications of XRL beam.

2. APPLICATIONS OF THE SOFT X-RAY LASERS

The applications research fields of soft XRLs cover atomic physics [6], material science [7], laser processing [8], and plasma physics and so on. In the following several examples of the applications are described.

The first example is the temporal correlation measurement of domain fluctuation of ferro-electric substrates. A couple of years ago, we have firstly observed pico-second snap-shot of domain-structure of ferro-electric substrate, $BaTiO_3$, by use of x-ray laser speckle technique [7]. We extended this method into *double* XRL probes to reveal the temporal-correlation of the domain fluctuation. The 13.9 nm laser was divided into two beams by a Michelson-type double pulse generator based upon a free-stand Mo/Si multi-layer beam splitter. With certain delay time, two x-ray laser pulses probed the surface of $BaTiO_3$, and temporally different two speckle patterns were recorded by an x-ray streak camera. Similar double probes measurements were conducted for various time delays, and the temporal correlation function of the domain structure of $BaTiO_3$ was determined [9].

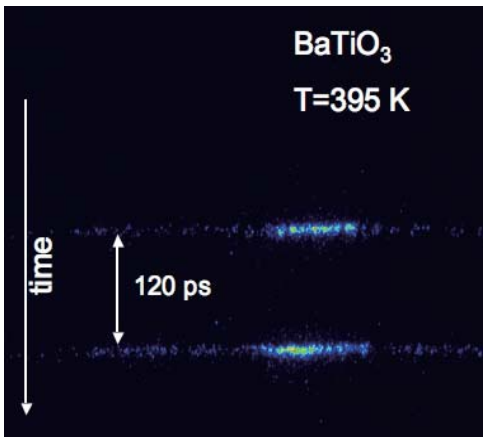


Fig.1. Typical soft x-ray speckle signal from $BaTiO_3$ taken by x-ray streak camera. The x-ray laser pulse is divided into two pulses, separated by 120 ps in this measurement.

The second example is XRL induced damage of the materials. Laser ablation has many technological applications in material processing and nano-structure fabrication. The laser-induce damage of the materials has been intensively studied, and its dependence upon the pulse width, the photon energy, and the fluence has come to be understood. For the relatively long duration optical laser pulses with > 20 ps, it is shown that the damage of dielectrics is mainly originated from the heating of conduction band electrons and transferring of electron energy to the lattice. Damage occurs if the deposited energy is sufficient to melt the materials. For the short enough pulses, the laser energy is absorbed by the electrons much faster than it is transferred to the

lattice, resulting in drastically decrease in the ablation threshold energy. The same situation can occur in extreme ultraviolet or soft x-ray laser. In the recent studies, a well-defined ablation threshold at 0.06 for CaF_2 and 0.11 J /cm^2 for LiF has been found for pulse energy 0.3 mJ of the Ne-like Ar x-ray laser at the wavelength of 46.9 nm with the duration of 1.7 ns, and much lower threshold energy can be expected in the case of transient collisional excitation laser with several picoseconds duration.

The 13.9 nm nickel-like silver laser, the energy of 1 μJ/pulse was focused on a 2 mm-thick LiF crystal with the diameter of 20 mm. A 0.2 μm thick Zr filter was settled in front of the x-ray mirror at 800 mm from the XRL exit in order to reduce the scattered optical radiation and the thermal x-ray emissions from the laser-produced plasma. The total energy of the XRL beam in the focused area on the LiF crystal was 170 nJ in each shot. The luminescence of stable color centers, CCs, formed by the x-ray laser radiation, was used to measure the intensity distribution in the XRL laser focal spot. The CCs in LiF crystal were observed by using a confocal fluorescence laser microscope after irradiation of the LiF crystal with the x-ray laser.

The optical microscope image of the LiF crystal surface together with the AFM traces of the ablation area showed that the ablation depths are almost between 30 and 55 nm, which are consistent with the absorption depth of 28 nm for 13.9 nm radiation. This implies that the ablation process in the present photon energy region (= 89 eV) is mainly determined by the absorption by the electrons in the localized area. In the present experiment, the XRL fluence on the sample is only 10.2 mJ/cm^2, which is more than 3000 times smaller compared with that for nanosecond Ti:sapphire lasers illumination. To explain such a strong reduction in the ablation threshold in the case of using picoseconds x-ray laser, we have conducted calculation beased upon the molecular dynamics coupled with hydrodynamics. The calculated result implies that an ablation mechanism for dielectrics is connected with a 100% XRL absorption in a thin surface layer and formation of negative pressure zone, followed by thermomechanical fragmentation, under a sufficiently strong tensile stress [11].

The third example is the observation of nano-scale dynamics of material surface by use of x-ray laser interferometer. The interferometer was designed with a group of Institute of Solid State Physics (ISSP) and University of Tokushima. The Schematic of the x-ray laser interferometer is shown in Fig. 2. The fully spatial coherent 13.9 nm laser beam, with the output energy of 1 μJ and the duration of 7 ps, passing through the 0.1 μm-thick Zr filter was steered by a planar Mo/Si multi-layer mirror to the sample position. The angle of the incidence of the XRL probe to the sample was set to be $\theta = 70°$ with respect to surface normal. The image of the illuminated area on the sample was transferred to the CCD position by a Mo/Si spherical mirror with the focal length of 250 mm. The distance from the sample to the spherical mirror and that from the spherical mirror to the CCD was about 260 mm and 4800 mm, respectively, which led to the magnification factor of 17. Interference pattern was obtained by putting a double Llyod's mirror between the spherical mirror and CCD. The angle of the incidence

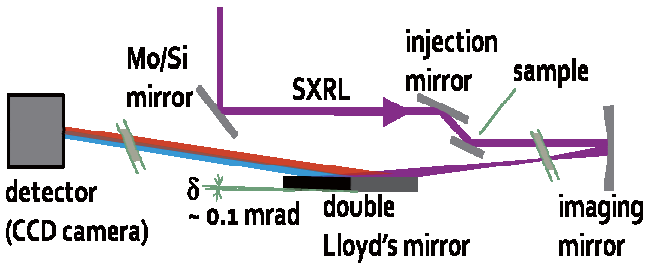


Fig. 2 schematic diagram of the x-ray laser inteferometer using double Llyod's mirror.

for the double Lloyd's mirror was 87° with respect to surface normal. The double Lloyd's mirror consisted of two Pt coated 400 μm-thick Si wafers, which were fixed with a relative angle of η = 0.006° (= 0.1 mrad) in a hausing. One of the wafers covered the portion of the x-ray laser beam including the information of the grooves, and the other was used as the reference. The overlap of the two wavefronts made interference pattern on the CCD.

Figure 3 shows typical interferogram of the test sample taken by this x-ray laser interferometer with single-shot probe. The sample is several pairs of grooves with the depth of 6 nm. The line and space of the pair of grooves are from 8 μm through 0.5 μm. In Fig. 3, arrows indicate the phase shift of the fringes, which corresponds to the 6 nm-depth of the groove. From this result, the lateral and depth resolution was determined to be 1.5micron and 1 nm, respectively. The lateral resolution may be improved by replacing the spherical imaging mirror by Fresnel zone plate.

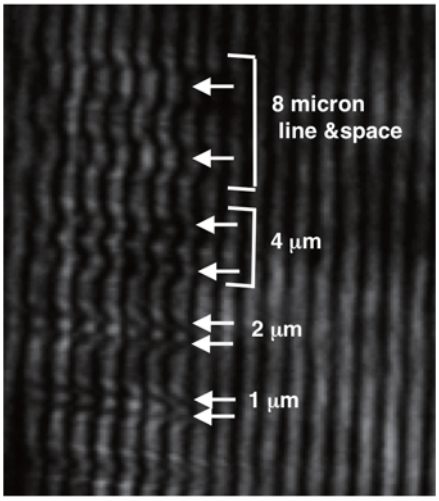


Fig. 3. Typical interferogram of the test sample taken by double Lloyd's interferometer. The fringe shift for various line and space (1-8μm) corresponds to 6 nm depth.

We have applied this interferometer to observe temporal evolution of distorted maetalic surface illuminated by an ultrashort optical pulse. The sample was 400 nm-thick Pt layer fabricated upon the SiO_2 substrate. The pumping source is 100 fs-duration, 2 J/cm^2 fluence Ti:Sapphire laser at a wavelength of 800 nm [11]. The kind of application using x-ray laser interferometer will be extended to the research field of phase-transition in material science in near future.

References

[1] T. Kawachi *et al.* : *Phys. Rev. A* **66**, (2002), 033815 (pp.1-8).
[2] M. Tanaka *et al.* : *Opt. Lett.* **28**, (2003), (pp.1680-1682).
[3] M. Nishikino *et al.* : *Appl. Opt.* **47**, (2008), (pp.1129-1134).
[4] Y. Wang *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **97**, (2006), 123901 (pp.1-4).
[5] Y. Ochi *et al.* : *Jpn. J. Appl. Phys.* **48** (2009), 120212 (pp.1-3).
[6] S. Namba *et al.* : *Phys. Rev. Lett.* **99**, (2007), 043004 (pp.1-4).
[7] R. Tai *et al.* : *Phys. Rev. Lett.* **93**, (2003),087601 (pp.1-4).
[8] A. Faenov *et al.* : *Opt. Lett.* **34**, (2009), (pp.941-943).
[9] K. Namikawa *et al.* : *Phys. Rev. Lett.* **103**, (2009) , 197401 (pp.1-4).
[10] I. Inogamov *et al.* : *Contr. Plasma. Phys.* **49**, (2009), (pp.455-466).
[11] T. Suemoto *et al.* : *Opt. Exp.* **18** , No. 13 (2010) , (pp.14114-14122).

3.4 放射線による初期生物影響解明のための革新的な診断技術の開発

Development of Advanced Diagnostic Technology to Study Initial Radiation Effects on Biological Specimens

加道雅孝 [1]、石野雅彦 [1]、岸本牧 [1]、森林健悟 [1]、村上洋 [1]、甲斐健師 [1]、篠原邦夫 [2]、
保智己 [3]、安田恵子 [3]
[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
[2] 早稲田大学 理工学術院
[3] 奈良女子大学　理学部
Masataka KADO[1], Masahiko ISHINO[1], Maki KISHIMOTO[1], Kengo MORIBAYASHI[1],
Hiroshi MURAKAMI[1], Takeshi KAI[1], Kunio SHINOHARA[2], Satoshi TAMOTSU[3], and Keiko YASUDA[3]
[1]Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency
[2]Advanced Research Institute for Science and Engineering, Waseda University
[3]Faculty of Science, Nara Women's University

In order to understand radiation damages on biolgical specimens, it is important to investigate from molecular level to cell level in size and femto-second to hours in time. Three key techniques such as molecular simulation, ultra-fast spectroscopy, and single shot x-ray microscopy has been developed. Combining those techniques, total image of radiation damaging process from molecular level to cell level are going to be established.

Keywords: Radiation damage, DNA, Molecular simulation, Ultra-fast spectroscopy, THz radiation, Laser plasma, X-ray microscope

1. はじめに

生物機能は蛋白質分子や DNA などが関与する分子レベルの過程から細胞レベルを経てより大きな構造レベルの現象・機能となる。生物機能解明のためには、分子レベルのどのような過程が細胞レベルの現象に導くかを明らかにする必要がある。そのためには、分子レベルから細胞レベルへ至る現象を相関付けるような統合的なイメージの構築が重要である。

放射線の生物影響の機構解明は放射線の生物影響評価や医学利用の最適化に資するものである。しかし、これまでの研究は放射線による生物影響の最終状態を DNA 及び細胞レベルで調べるものであり、分子レベルの過程と細胞レベルの現象を相関付けるような研究は実施されておらず、放射線の生物影響の機構解明は未解決問題である。

2. 計測手法

分子レベルから細胞レベルへ至る生物機能は、その時間スケールと空間スケールが大きく変化するため、一つの計測手法だけですべてをカバーすることはでいない。それぞれのフェーズにおける生物機能を解析する上で最も適した革新的な観測技術を開発することにより、個々のフェーズにおける生物機能

を解析し、それらを密接に連携させることにより生物機能の起源を明らかにする(Fig.1)。

生物機能の分子レベル観測、つまり、分子の電子状態及び構造状態変化を実時間で観測するための装置開発を実施する。超短パルス量子ビームを用いて、フェムト秒時間分解紫外可視分光装置の開発及びテラヘルツ分光装置の開発を実施すると共に、光学顕微鏡と組み合わせることにより顕微鏡下試料分光装置の開発を実施する。それを用いて、DNA や蛋白質の放射線照射後の化学変化及び構造変化を実時間で調べ装置の適用性を実証する。

分子レベル観測結果を補完するためのシミュレーション技術開発を実施する。分子レベルの生物作用の解析では、分子のイオン化過程や生体高分子の化学応答を対象とするため、ピコ秒レベルの時間分解能が要求される。分子の共鳴周波数による吸収を利用したテラヘルツ分光計測手法を開発するとともに、光量子シミュレーションにより様々な波長、強度の紫外線、X 線に対して生成する電子、ラジカルの生成量の時間発展、空間分布を求めると共にこれらの放射線により DNA のどの部位が損傷しやすいかを解析する。

細胞レベル生物機能の解析を行うためのレーザープラズマ軟X線顕微鏡の開発を実施する。放射線によるDNA 損傷は、その置かれた環境に大きく左右されるため、生理活性化にある細胞レベルでの放射線影響の解析が必要である。超短パルスX線を細胞の特定部位に局所照射し、細胞に現れる様々な構造や機能の変化を観察することにより照射部位や照射量に対する生物作用の現れ方の違いを調べる。このためには、X 線照射直後の生理活性化にある細胞を高い空間分解能で観察する必要がある。その実現のために、生きた状態にある細胞を 100nm 以下の空間分解能で瞬間撮像できるレーザープラズマ軟X線顕微鏡の開発を行う。

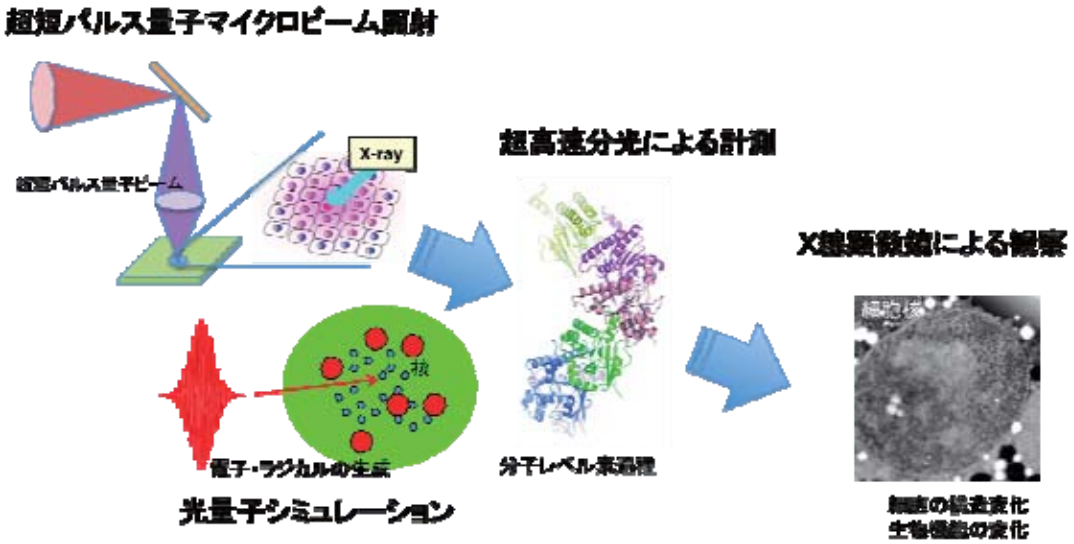


Fig.1 Establishment of total image of radiation damaging process from molecular level to cell

3. 軟 X 線顕微鏡による細胞内器官の観察

レーザープラズマ軟 X 線顕微鏡を用いて細胞内器官の観察を実施した。ネズミの精巣ライディッヒ細胞を密着型軟 X 線顕微鏡の窓材として使用する窒化シリコン薄膜上に直接培養し、蛍光顕微鏡による観察を行った。その後、この窒化シリコン薄膜を PMMA に貼り付け、軟 X 線顕微鏡観察を行った。DAPI、ファロイジン、マイトトラッカー等の蛍光色素で染色した試料の蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像を直接比較

することにより軟 X 線顕微鏡像の中に写っている核やアクチンフィラメント、ミトコンドリア等の細胞内器官の特定が可能となる。Fig.2 にファロインジンで染色したライディッヒ細胞の蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像に一例を示す。左が蛍光顕微鏡像、右が軟 X 線顕微鏡像である。左の蛍光顕微鏡像において緑色に見えている部分がアクチンフィラメントに対応する。右の軟 X 線顕微鏡像ではアクチンフィラメント以外の細胞内器官も撮像されている、全く同一の細胞を 2 種類の顕微鏡で観察を実施しているので二つの顕微鏡像を完全に対応づけることが可能であり、細部を詳細に比較することにより軟 X 線顕微鏡像の中のアクチンフィラメントの特定が可能である。

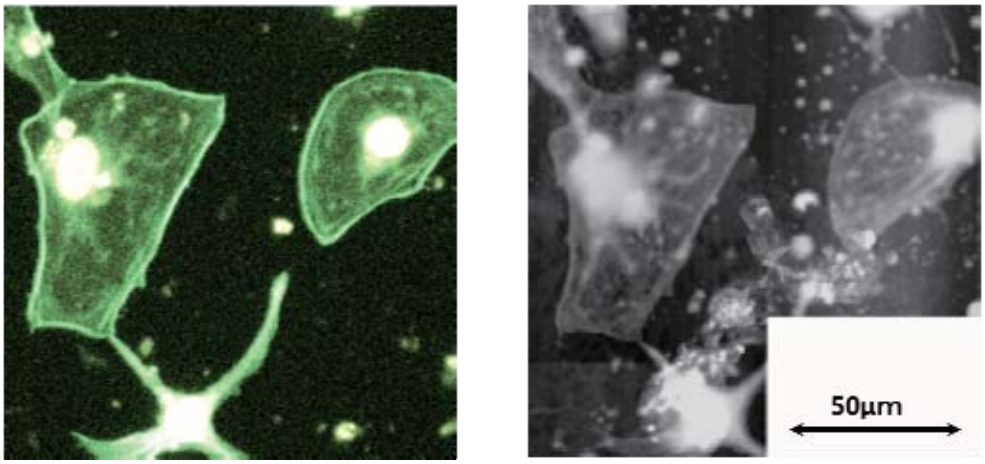


Fig.2 fluorescent image (left) and soft-x-ray image (right) of Leydig cells stained with Phalloidin

同様の手法を用いてマイトトラッカーで染色したライディッヒ細胞の蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像の直接比較を行った結果を Fig.3 に示す。左が蛍光顕微鏡像、右が軟 X 線顕微鏡像である。蛍光顕微鏡像の赤く見えている部分がミトコンドリアに対応する。蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像を詳細に比較すると（特に青い囲みの部分）軟 X 線顕微鏡像の中のミトコンドリアの位置と構造が特定できる。

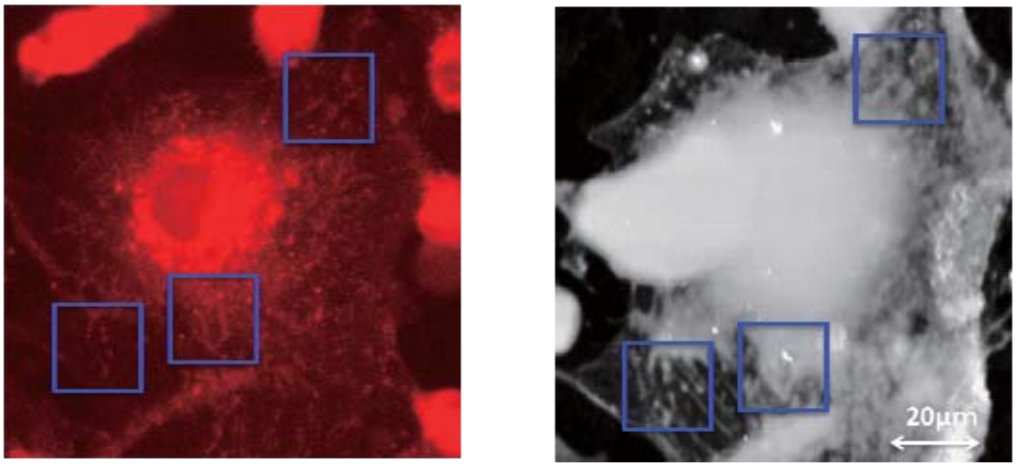


Fig.3 fluorescent image (left) and soft-x-ray image (right) of Leydig cells stained with Mito Tracker

このように、蛍光顕微鏡と軟 X 線顕微鏡で同じ試料を観察することにより軟 X 線顕微鏡像に現れた細胞内の構造がそれぞれどの細胞内器官に対応するのかを正確に把握することが可能であることがわかっ

た。一方、軟 X 線顕微鏡は蛍光顕微鏡に比べ、高い空間分解能を有するため、蛍光顕微鏡で得られる細胞内器官の構造情報に比べより詳細な情報が得られることが期待できる。

4. まとめ

今後、DNA 損傷生成過程のシミュレーションコードの開発、超高速分光計測技術の開発、レーザープラズマ X 線顕微鏡技術の開発を実施する。DNA 損傷生成過程のシミュレーションコードの開発では、生体分子損傷過程シミュレーションコードを開発し、様々な波長、パルス幅、強度の放射線に対する DNA 損傷の計算を行う。超高速分光計測技術の開発では、DNA 等の時間分解 THz 分光を実施し、生体高分子の振動及び構造状態ダイナミクスの変化を観測する。また、フェムト秒時間分解吸収・蛍光装置の構築を実施し、DNA 等の生体高分子の電子状態ダイナミクス観測を実施する。レーザープラズマ X 線顕微鏡技術の開発では、レーザープラズマ軟 X 線顕微鏡装置を開発し、放射線照射された細胞の構造、機能変化を観察する。

参考文献

[1] K.Moribayashi, Phys. Rev.A. **80**, 025403-1 - 025403-4 (2009).

[2] K. Moribayashi, AIP conference proceedings **1153**, 236 – 246 (2009).

[3] K.Moribayashi and T. Kai, J.Phys: Conference Series **163**, 012097-1 – 012097-4 (2009).

[4] T. Kai and K. Moribayashi, J.Phys: Conference Series **163**, 012035-1 - 012035- 4 (2009).

[5] H. Yamada, H. Murakami, and Y Shimada, Radiation Physics and Chemistry **78**, 375-379 (2009) .

[6] K. Moribayashi, J. Phys. B. **43**, 165602-1 - 165602-7 (2010).

[7] T. Kai, Phys. Rev. A. **81**, 023201-023201-7 (2010).

[8] M. Kado, M. Mori, M. Nishiuchi, M. Ishino, and T. Kawachi, J. Phys. Conference Series **186**, 012031 (2009).

[9] M. Kado, M. Ishino, S. Tamotsu, K. Yasuda, M. Kishimoto, M. Nishikino, Y. Kinjo, and K. Shinohara, IEEJ, **130**,.

3.5 レーザー逆コンプトンガンマ線を用いた核共鳴蛍光散乱実験とその同位体検出法への応用

Nuclear Resonance Fluorescence Experiment with Laser-Compton Gamma-ray Beam for Isotope Detection

大垣 英明、紀井 俊輝
京都大学 エネルギー理工学研究所

Hideaki OHGAKI, Toshiteru KII
Institute of Advanced Energy, Kyoto University
羽島 良一、早川 岳人、静間 俊行
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
Ryoichi HAJIMA, Taketo HAYAKAWA, Toshiyuki SHIZUMA
Gamma-ray NDA research group, Japan Atomic Energy Agency

A nuclear material detection is crucial in these days, because we do not have any effective method to detect it destructively. Especially for the hidden nuclear material in a container at the sea port, an existing X-ray detection system could not identify the isotopes. We propose a novel nondestructive detection method by using Nuclear Resonance Fulorecence (NRF) excited with a quasi-monochromatic gamma-ray which is generated by laser Compton backscattering. Brief introduction of the laser Compton backscattering gamma-ray and the NRF are described. The NRF experiments in our research group are also introduced. Finally, the proposed detection system for a hidden nuclear material in a countainer will be decribed in this paper.

Keywords: Laser Compton Backscattering Gamma-ray, Nuclear Resonance Fluorescence, Isotope Detection, Nondestructive Detection, Nuclear Material

1. はじめに

原子力発電の核燃料サイクルで取り扱う燃料棒や放射性廃棄物には、核分裂物質を含めて様々な同位体が含まれている。これらを非破壊で検査し、その空間分布を可視化することは安全かつ高効率な核燃料サイクルの実現にとって重要である。またコンテナ内部に隠蔽されたウランなどの核分裂性物質や核燃料物質、爆発物及びその原料となる物質をコンテナ外部から非破壊で測定することは、核物質の輸送を厳しく制限・管理する目的や、爆発物を用いたテロ等を未然に防ぎ、安全・安心な社会を実現するために非常に重要である。現在、一部の核燃料サイクル施設や港湾、空港などにおいて、燃料棒やコンテナを丸ごと検査する大型X線検査機器や中性子発生器を用いた即発ガンマ線分析装置などを用いて、X線透過像による内部形状測定、及び核分裂性物質や核燃料物質、爆発物等の非破壊検査が行われている。X線検査では透過力の高い高エネルギー制動放射X線を用いており、透過像が鮮明に得られるという利点があるが物質の識別はできない。中性子照射による即発ガンマ線分析では物質識別や同位体識別が可能であるが、空間分解能が悪く、

内部を可視化するのには空間分解能が不十分である。そこで我々は原子核共鳴蛍光（Nuclear Resonance Fluorescence：ＮＲＦ）散乱を用いた同位体識別手法を提案している。同位体の原子核は、その構成要素である陽子と中性子の数により、固有の振動数（励起準位）をもつ。この振動数に一致したエネルギーを持つガンマ線を同位体が吸収し、その脱励起に伴って発生する蛍光ガンマ線をＮＲＦ散乱ガンマ線と言う。ＮＲＦを外部に設けた放射線検出器で観測することで、同位体識別ができる。ＮＲＦ散乱ガンマ線は数ＭｅＶのエネルギーであり１０ｍｍ程度の鉄板を通り抜けることができるため、コンテナなどに封入された物質の同位体識別と空間分布を非破壊で測定できる。特に通常用いられる制動放射線の代わりに準単色ガンマ線であるレーザー逆コンプトンガンマ線（Laser-Compton Gamma-ray）を用いて同位体検出を行う事に特徴を有している。このガンマ線はエネルギー幅を数%以下に狭めることができるため、制動放射Ｘ線と比較して、ノイズを大幅に低減させた測定が可能である。

2. Introduction of Laser Compton Backscattering Gamma-rays

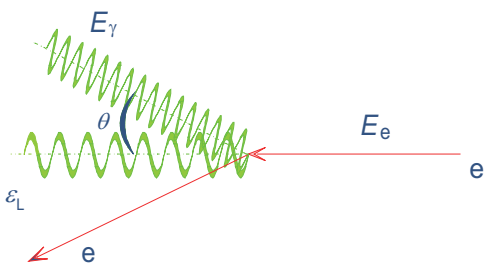


Fig.1 Schematic drawing of the laser Compton Backscattering Gamma-ray.

Laser Compton Backscattering Gamma-ray は、宇宙線の中の高エネルギーガンマ線の発生機構について理論的に研究された結果、従来の Compton 散乱が光のエネルギーを電子に与えるのに対し、高速の電子が光にエネルギーを与える現象として説明された。Compton Backscattering Gamma-ray のエネルギーE_gは

$$E_\gamma = \frac{\varepsilon_L(1-\cos(\theta_L))}{1-\beta\cos\theta+\varepsilon_L(1-\cos(\theta_L-\theta))/E_e} \quad (1)$$

という式で表される。ここでε_L は光のエネルギーであり、θ_L は光と電子の衝突角度であり、θは光の散乱角、E_eは電子のエネルギーである(Fig.1)。

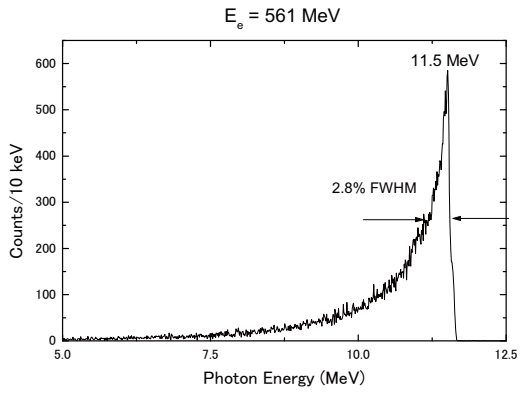


Fig.2 Typical energy spectrum of the laser Compton Backscattering Gamma-ray.

近年レーザー技術の発達により、強力で発散角の小さな光が得られるようになった事と、加速器技術の発達により、高品質の高速電子を得られるようになったため、宇宙での現象を、簡単に加速器施設で起こすことができるようになった。(1)式から分かるように、E_gは光(レーザー)のエネルギー(波長)や衝突角、散乱角や電子のエネルギーによって、自由に変化させることが可能である。更に、ガンマ線のエネルギーに散乱角依存性が生じるため、コリメータのようなもので、散乱角を制限する事で、容易に準単色なガンマ線を得ることができる[2]。Fig.2 には、産業技術総合研究所で、Nd:YLF レーザーの 2 倍高調波と、蓄積リング TERAS の 561MeV の電子を正面衝突させ、その散乱角を 0.25mrad に制限して測定した laser Compton Backscattering Gamma-ray のスペクトルの例である。この図から、エネルギー幅 3%以下(FWHM)の準単色のガンマ線が得られている事が分かる。

更に、正面衝突に近い角度で散乱したガンマ線はレーザーの偏極度をほぼ 100%近く保存するために、容易に高偏極度のガンマ線を得る事が可能である。このようにこのγ線は、従来の電子加速器の制動放射、原子炉の中性子捕獲γ線等には無い、高単色性、完全偏光、エネルギー可変等のエネルギー可変等の優れた特徴を有する事が分かる。

3. Introduction of Nuclear Resonance Fluorescence (NRF)

NRF は核共鳴散乱と呼ばれるように、原子核がその励起エネルギーに一致した光子(ここではガンマ線と呼ぶ)を吸収し、励起状態になった後、非常に短時間で基底状態にその励起エネルギーにほぼ等しいエネルギーをガンマ線の形で放出する現象である。Fig.3 に^{12}C、^{14}N、^{16}O の励起状態の図を示す。このように、NRF では、それぞれの原子核によって決まるユニークな励起エネルギーを有しており、NRF ガンマ線のエネルギーを精密に測定する事で、原子核、即ち同位体の識別が可能で有る事がわかる。なお通常、励起状態の寿命はfsから as であるため、入射ガンマ線による散乱がバックグラウンドとして常に存在する事になる。

Fig.4 に典型的な laser Compton Backscattering Gamma-ray（LCS Gamma-ray）を用いた NRF 実験の配

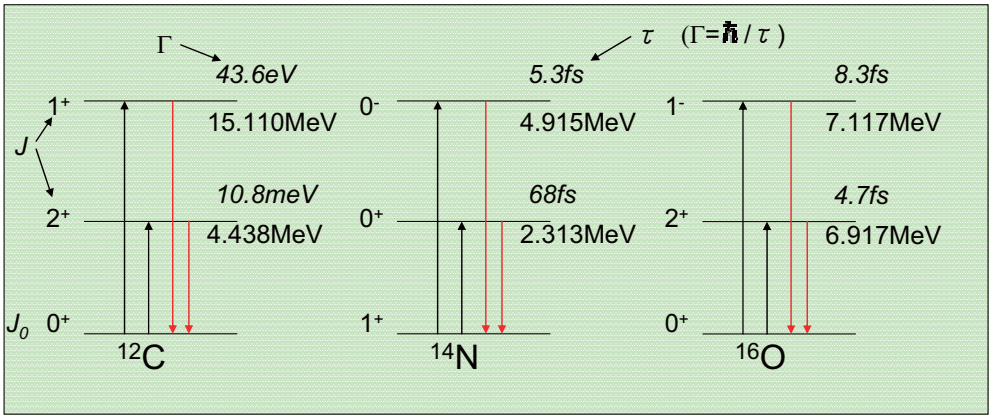


Fig.3 Excited states of ^{12}C, ^{14}N, ^{16}O.

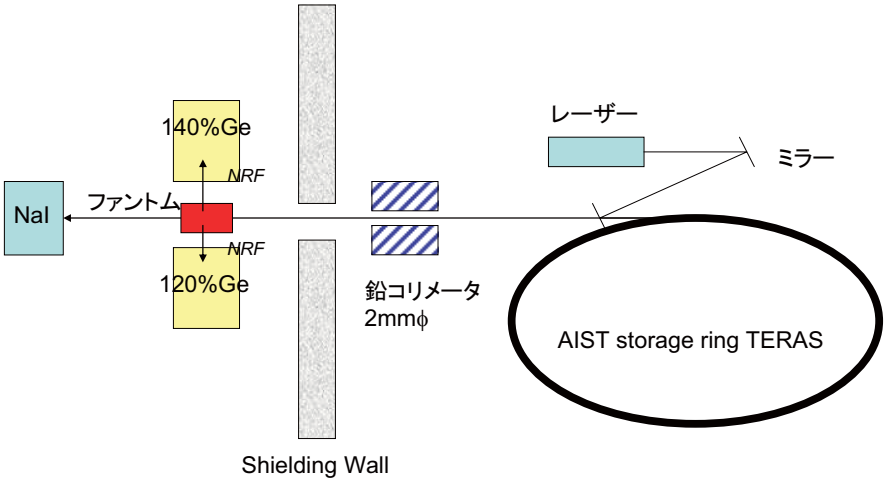


Fig.4 Typical experimental set up the NRF measurement by using laser Compton Backscattering Gamma-ray.

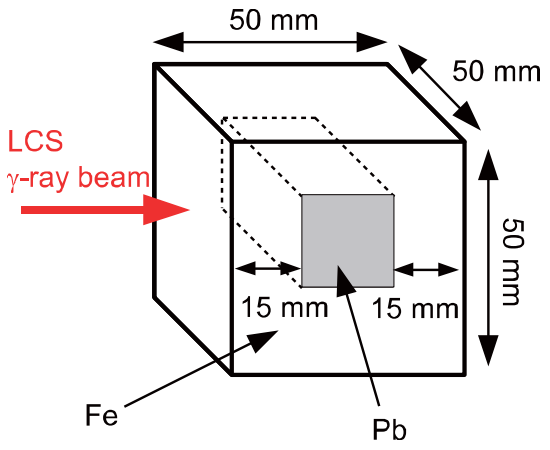


Fig.5 Schematic drawing of the Pb target hidden by 15mm Fe.

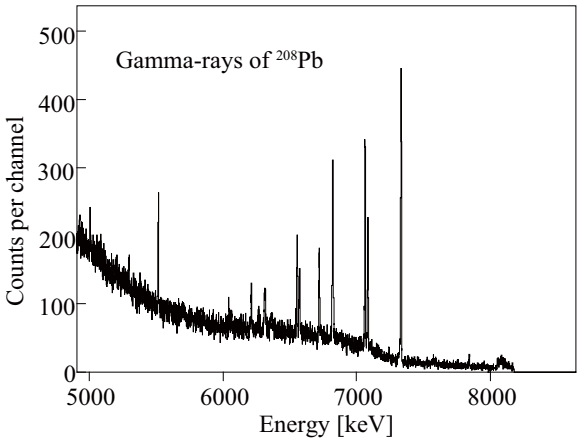


Fig.6 Typical NRF spectrum of 208Pb irradiated by 7.5 MeV LCS gamma-rays.

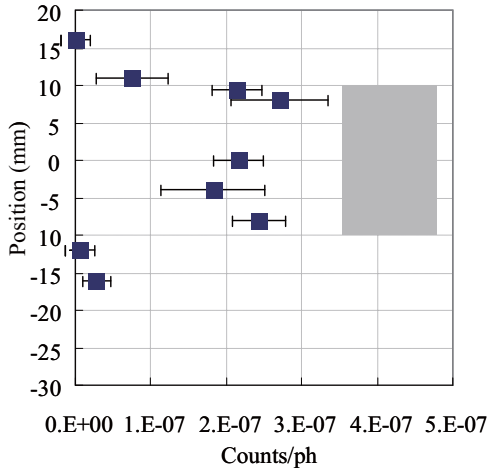


Fig.7 1D image of Pb detection.

置図を示す。これから分かるように、2 章に述べたようにコリメータを配置する事で、ガンマ線のエネルギーを準単色化して、NRF 測定のバックグラウンドを極力低減するように、配慮している。また、ガンマ線検出器には、エネルギーの高精度な測定が可能なように、大型の Ge 検出器を 2 台用いている。

以上の事から本手法では、原子核からの数 MeV のエネルギーのガンマ線をプローブとして用いるため、数 cm の鉄や鉛等の金属、中性子遮蔽材を透過して非破壊で測定可能である。

4. Demonstration of Isotope Detection by using NRF with Laser Compton Backscattering Gamma-rays

3 章に述べたように、本手法を用いることで、遮蔽された物体の同位体識別が原理的には可能である。そこで、我々の研究グループでは、実証実験として実際に 1.5cm 厚の鉄に遮蔽された鉛の検出を行った[2]。Fig.5 に実験に用いたターゲットの図を示す。天然の鉛（20mm x 20mm x 50mm）中の 208Pb を同位体検出の対象として測定した。

Fig. 6 には、典型的な 208Pb の NRF スペクトルを示す。この時の入射 LCS Gamma-ray は 7.5MeV の最大エネルギーを持ち、散乱角を大きめにしてエネルギー幅の広いガンマ線を発生させ、複数の NRF ピークが観測できるようにしている。また、この図から分かるように、LCS Gamma-ray を用いた NRF 測定は、制動放射ガンマ線によるそれに比較して、高エネルギーでの SN 比が非常に高い事が分かる。これは、準単色ガンマ線を用いているために、タ

ーゲット等からの原子散乱が少ないためである。

Fig.7 に 15mm の鉄に遮蔽された 208Pb の検出結果を示す。これより 1 方向のみのスキャンでは有るが、208Pb の配置した位置に一致して、5.5MeV の NRF のピークが観測されている事がわかる。また、208Pb の有無のエッジを詳しく調べる事で、空間分解能 5mm が得られている事が分かる。

5. Conclusion and proposed detection system for a hidden nuclear material

本報告では、LCS Gamma-ray の発生原理と NRF 測定の原理について紹介を行った。更に、これらを組み合わせる事で、同位体検出が可能な事を示すとともに、その原理実証実験として、我々のグループで行った 15mm 厚の鉄に遮蔽された 208Pb の検出について報告した。このように、NRF と LCS Gamma-ray を組み合わせる事で、励起状態を持たない水素以外のあらゆる原子核の検出が原理的には可能であり、数 MeV のガンマ線を検出に用いるために、厚い遮蔽を透過して測定が可能であることが示された。

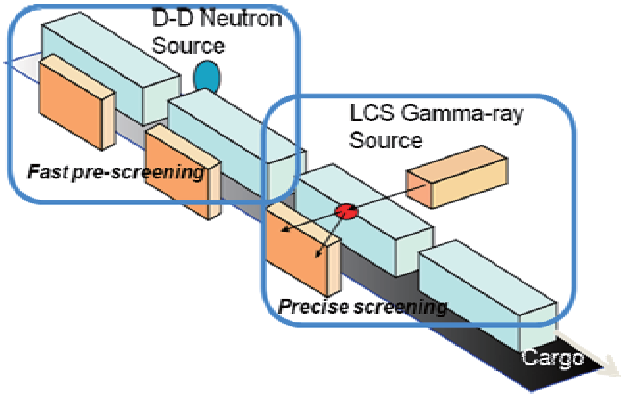


Fig.8 Proposed hidden nuclear material detection system.

我々のグループでは、本手法を用いて、コンテナなどに封入された核物質の検出を行うシステムの提案を行っている。本提案システムは Fig.8 に示すように中性子を用いた高速スクリーニング装置とマイクロトロンベースの LCS Gamma-ray 発生装置による NRF 測定の 2 手法のハイブリッドシステムとなっている。これは、NRF はその反応断面積がμb 程度であり、測定には時間がかかるという欠点を有しているためである。一方の中性子による核物質検出法は、反応断面積が大きいため、比較的高速に核物質の検出が可能であるものの、空間分解能が悪く、巧妙に遮蔽された場合は検出が困難という欠点がある。このため、この両者を組み合わせることで、システムの精度と高速性を同時に保障するものである。

参考文献

[1] H. Ohgaki, S. Sugiyama, T. Yamazaki, T. Mikado, M. Chiwaki, K. Yamada, R. Suzuki, T. Noguchi, T. Tomimasu, “Measurement of Laser-Induced Compton Backscattered Photons with Anti-Compton Spectrometer”, IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol.38, No.2, 386-392 (1991).

[2] N. Kikuzawa, R. Hajima, N. Nishimori, E. Minehara, T. Hayakawa, T. Shizuma, H. Toyokawa, and H. Ohgaki, App. Phys. Exp. 2, 036502 (2009).

3.6　量子効果と同位体分離

Isotope Separation based on Quantum Effects

藤井靖彦
東京工業大学名誉教授／日本原子力研究開発機構客員研究員
Yasuhiko FUJII
Professor Emeritus, Tokyo Institute of Technology /
Invited Researcher, Japan Atomic Energy Agency

Isotope separation by chemical exchange is based on the isotope effects in chemical reactions. It has been well known that the isotope effects in chemical reactions arise from the quantum effects in molecular vibration of the isotopomers in the chemical systems.　Strange isotope effects of mass-independent-fractionation were first observed in uranium chemical enrichment by ion exchange.　This phenomenon has been explained as the nuclear volume effects in chemical isotope fractionation.

Keywords: Isotope Effects. Isotope Separation, Molecular vibration, Nuclear Volume, Mass-Independent-Fractionation

1.　はじめに

同位体を分離する方法としてはガス拡散法や遠心分離法などウラン濃縮に使われる方法が良く知られている。ガス拡散法では軽い同位体が重い同位体よりも早く拡散する。分子の並進運動エネルギーにおける同位体効果、軽い分子の移動速度が速くなる原理に基づく。また遠心分離では回転胴の中で重い同位体が外側に押し出される。重力場の中で重い分子はより外側に移動する、いわば位置エネルギーの同位体効果である。これらの分離プロセスは分かりやすい。一方水素、ホウ素、炭素、酸素など軽い元素の同位体分離では化学反応や蒸留など化学的方法が使われる。同位体は核的性質が違うが化学的性質は同じではないのか。なぜ化学的方法で同位体が分けられるか、その原理は量子効果にある。

分子のエネルギー状態は分子全体の並進、分子の回転、分子内振動、電子状態などで表わされる。広い空間内で動く分子の並進運動は量子化されないが、小さな分子内での原子の運動、原子内の電子の運動は量子化される。通常温度領域では分子内振動エネルギーが同位体の質量に依存し、平衡定数などの熱力学的特性に同位体による僅かな変動が現れる。これが量子効果による化学的同位体分離の原理となる。[1]

例えば、同位体 A（と A'）が X, Y と化合物 AX, AY を作り、これらの間で同位体が交換すると。　次式の交換平衡

$$AX + A'Y = A'X + AY \qquad (1)$$

の平衡定数 K が僅かに 1 から変動する。２種の化合物 AX と AY が別々に液相や気相に存在すると、前述同位体交換平衡式は２相間の同位体交換平衡になり、その平衡定数は 2 相間の同位体の分離係数となる。この 2 種の化合物の交換平衡を多段化すれば同位体濃縮が可能となる。また同じ分子種でも X を液相、Y を気相分子とすれば、同位体による平衡定数の変化は沸点にも影響し、蒸留で同位体が分離できることになる。このような化学交換平衡の同位体効果を利用して、実際、水素、リチウム、ホウ素、炭素、窒素、酸素等の濃縮同位体が作られ、市販されている。日本でも B-10, C-13, N-15, O-18 などの濃縮同位体が生産されている。

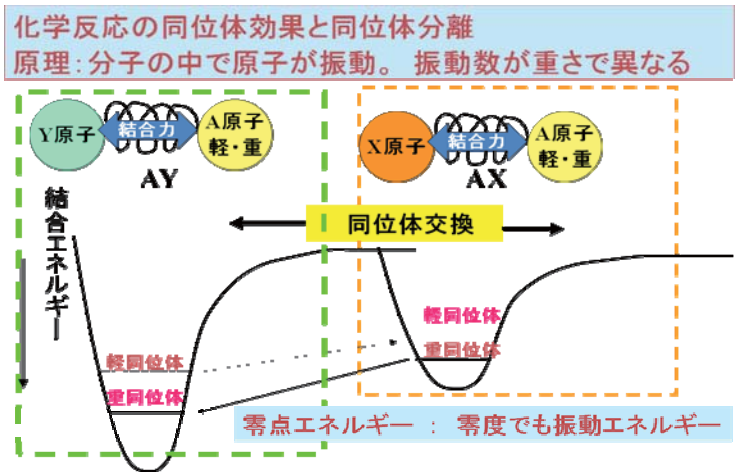


Fig. 1 Isotope effects in chemical equilibrium

２．窒素の化学交換法による同位体分離

実験室でも簡単に同位体の濃縮効果を確認することの出来る方法として、イオン交換クロマトグラフィーがある。例えば水素イオン型になっている陽イオン交換樹脂にアンモニア水を供給すると、アンモニウムイオン吸着帯が形成される。これに苛性ソーダ等のアルカリ性溶液を通じると、アンモニウムイオンはアンモニア分子となり、イオン交換樹脂から水溶液中に溶出する。溶出したアンモニア水は吸着帯先端で水素イオンに接触し、再度アンモニウムイオンとなりイオン交換樹脂中に吸着する。この過程を繰り返すことによって、アンモニウムイオン吸着帯が下方に展開移動する。

更にこの過程を通じて下記同位体交換平衡が、イオン交換樹脂相と溶液相の間で成り立ち、重い同位体 N-15 が僅かにイオン交換樹脂相に濃縮し、このプロセスが累積し、アンモニウムイオン吸着帯後端界面領域に N-15 が蓄積してくる。同様に軽い同位体 N-14 は吸着帯先端界面に蓄積してくる。[2]

$$^{15}NH_3 + {}^{14}NH_4\text{-}R \quad \Leftrightarrow \quad {}^{14}NH_3 + {}^{15}NH_4\text{-}R \qquad (2)$$

イオン交換法は分離係数が 1.02 と比較的小さいが、１段の分離を達成する分離段高さが 1 mm 程度にも小さくなるため、1 m の吸着帯内に 1000 段の分離段を形成することになるので、高濃縮度を容易に達成することが出来る。筆者らはこのようなイオン交換法の特性を利用し、N-15 濃縮値 99.91%を実験室において得た。しかしながら、イオン交換法は酸・アルカリを多量に消費するところから、多量の N-15 濃縮同位体製造には適しない。窒化物

燃料を実用化するには安価な N-15 同位体濃縮法を確立しなければならない。

一方既存の N-15 濃縮法である NITROX は次式の同位体交換平衡に基づき、年間での生産量が 5 kg 程度のプラントが実用化され、全世界で数 10 kg の濃縮 N-15 が生産されている。

$$^{15}NO + H^{14}NO_3 \Longleftrightarrow {}^{14}NO + H^{15}NO_3 \qquad (3)$$

この反応を進めるため、亜硫酸ガスを大量に使い、多量の硫酸が生成する。このままでは硫酸が廃棄物となり、苛性ソーダ等で中和して廃棄することが必要となってくる。このような制約から、生産コストが高く、また大量生産が困難である。

$$2HNO_3 + 3SO_2 + 2H_2O \longrightarrow 2NO + 3H_2SO_4 \qquad (4)$$

しかしこのプロセスを銅の精錬工場に併設すると、銅の精錬に伴って発生する、多量の SO_2 が安価に入手出来、銅精錬工場にはすでに下記亜硫酸ガスを酸化し硫酸にするプラントが作られており、上記発生した硫酸をこの工場に送り、製品として出荷することが出来る。

$$SO_2 + 1/2O_2 + H_2O \longrightarrow H_2SO_4 \qquad (5)$$

この結果、多量の廃棄物が発生しないことから、安価な多量の濃縮 N-15 の生産が可能となる。窒化物燃料の実用化に必要な数トン/年の濃縮 N-15 は国内の銅精錬工場を利用することで生産が可能である。

３．ウランの同位体効果に及ぼす核の体積効果

分子振動の量子効果に基づく化学交換平衡の同位体効果、即ち同位体分離係数の 1 からのずれ ε は同位体の質量の 2 乗と絶対温度の 2 乗に反比例する。

$$\alpha - 1 = \varepsilon \propto \Delta M / M^2 T^2 \qquad (6)$$

従って、化学交換法は軽元素の同位体分離には適当であるが、重い元素特にウラン等の同位体分離には不適当であるとみなされてきた。しかし不思議な現象があり、ウランの酸化還元を伴う同位体効果は、ウランの重さにもかかわらず、明確に観測されることであった。例えばウランの４価イオンと６価イオンの間の同位体交換平衡では、

$$^{235}U^{4+} + {}^{238}UO_2^{2+} \Longleftrightarrow {}^{238}U^{4+} + {}^{235}UO_2^{2+} \qquad (7)$$

予想としての濃縮の方向は重い同位体 ^{238}U が酸素との強い結合を持つ UO_2^{2+} 側に、軽い同位体 ^{235}U は強い結合を持たない U^{4+}側に濃縮するものと考えられていた。実験結果は逆に軽い ^{235}U が UO_2^{2+}に濃縮し、重い ^{238}U が U^{4+}に濃縮した。また上記交換平衡の平衡定数に相当する分離係数 $\alpha - 1 = 0.001$ 程度が得られ、同位体の重さを考えれば非常に大きい値となった。更には交換速度を速めるため高温の 160 °C で実験を行っても分離係数は若干低下するが、明確な分離効果が観測された。いずれも、分子振動の量子効果では説明できない現象であった。[3, 4]

これを解くカギとして、上式（６）の質量差 ΔM に注目した。天然ウランには ^{235}U, ^{238}U 以外 ^{234}U が入っている。ウラン４価－６価の酸化還元クロマトグラフィーによるウラン濃縮実験を行ったところ、^{234}U, ^{235}U, ^{238}U の間で分離効果が質量差に比例しない結果が得られた。さらに、1.7 %程度の濃縮ウランを原料として実験してみると、原料の中には濃縮ウ

ラン製造過程で混入する ^{236}U が入っており、これも含めた同位体間の濃縮効果を調べると、偶数核種 ^{234}U, ^{236}U, ^{238}U は明確に質量差に比例し、^{235}U のみ異常であった。同位体分離効果から見ると、^{235}U の実効的質量は 234.5 であった。更に ^{233}U についても分離効果を実測すると、やはり偶数核種からの直線性には乗らず、異常を示した。これら偶数核種の質量差比例性と奇数核種の異常は、odd-even staggering とよばれるウラン核体積の質量数の偶・奇数依存性と同じパターンであった。分子振動の同位体効果の理論式を作った J. Bigeleisen は著者らの実験結果から核の体積効果を導入した新たな理論式を作った。[5]

$$\ln \alpha = \ln \alpha_{o} + \ln K_{anh} + \ln K_{BOELE} + \ln K_{hf} + \ln K_{fs} \qquad (8)$$

ここで、α_{o} は分子振動から計算される同位体効果、K_{anh} は分子振動の比調和項の補正、K_{BOELE} は Born-Oppenheimer 近似項、K_{hf} は核スピン効果、K_{fs} は核の電場＝電荷密度（＝核体積）項である。核の体積効果は $\ln K_{fs}$ として理論式に取り込まれたが、具体的にどのように計算が可能かどうかは示されなかった。ようやく最近になって、阿部らはウランの酸化還元に係る同位体効果を全ての電子のエネルギーを計算する計算科学の手法で解析し、実験を再現する分離係数を得てた。[6]

４．おわりに

Bigeleisen が 1947 年発表した同位体効果の理論式には分子振動の効果だけが含まれていた[1]。1996 年、著者らの実験を説明するため同位体効果に核の体積効果を入れた式を発表したが[5]、彼は 1947 年当時すでに分光学では原子スペクトルの同位体シフトやこれに影響を与える核の体積効果は知られていたとして、なぜ当時自分はこの核の体積効果を導入しなかったかと悔んでいた。半世紀を経て、忘れられていた同位体効果が明らかになった。

参考文献

[1] Calculation of Equilibrium Constants for Isotopic Exchange Reactions, Jacob Bigeleisen, Maria Goeppert Mayer; ***J. Chem Phys.*** 15, 231 (1947).

[2] イオン交換法による同位体効果と同位体分離の研究；藤井靖彦、***J. Ion Exchnage***, 15, 68 – 79 (2004).

[3] Mass Dependence of Uranium Isotope Effects in U(IV)-U(VI) Exchange Reaction, Masao Nomura, Nobuhiko Higuchi, Yasuhiko Fujii; ***J. Am. Chem. Soc.*** 118 (38) 9127 – 9130 (1996).

[4] イオン交換と化学的同位体効果；藤井靖彦、野村雅夫；***放射化学ニュース*** 20, 1 - 14 (2009).

[5] Nuclear Size and Shape Effects in Chemical Reactions. Isotope Chemistry of the Heavy Elements J. Bigeleisen, ***J. Am. Chem. Soc.*** 118, 3676 (1996).

[6] Ligand effect on uranium isotope fractionations caused by nuclear volume effects: an ab initio relativistic molecular orbital study, Minori Abe, Tatsuya Suzuki, Yasuhiko Fujii, Masahiko Hada, and Kimihiko Hirao; ***J. Chem. Phys.*** 133, 044309-1~5 (2010).

3.7 高強度レーザーを用いた物質科学の研究

Study on Material Science by using an Intense Laser

赤木　浩、板倉隆二、乙部智仁、熊田高之、坪内雅明、横山　淳
独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 レーザー応用技術研究ユニット
Hiroshi AKAGI, Ryuji ITAKURA, Tomohito OTOBE, Takayuki KUMADA, Masaaki TSUBOUCHI, Atsushi YOKOYAMA
Laser Application Technology Division, Quantum Beam Science Directorate,
Japan Atomic Energy Agency

The purpose of intense laser material science group is to elucidate electron dynamics in atoms, molecules, and solids induced by the irradiation of an ultra-short intense laser, and to develop an intense THz light source for its use in molecular science, laser isotope separation and so on. In this symposium, we introduce our research plan based on the previous research activities.

Keywords: Ultrashort intense laser, Electron dynamics, Reaction control, THz light source

1. はじめに

レーザーによる反応制御は、レーザーの持つ単色性、高強度、コヒーレンス、短パルス性といったさまざまな優れた特徴を利用して研究されてきた。たとえば我々が行ってきた分子内の望む結合を選択的に切断する選択的化学結合切断では単色性（波長の選択）を利用して、切断したい結合の反結合性軌道へ励起することでその結合を優先的に切断したり[1]、高振動励起分子の紫外光分解において、切断したい結合の伸縮振動の倍音を励起した後に、紫外光で電子励起してその結合を優先的に切断[2, 3]することに成功している。しかし、反結合性軌道への励起では、切断したい結合の反結合性軌道から他の結合の反結合性軌道へのエネルギー移動の確率が分子構造に依存し、結合解離における選択性が分子構造に依存して変わることが明らかとなった。[4]また、高振動励起分子の紫外光分解では、水およびアンモニアの部分重水素化分子を用いて O-D（N-D）結合と O-H（N-H）結合を切り分けられることを示したが、励起する振動モードが、他の振動モードと相互作用するような場合には適用できない。

このように、レーザーによる反応制御は部分的には実現されているが、選択性が分子構造や対象とする結合に大きく依存している。そこで我々は、より一般的な化学反応制御を目指して、反応に直接関与する電子を直接制御するための知見を得ることを目的に、高強度レーザー場における分子や固体の超高速電子状態ダイナミックスの観測手法の開発を今中期（平成 22 年度から 26 年度）行っている。また、分子構造の直接制御を目指した高強度テラヘルツ波発生技術の開発も行っており、以下にそれらの概要について記載する。

2. 高強度レーザー場における分子のイオン化ダイナミックス

レーザー強度 10^{12}～10^{15} W/cm^2 の強レーザーに曝された分子は、そのレーザー強度に依存して多光子イオン化やトンネルイオン化が起こる。最近、我々は、超短パルス Ti:Sa レーザー（レーザー光強度 9～

27W/cm^2、レーザーパルス幅 35 又は 800 fs)を照射して起こるエタノール分子の解離性多光子イオン化過程を光電子・光イオン同時運動量画像観測法(Fig.1)を用いて研究し[5]、解離イオンを生成する励起過程に次の 2 つの過程があることを見出した。すなわち、親イオンの励起状態($C_2H_5OH^{+*}$)に直接励起した後に、解離イオン($C_2H_5^+$、CH_2OH^+等)を生成する過程(1)と、はじめに基底状態の親イオン($C_2H_5OH^+$)が出来た後に、さらに光を吸収して解離する過程(2)がある。

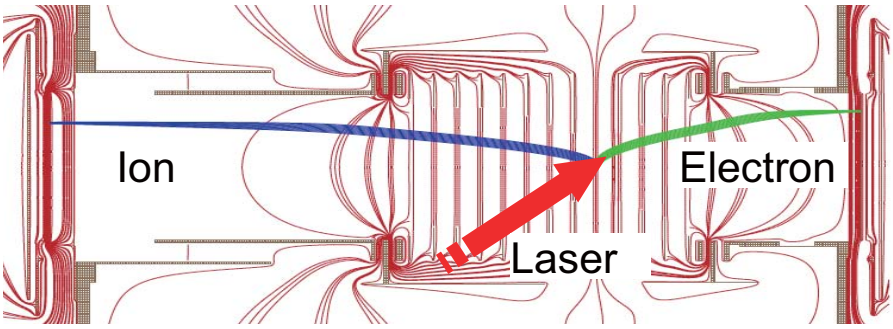


Fig. 1 Photoelectron-Photoion Coincidence Momentum Imaging Apparatus.

$$C_2H_5OH \xrightarrow{nh\nu} C_2H_5OH^{+*} \rightarrow fragmentation \qquad (1)$$

$$C_2H_5OH \xrightarrow{n'h\nu} C_2H_5OH^{+} \xrightarrow{h\nu} C_2H_5OH^{+*} \rightarrow fragmentation \qquad (2)$$

これら 2 つの過程の分岐比は、レーザー強度やパルス幅に依存して変わり、レーザー強度が高くなると、またパルス幅が長くなると、(2)の過程が優先的に起こるようになることも明らかにした。

また、HCl分子のトンネルイオン化によって起こる解離性イオン化(HCl → H + Cl^+ or H^+ + Cl)で生成する電子の分子座標系における角度分布を測定し、時間依存密度汎関数法による ab initio 分子軌道法計算結果とあわせて、Fig.2 に示すように電子は最外殻被占軌道(HOMO)のひとつエネルギー的に下の軌道(HOMO−1)からイオン化していることを明らかにした。[6] このように分子のイオン化初期過程を最終生成物との相関を取りながら明らかにしたが、レーザーにより分子の電子状態を制御して化学反応を精密に制御するためには、非常に短い時間に起こる反応途中での電子状態変化の情報を得る必要があり、真空紫外光あるいは極端紫外光パルスを反応途中の分子のイオン化用プローブ光源として用いたポンプ・プローブ系の構築と反応ダイナミックスの解明を計画している。

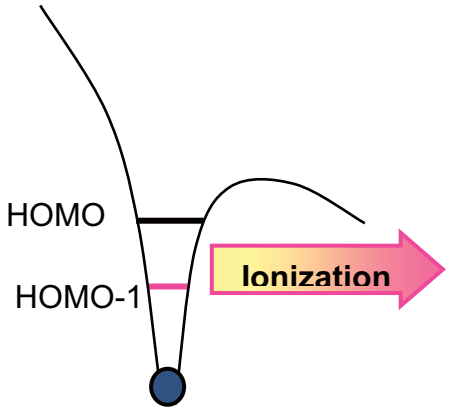


Fig. 2 Tunnel-ionization process of HCl observed in intense laser field.

3. 固体中の電子励起ダイナミックスの実験及び理論研究

我々は、時間依存密度汎関数法による ab initio 計算を上記のような簡単な分子のみならずダイヤモンド[7]や SiO_2[8]などの誘電体にも適用し、高強度レーザー場で誘起される実時間、実空間における電子ダイナミックスについて明らかにしてきた。Fig.3 に SiO_2 中の全電場とレーザー電場の時間プロファイルのレーザー強度依存性を示す。レーザー強度が高くなるにつれて伝導体に励起する電子数が増加し、金属的になるとともにレーザー電場と全電場の位相がずれてくる。このような高強度超短パルスレーザーで誘起される固体中の電子ダイナミックスを、近赤外光をポンプ光源に、紫外・真空紫外光をプローブ光源とした時間依存の反射率測定および理論計算より明らかにする予定である。

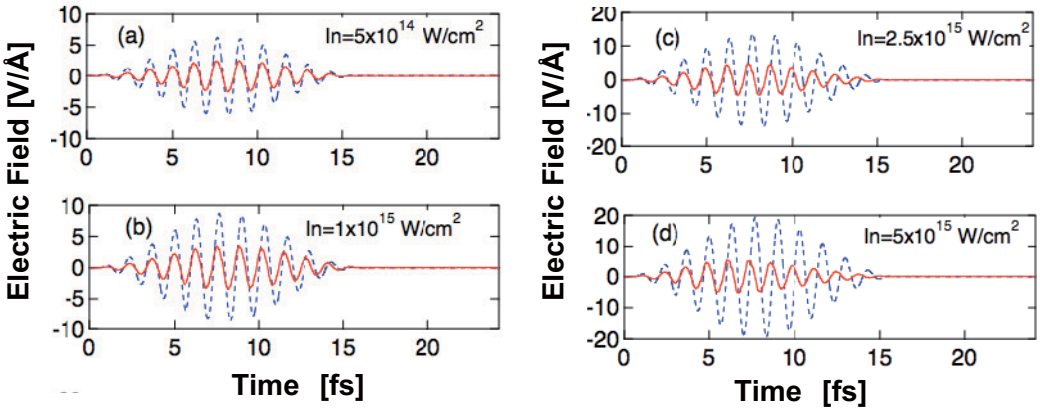


Fig. 3 The laser electric field (dashed line) and the total electric field (solid line) as a function of the laser intensity.

4. 高強度テラヘルツ波発生と物質科学

Fig.4 に示すように、テラヘルツ波は分子の回転周波数や分子間運動モード振動数とマッチした振動数の光なので分子構造の直接制御が可能と考えられる。そこで、高強度のテラヘルツ波発生技術の開発と、それを用いた分光および反応制御の研究も進めている。この高強度のテラヘルツ波は、レーザー量子制御研究グループで進めているテラヘルツ周波数コムにる同位体選択的回転状態励起を実現するためのキーテクノロジーでもあり、$LiNbO_3$ を用いた光整流法によるテラヘルツ波発生を確認している。将来的には、次世代レーザー開発研究グループで開発を進めている高繰り返し Yb:YAG レーザー（出力～100mJ、パルス幅1ps、繰返し周波数1kHz）をドライバーレーザーとしたテラヘルツ波の高強度化を実現する予定である。

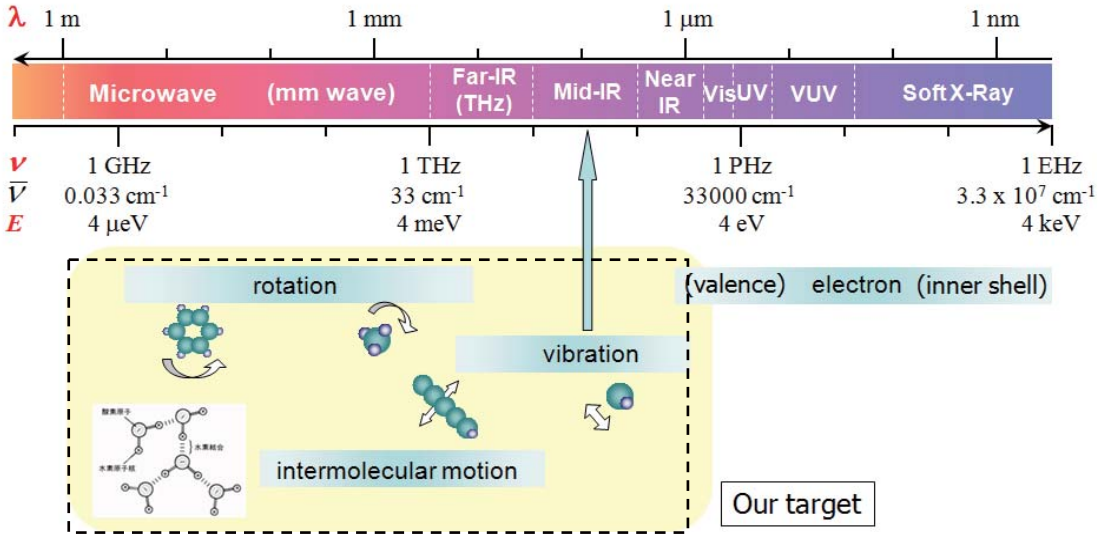


Fig. 4 The relationship between wavelength (frequency) regions and excitation processes of molecule.

参考文献

［1］ A. Yokoyama, T. Takayanagi, and G. Fujisawa, J. Chem. Phys. **103**, 1710 (1995).

［2］ H Akagi, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, J. Chem. Phys. **120**, 4696 (2004).

［3］ H. Akagi, H. Fukazawa, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, J. Chem. Phys. **123**, 184305 (2005).

［4］ T. Takayanagi and A. Yokoyama, Bull. Chem. Soc. Jpn. **68**, 2225 (1995).

［5］ K. Hosaka, R. Itakura, K. Yokoyama, K. Yamanouchi, and A. Yokoyama, Chem. Phys. Lett. **475**, 19 (2009)

［6］ H. Akagi, T. Otobe, A. Staudte, A. Shiner, F. Turner, R. Dörner, D.M. Villeneuve, and P.B. Corkum, Science **325**, 1364 (2009)

［7］ T. Otobe, M. Yamagiwa, J. -I. Iwata, K. Yabana, T. Nakatsukasa, and G. F. Bertsch, Phys. Rev. B 77, 165104 (2008)

［8］ T. Otobe, K. Yabana, and J. -I. Iwata, J. Phys.: Condens. Matter 21, 064224 (2009)

This is a blank page.

４．第 11 回光量子科学研究シンポジウム　ポスター発表

The 11th Symposium on Advanced Photon Research

– Posters

This is a blank page.

4.1 粒子線によるDNA損傷メカニズム：電場の効果
DNA Damage Mechanism Irradiated by Particles: Effect of Electric Fields

森林健悟
原子力機構　量子ビーム応用研究部門

Kengo MORIBAYASHI
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Abstract. This paper discusses the effect of the electric fields produced from water molecular ions in the body on the DNA damage by the irradiation of particles of proton and α particles with the energy of 200 keV/u – 1 MeV/u. The water molecules are ionized through particle impact ionization processes and become the ion. It is found that the strength of the electric field increase with the cross section of particle impact ionization processes.

keywords: DNA damage, proton and α particle irradiation, electric field, impact ionization cross sections

1. はじめに

重粒子線によるがん治療は、陽子線やX線に比べて効率良い治療法であり、実用化されている[1]。しかしながら、何故、効率が良いのかは不明であり、「仮説」は数多存在するものの統一見解は得られていない。たとえば高密度に損傷が生じている「クラスター損傷」部位がその違いの一端を担っていると信じられているが、その実体はほとんど分かっていない[2]。重粒子線と陽子線との最大の違いは、衝突電離断面積である[3]。この衝突電離断面積は、平均自由行程、すなわち、粒子線が生体中を通過するとき電離を起こしてから次に電離を起こすまでの距離を作りだす。すなわち、重粒子線の方が陽子線よりも衝突電離断面積が数倍大きく、衝突電離過程を起こす間隔が短い。この距離の短さが高密度に損傷を起こす要因となると考えられ、クラスター損傷の仮説へと発展した。この距離の短さは他に電離したイオンが作る電場の大きさを変える働きがある。しかしながら、この電場の効果を調べた研究はなく、本論文ではじめて議論する。

粒子線が生体内に入ると生体内の分子（主に水）と相互作用を起こし、分子を電離させ、電子を発生させるが、ここで発生した電子は直接、DNA を損傷させる（直接作用と呼ぶ）か又は他の水分子と相互作用しOHラジカルを発生させ、このラジカル分子がDNAを損傷させる（間接作用と呼ぶ）と考えられている。先に述べた電場は、この電子の運動に影響を与え、粒子線の軌道付近に電子をトラップさせる(図１(a))[4,5]と共に他の分子やDNAを電離させる[6](図１(b))可能性がある。これらの効果は、粒子線の軌道付近に多くの電子やラジカル分子を発生させ、それが先に述べたクラスターDNA 損傷につながる可能性があるので、電場を評価することは重要となると

考えることができる。

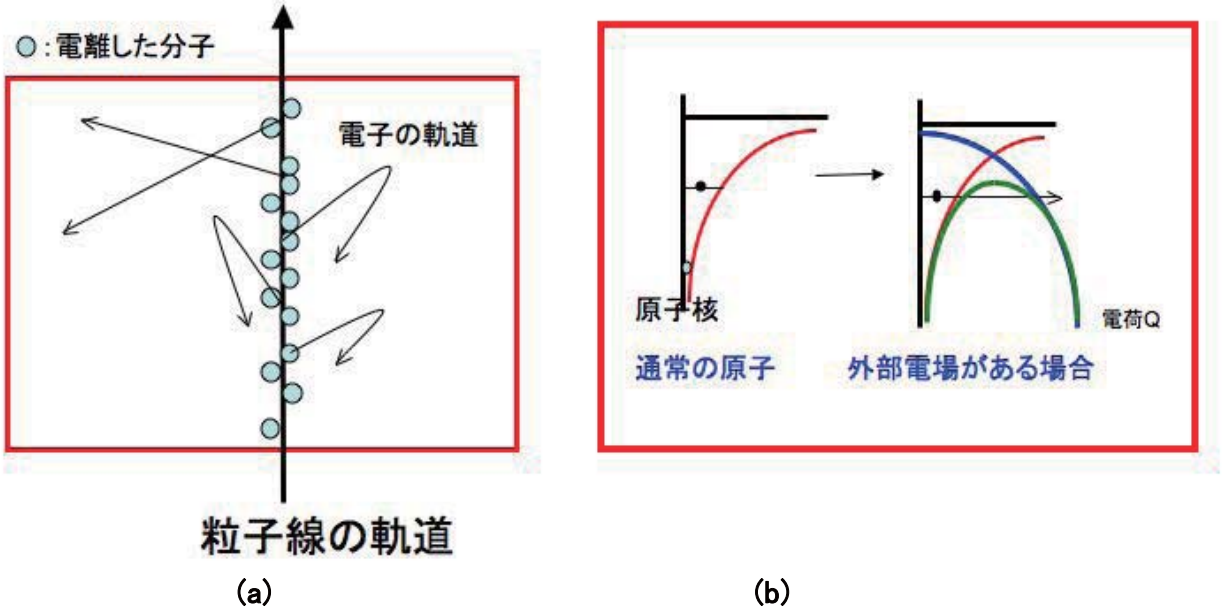


図1 (a)粒子線が生体中を通過したとき、衝突電離過程で発生する電子が電離した分子が作り出す電場の影響を受ける様子及び(b)この電場による電場電離のメカニズム。

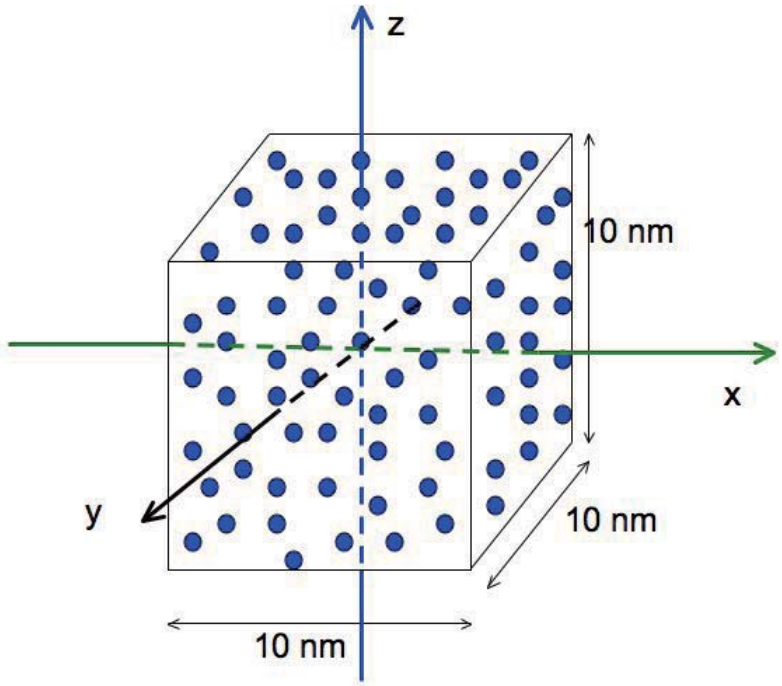


図2　標的の形、大きさ、及び x，y，z 軸の取り方を示す。●は水分子を表す。

2. 計算モデル

計算モデルは以下の通りである。

(i) 標的の形を立方体とし、その各辺の長さを 10 nm とし、x、y、z 座標は図２のように取る。(ii) 標的中には水分子が存在するとし、分子間距離を 0.3 nm 以上、分子の密度を $3\times10^{22}/cm^3$ になるようにランダムに配置させる。(iii) 粒子線のエネルギーを決めて、標的の下の面の中心(0, 0, -5 nm)から粒子を照射させて、標的中を運動させる。(iv) それぞれの水分子の中心に衝突電離断面積を与えて、粒子線がその断面積を通過したとき、水分子を電離させる。これらの断面積は陽子線、α線に対して、それぞれ、文献[7]、[8]の値を用いる。 (v) 水分子の配置を数 100 通り変えて、それぞれの配置に対して x 軸上の電場を計算し、その平均値を求める。

3. 結果と議論

図３に様々なエネルギーの陽子と重粒子の１つであるα粒子が標的中を通過したとき、衝突電離過程で生成するイオンが作る電場と X の値の関係を示す。図からα線の方が陽子線よりも数倍強い電場を作ることがわかった。また、エネルギーと共に電場は小さくなるが、200 keV/u - 500 keV/u の間では、α粒子はほとんど変化しないのに対して陽子線は小さくなることもわかった。エネルギーが 1 MeV/u になると両方の粒子とも電場は小さくなる。ここで生成する電場は、衝突電離断面積に依存するが、炭素線では、数 MeV/u のエネルギーの断面積がα線の 200 keV/u と同等である [3]ので、電場も数 MeV/u の炭素線と数 100 keV/u のα線とで同等であると考えることができる。

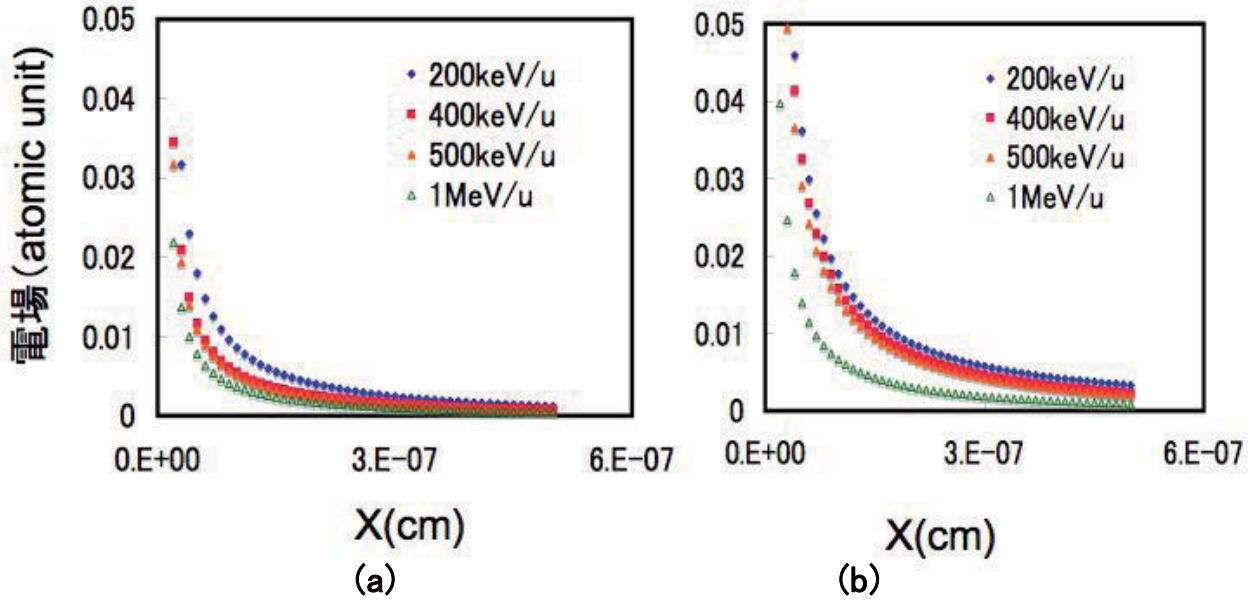


図３　粒子線の衝突電離で生成するイオンが作る電場と x の値:粒子の種類は(a)陽子線、(b)α線、粒子線のエネルギーはそれぞれ、◆200keV/u、■400 keV/u、▲500 keV/u、△1 MeV/u。

電場は電子を軌道付近にトラップすると共に電場電離で DNA 損傷を起こし、DNA 損傷を拡大させる効果があることが考えられるが、α粒子や炭素線の方が陽子線よりも強い電場を作りだすことは、この電場の効果が１節の最初に述べたがん治療の高効率の理由の解明に寄与する可能性があることを示唆している。

4.まとめ

陽子線、α線（重粒子線の１つ）が生体内に侵入したとき、衝突電離過程で生成するイオンが作る電場の大きさを計算した。α線の方が陽子線よりも数倍強い電場を作ることがわかった。すなわち、ここで生成される電場は電子を軌道付近にトラップすると共に電場電離で DNA 損傷を起こし、DNA 損傷を拡大させる効果があることが考えられ、電場の効果が重粒子線によるがん治療の高効率の理由の解明につながる可能性がある。今後は、電子の運動の電場の影響、電場による電離の確率等を計算し、電場の効果が DNA 損傷に重要かどうか検討する。

謝辞

本研究を遂行するに当たって、ご助言いただいた生命科学の研究者である赤松憲博士、鹿園直哉博士、横谷明徳博士、渡辺立子博士、藤井健太郎博士、斉藤公明博士、田中敦博士（以上原子力機構）、入来仁隆氏、土田秀次博士、伊藤秋男教授（以上、京大）に感謝したいと思います。

参考文献

[1] http://www.nirs.go.jp/, http://www.hibmc.shingu.hyogo.jp/

[2] private communications with Dr. Akamastu and Dr. Shikazono.

[3] C.D. Cappello *et al*.,*Nucl.Ins.Meth.Phys.Res.B*, **267**, 781 (2009)

[4] K.Moribayashi, *J.Phys.B*. **43**, 165602 (7 page) (2010).

[5] K.Moribayashi, *Phys. Rev.A*. **80** 025403-1-025403-4 (2009).

[6] T.Nakamura, Y. Fukuda, and Y. Kishimoto, *Phys. Rev. A* **80** 053202 (2009).

[7] S. Uehara *et al*., *Rad. Phys. Chem*. **59**, 1 (2000).

[8] S. Uehara and H. Nikjoo, *J. Phys. Chem. B*, **106**, 11051 (2002).

4.2 XFEL 照射により放射線損傷を伴う生体分子の回折像強度
Diffraction Intensity of Biomolecules with Radiation Damage by XFEL Irradiation

甲斐健師
日本原子力研究開発機構

Takeshi KAI
Japan Atomic Energy Agency

Abstract. We calculated diffraction intensity of biomolecule with radiation damage by x-ray free electron lasers (XFEL) irradiation using a developed model for radiation-damage considering photoionization, Compton scattering, Auger decay, electron-impact ionization and electric field ionization. We performed the parameter survey for the radiation damage with various XFEL parameters and target radius of clusters. In the case of the x-ray energy 12 keV, we found that the upper limit of incident x-ray flux was in the order of 10^{19} photons/mm^2, and the obtained average number of photons for elastic scattering at 0.1 or more region of momentum transfer was in the order of 10^{-2} photons/pixel even if pulse width became 1 fs.

Keywords: X-ray free electron laser, Radiation damage, Biomolecule

1. はじめに

近年、日本、アメリカ、ヨーロッパの各拠点で、X線自由電子レーザー(XFEL)の開発が進んでいる[1-3]。XFELはコヒーレント性が非常に高く、高強度(~1×10^{22} photons/pulse/mm^2)であるため、単分子状態での生体分子の立体構造決定が可能となることが期待されている。多くの医薬品の標的蛋白質分子は生体膜に埋め込まれて働く膜蛋白質分子で、その測定は蛋白質の結晶化が極めて困難であることから、この全く新しい方法での立体構造決定への期待は大きい。高強度X線を生体分子に照射すると、弾性散乱光の強度が増加するため高分解能の回折像が得られる。しかしながら、高強度X線を生体分子に照射すると放射線損傷も伴う。そのため生体分子の立体構造決定には放射線損傷の評価が必要不可欠となる [4-12]。XFELによる生体分子の立体構造決定には放射線損傷が抑制され、且つ十分な弾性散乱光を測定できる照射条件を求めなければならない。

近年、生体分子の放射線損傷を評価するために粒子コードを用いた詳細シミュレーションの結果が報告され、生体分子内部に生成される電場による電場電離過程が損傷に大きく寄与することが解明された[11]。しかしながら、様々なパラメータ条件による生体分子の損傷は評価されておらず、立体構造決定のための最適条件は得られていない。本研究では生体分子の放射線損傷を評価するために、解析に必要不可欠な原子過程として、光吸収電離

過程、コンプトン散乱、電子衝突電離過程、オージェ過程、電場電離過程を考慮した簡易モデルの開発を行い、生体分子の立体構造決定のための最適条件を求めるための研究を行った。

2. 計算手法

生体分子は主に水素、炭素、窒素、酸素原子から生成されており、その組成比は H:C:N:O=5:3:1:1 である。本研究では生体分子を炭素と水素の組成比が 1 対 1 のクラスターと見なし、放射線損傷の評価を行う。クラスターの比重は生体分子と同程度の 1.35g/cm^3 とした。生体分子に高強度 X 線を照射すると X 線との直接的な損傷過程である光吸収電離及びコンプトン散乱が引き起こされる。これを 1 次損傷と呼ぶ。さらに 2 次損傷として電子衝突電離、オージェ過程及び電場電離過程による損傷が考えられる。

本研究における放射線損傷モデルについて簡単に述べる。光吸収電離により生成された光電子は非常に高速であるためクラスター外部に飛び出すことが可能である。本研究では時々刻々と変化するクラスターの電荷密度を空間一様であると仮定した。入射 X 線はガウス分布であると仮定した。光吸収電離過程、コンプトン散乱、オージェ過程、電子衝突電離過程については空間一様に起こると仮定した[12]。電場電離に関しては、空間に強く依存しているため空間依存性を考慮した。これらの各原子過程の反応確率を用いたレート方程式を時間・空間について解くことにより、原子及びイオンの各電子状態の位置及び時間に関する原子密度 $N_i(r, t)$ が求まる。最終的に時間・空間平均をとったクラスター内部の炭素の平均束縛電子数を用いて放射線損傷の評価を行う。

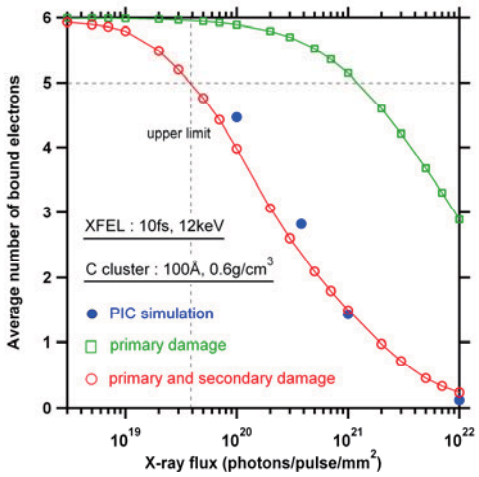


図 1．パルス幅 10fs, X 線エネルギー12keV, クラスター半径 100Å のときの平均束縛電子数.

3. 結果と考察

本研究による簡易モデルの精度を確認するために Nakamura ら[11]による先行研究の結果との比較を行った。計算条件は X 線エネルギー12keV、パルス幅 10fs、クラスター半径 100Å、比重 0.6g/cm^3 である。さらに 1 次損傷と 2 次損傷による生体分子への損傷の寄与について調べた。図 1 の計算結果より、1 次損傷よりも 2 次損傷の方がクラスター損傷に大きく寄

与していることが分かる。本研究の計算結果は粒子コードを用いた Nakamura らの粒子コードの結果と良く一致した結果が得られた。平均束縛電子数が 5.0 になるときを入射 X 線の上限であるとすると、この計算条件では 4×10^{19} photons/mm^2 が入射 X 線数の上限値となる。

XFEL 照射によるクラスター損傷の上限値を評価するために、平均束縛電子数が 5.0 になるときのパルス幅、X 線エネルギー及び標的半径の関係について調べた。それらの結果を図 2 に記す。これらの計算結果から入射 X 線のエネルギーを増加させることにより、より多数の X 線を標的に照射することが可能になることが分かる。これは光吸収電離断面積がエネルギーの 3.5 乗で減少するためである。さらに標的半径が増加すると入射 X 線数を減少させなければならないことが分かる。これは標的が大きくなると飛び出す光電子の数も増加し、標的の電荷数が高くなるため電場電離がより早く起こるからである。

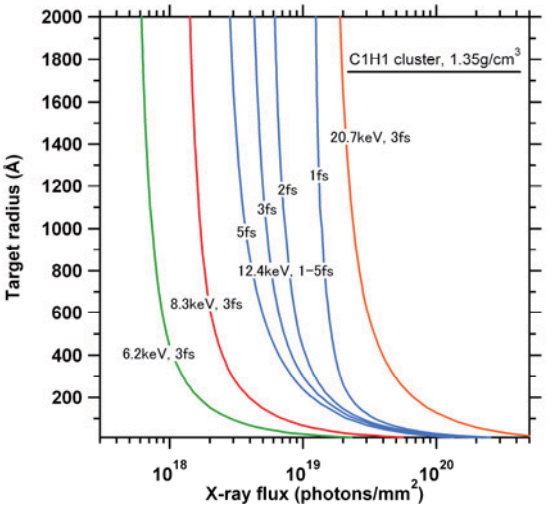


図 2. 平均束縛電子数が 5.0 になるときのパルス幅、X 線エネルギー及び標的半径.

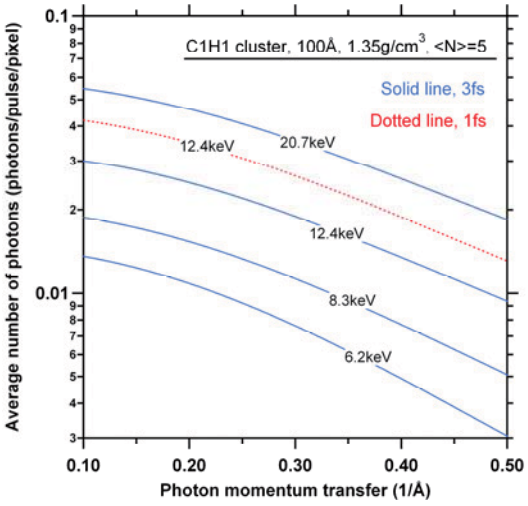


図 3. 弾性散乱による 1 ピクセルあたりの平均光子数.

上述のように様々な XFEL パラメータ及び標的半径による生体分子の放射線損傷について評価を行ってきた。次に弾性散乱により得られる光子数の評価を Huldt ら[13]の手法を用いて行う。図 3 にパルス幅 1fs 及び 3fs、入射 X 線エネルギー 6.2 ～ 20.7keV、クラスター半径 100 Å のときに得られる 1 ピクセルあたりの平均光子数の値を示す。入射 X 線のエネルギーを増加させると弾性散乱により得られる光子数は増加することが分かる。光吸収電離断面積はエネルギーの 3.5 乗で減少するため入射 X 線のエネルギーを増加させると損傷は抑制されるが、弾性散乱が起こる確率もエネルギーの 2 乗で減少する。そのため入射 X 線のエネルギーを増加させても弾性散乱により得られる光子数は 1.5 乗に比例する程度となる。XFEL がパルス幅 3fs、入

射 X 線エネルギー20.7keV の条件で、弾性散乱光の運動量移行が 0.2(1/Å)であると 1 ピクセルあたりに得られる光子数は 0.05 個であることが分かった。

4. まとめ

XFEL 照射による生体分子の損傷を研究するために原子素過程として光吸収電離過程、コンプトン散乱、オージェ過程、電子衝突電離過程及び電場電離を考慮した簡易モデルの開発を行った。本研究の結果より、放射線損傷のパルス幅、入射 X 線数及び標的半径依存性が具体的に評価され、さらに弾性散乱により得られる光子数も具体的に評価された。今後の展開として、生体分子の立体構造決定に適した条件を求めるために様々なパラメータによる放射線損傷を評価することや、電子及びイオンダイナミクスを考慮した詳細シミュレーションコードの開発等が挙げられる。さらに放射 X 線損傷を伴う弾性散乱光強度の評価を行うことで生体分子の立体構造決定のための最適条件が求められることが期待できる。

謝辞

本研究を遂行するに当たって、ご助言いただいた郷信広教授、河野秀俊博士、徳久淳師博士、福田佑仁博士に感謝致します。また、本研究は、「X線自由電子レーザー利用推進課題研究」（文部科学省）のサポートの基に遂行しております。

参考文献

[1] http://xfel.desy.de/ for The European x-ray laser project XFEL

[2] http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls/ for LCLS project.

[3] http://www.riken.jp/XFEL/eng/index.html for Japanese XFEL project

[4] R. Neutze, R. Wouts, D. Spoel, E. Weckert E, and J. Hajdu, Nature **406** 752 (2000).

[5] S.P. Hau-Riege, R. London, and A. Szoke, Phys. Rev. E **69** 051906 (2004).

[7] K. Moribayashi, J. Phys. B **41** 085602 (2008).

[8] K. Moribayashi and T. Kai, J. Phys: Conference series, **163** 012097 (2009).

[9] T. Kai and K. Moribayashi, J. Phys: Conference series, **163** 012035 (2009).

[10] C. Gnodtke, U. Saalmann, and J. M. Rost, Phys. Rev. A **79** 041201 (2009).

[11] T. Nakamura, Y. Fukuda, and Y. Kishimoto, Phys. Rev. A **80** 053202 (2009).

[12] T. Kai, Phys. Rev. A. in press (2009).

[13] G. Huldt, A. Szoke, and J.Hajdu, J. Struct. Biology. **144** 219 (2003).

4.3 細胞内器官の蛍光顕微鏡像と軟 X 線顕微鏡像との直接比較

Direct Comparison of Soft X-ray Images of Organelles with Optical Fluorescence Images

石野雅彦 [1)]、加道雅孝 [1)]、保智己 [2)]、安田恵子 [2)]、篠原邦夫 [3)]、三方裕司 [2)]、
岸本牧 [1)]、錦野将元 [1)]、大場俊幸 [1)]、海堀岳史 [1)]、河内哲哉 [1)]
[1)] 日本原子力研究開発機構、[2)] 奈良女子大学、[3)] 早稲田大学

Masahiko ISHINO[1)], Masataka KADO[1)], Satoshi TAMOTSU[2)], Keiko YASUDA[2)], Kunio SHINOHARA[3)], Yuji MIKATA[2)], Maki KISHIMOTO[1)], Masaharu NISHIKINO[1)], Toshiyuki OHBA[1)], Takeshi KAIHORI[1)], and Tetsuya KAWACHI[1)]
[1)] Japan Atomic Energy Agency, [2)] Nara Women's University, [3)] Waseda University

Soft x-ray microscopes operating in the water window region are capable of imaging living hydrated cells. Up to now, we have been able to take some soft x-ray images of living cells by the use of a contact x-ray microscope system with laser produced plasma soft x-ray source. Since the soft x-ray images are different from the optical images obtained with an ordinary microscope, it is very important to identify what is seen in the x-ray images. Hence, we have demonstrated the direct comparison between the images of organelles obtained with a fluorescence microscope and those with a soft x-ray microscope. Comparing the soft x-ray images to the fluorescence images, the fine structures of the organelles could be identified and observed.

Keywords: Soft x-ray microscopes, Comparison of images of organelles

1. はじめに

酸素と炭素の K 殻吸収端に挟まれた「水の窓」と呼ばれる波長領域（λ = 2.3–4.4 nm）の X 線を利用する軟 X 線顕微鏡は、水溶液中の生きた細胞を高い空間分解能で観察可能な技術である[1]。また、電子顕微鏡で必要とされる染色や切片化を必要とせず、細胞試料を無加工、非破壊で観察できるメリットもある。現在までに、レーザープラズマ X 線を光源とした密着法により、ヤツメウナギの網膜細胞や生きた精巣ライディッヒ細胞の軟 X 線像を無染色で取得することに成功しているが[2]、軟 X 線顕微鏡により得られる像は細胞内器官による X 線吸収像であるため、従来の光学顕微鏡の像とは異なるコントラストで観察される。軟 X 線顕微鏡により細胞内器官の微細構造の観察や構造変化に伴う機能発現を明らかにするためには、取得した軟 X 線像上の構造を同定する必要があり、軟 X 線顕微鏡開発の中の重要な課題の一つに挙げられる。

本研究では、細胞内器官を蛍光標識した同一の細胞試料を蛍光顕微鏡と軟 X 線顕微鏡を用いて観察した像を直接比較することにより構造の同定を試みた。比較の結果、同一の器官構造が軟 X 線顕微鏡で詳細に観察されていることが確認できた。

2. 実験

2.1. 密着型軟X線顕微鏡

密着型軟X線顕微鏡は、高い空間分解能（< 100 nm）と広い視野を同時に実現できる顕微法である。光源となる軟 X 線は、波長 1053 nm、出力 10 J、パルス幅 600 ps の Nd:glass レーザーを焦点距離 150 mm のレンズで金ターゲット（厚さ 50 μm）上に集光することによって生成される「水の窓」X線を用いた。レーザーの集光サイズは直径約 100 μm であり、ターゲット上での集光強度は 2.1 x 10^{14} W/cm^2 程度である[3]。細胞試料は真空中においても水溶液中に保持される必要があることから、Figure 1 に示すステンレス製の密封容器に閉じ込めた状態でX線源（ターゲット）から 20 mm 離れた位置に配置した。

密封容器内で細胞試料は、窒化シリコン（Si_3N_4）膜とポリメタクリル酸メチル樹脂（PMMA）に挟み込まれている。Si_3N_4 膜はX線窓であり、PMMA が写真フィルムの役割を果たす。Si_3N_4 膜を透過したX線は生物試料を照射し、試料のX線吸収率を反映した強度のX線が PMMA に到達する。Si_3N_4 膜の厚さは 200 nm であり、X線窓の大きさ（1 mm x 1 mm）が軟X線顕微鏡の視野となる。X線照射後の PMMA を現像処理することにより、試料のX線吸収コントラストに応じた凹凸が PMMA 表面に生じる。密着法は、PMMA 表面に現れた凹凸を読み取ることによりX線像を得る手法であり、我々は原子間力顕微鏡を用いて凹凸の読み取りを行っている。

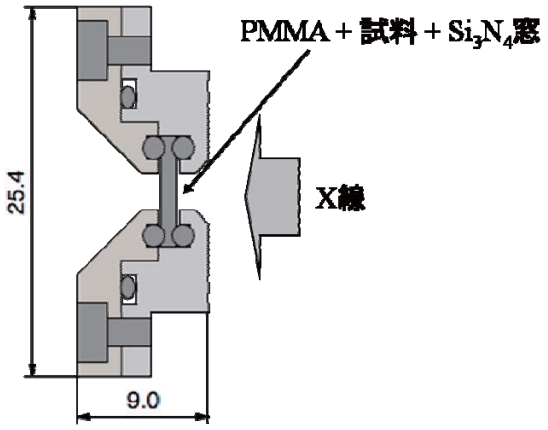


Fig. 1. Schematic diagram of sample holder.

2.2. 顕微鏡像の比較実験

軟X線顕微鏡が能力を発揮するには、得られたX線像に「何」が写っているのかを特定する必要があり、軟X線顕微鏡開発の重要な課題にもなっている。そこで、同一の試料を光学顕微鏡（蛍光顕微鏡）と軟X線顕微鏡で観察し、得られた像を直接比較することによりX線像に写る細胞内器官の同定を行った。Figure 2 に顕微鏡観察の手順を示す。

実験にはマウスの精巣ライディッヒ細胞を用いた。X線窓となる Si_3N_4 膜上で培養した細胞を4%パラフォルムアルデヒドで固定した後に蛍光標識を施した。試料として、細胞骨格と核をファ

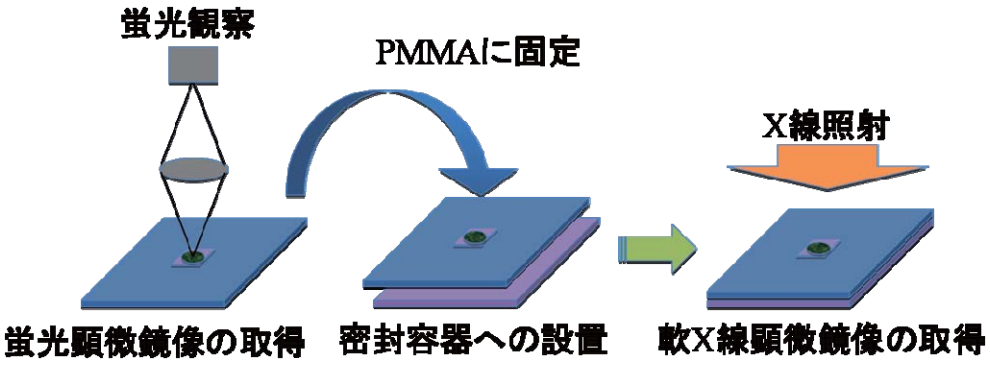


Fig. 2. Schematic diagram of experimental procedure.

ロイジンと DAPI で標識した細胞と、ミトコンドリアを Mito Tracker Red で標識した細胞を用いた。そして、蛍光標識を施した試料を蛍光顕微鏡と軟 X 線顕微鏡により観察（撮像）し、得られた像の比較を行った。

3. 実験結果と考察

Figure 3 に細胞骨格と核に染色標識を施した細胞試料の蛍光顕微鏡像と軟X線顕微鏡像を、Figure 4 にミトコンドリアを蛍光標識した細胞試料の蛍光顕微鏡像と軟X線顕微鏡像を示す。いずれの軟X線像にも蛍光顕微鏡と同一の構造が良く再現されていることが確認できる。

Figure 3 に示す軟X線像には細胞外にも何らかの構造を確認することができる。これらの構造物の同定については、今後の課題である。また、Figure 3 や Figure 4 には蛍光顕微鏡像に写る核の位置と軟X線顕微鏡像にある核の位置が若干異なっている箇所や、細胞周辺にある構造物が移動している箇所が認められる。細胞内器官や周辺構造が移動した原因として、試料の不適切な保持方法が考えられている。本実験の軟X線顕微鏡像の取得時には、細胞を挟み込んだ密封容器内を鉛

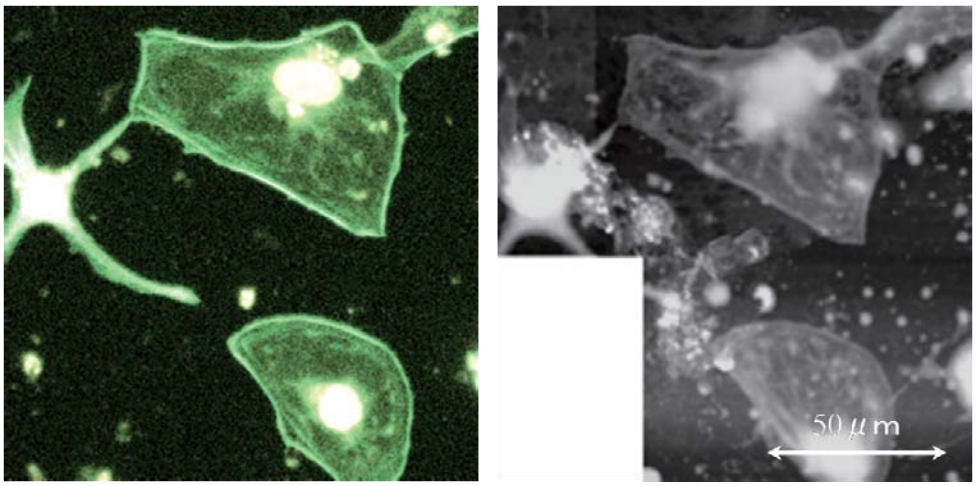


Fig. 3. Fluorescence microscope image (left) and soft x-ray microscope image (right) of Leydig cells stained with Phalloidin and DAPI to label actin filaments and nuclei.

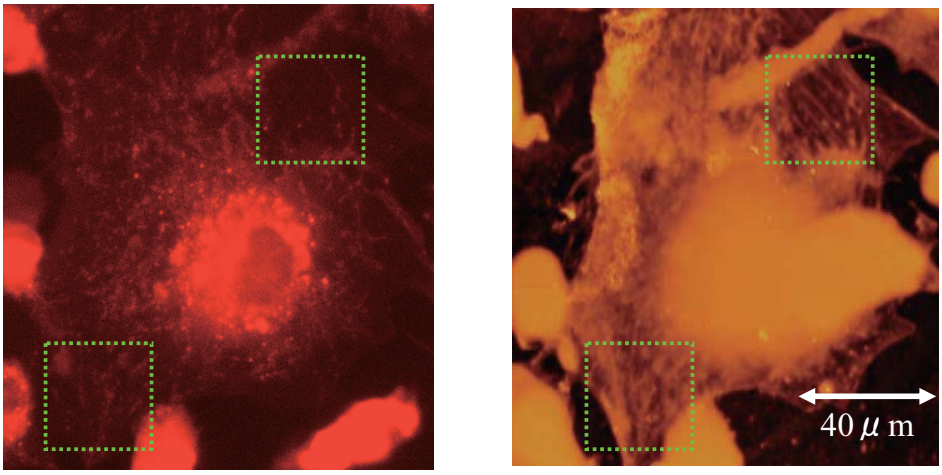


Fig. 4. Fluorescence microscope image (left) and soft x-ray microscope image (right) of Leydig cells stained with Mito Tracker Red to label mitochondria.

直方向に固定した。これにより試料が重力の影響を受け、X線像では異なった位置に構造物が現れることになったと推測される。細胞を入れた試料容器を鉛直方向に固定することは細胞自身にとっても負荷となることから、密封容器内を水平方向に固定する改造を進めている。

4. まとめ

軟X線顕微鏡により得られた細胞内器官の微細構造の観察や構造変化に伴う機能発現を明らかにするためには、取得した軟X線像に写る構造を同定する必要がある。そのための技術開発として、同一の細胞を蛍光顕微鏡と軟X線顕微鏡を用いて観察し、得られた顕微鏡像を直接比較することにより構造の同定を試みた。実験の結果、軟X線顕微鏡により得られたX線像に写る細胞内器官の同定に成功した。

参考文献

[1] 例えば、J. Kirz and D. Sayre, “Prospect and problems in x-ray microscopy”, Springer Series in Optical Science **43**, X-Ray microsciroscopy, Springer-Verlag (1984), pp. 262–267.

[2] 加道雅孝, 石野雅彦, 錦野将元, 長谷川登, 大場俊幸, 森道昭, 西内満美子, 篠原邦夫, 水谷治央, 山本容正, 平井到, 保智己, 安田恵子, 金城康人, “レーザープラズマ軟X線顕微鏡による生細胞の観察”, 光・量子デバイス研究会 **OQD-09-43**, 電気学会研究会資料 (2009).

[3] M. Ishino, M. Kado, M. Nishikino, K. Shinohara, S. Tamotsu, K. Yasuda, N. Hasegawa, M. Kishimoto, T. Ohba, and T. Kawachi, “Observations of the intense soft x-ray emissions from ultra thin Au films irradiated with high contrast laser pulses”, Proc. SPIE **7589**, 75891B (2010).

4.4 Development of Silver Tape Target System for 0.1-Hz Repetition X-ray Laser

Masaharu Nishikino, Yoshihiro Ochi, Noboru Hasegawa, Tetsuya Kawachi, Toshiyuki Ohba,
Takeshi Kaihori, and Keisuke Nagashima
X-ray Laser Application group, Quantum Beam Science Directorate,
Japan Atomic Energy Agency

The development of continuous pumping to the target system is an important issue for realizing an x-ray laser with the high repetition rate. We have developed a 13.9 nm XRL using a silver tape target and demonstrated a highly coherent XRL with an oscillator-amplifier configuration using two tape target systems and the TOPAZ laser system with a 10-J and a 0.1-Hz repetition rate. The output energy is comparable to the x-ray laser generated with a silver-deposited slab target, and the pointing stability using the new tape target system is better than conventional slab target.

Keywords: X-ray laser, tape target, High repetition

1. Introduction

The improvement of XRL generation so as to have a high repetition rate will open up the possibility of still more new applications. In last decade, progress in reducing the required pump energy for the x-ray lasing and raising the repetition rate has been achieved by adopting new technologies; The transient collisional excitation (TCE) scheme[1, 2] using chirped pulse amplification (CPA)[3] enables us to obtain XRLs with a pumping energy of about 10 J under the normal incident pumping geometry, and recently it was reported that 0.1 Hz operation was realized by the development of a CPA laser using Nd:glass zigzag slab amplifiers.[4] Moreover, grazing incidence pumping (GRIP)[5] has made possible 5-10 Hz operation of a gain-saturated XRL using a tabletop CPA Ti:Sapphire laser system with the pumping energy of 1 J.[6] In the GRIP configuration, the pumping energy is significantly reduced by the adjustment of energy deposition region. Recently, experimental studies to achieve fully spatial and temporal coherence have been reported using an injection-seeded GRIP-XRL with high-order harmonics of an optical laser.[7] Under such circumstances, the continuously supply targets is an important issue for realizing an XRL with the high repetition rate. With optical field ionization[8] and discharged capillary plasma XRLs[9] which use a gaseous target, highly coherent XRL operation with a repetition rate of up to 10 Hz has been achieved. In the cases of TCE XRLs using a solid target, a fresh part of the target material is required for every laser shot. Thus, the number of the XRL shots is limited typically to 15-20 shots by the size of the solid target. In order to a realize larger number of continuous shots, a variety of target configurations has been developed, such as a disk target,[10] drum target,[11] and tape target.[12, 13] In the case of the disk and the drum target, the number of shots is still limited by the target size. In contrast to these targets, a single long tape makes it possible the large number of continuous shots without replacing the target. While the tape target has been used to continuously supply targets for the generation of incoherent x rays or high energy ions, no

significant results have been reported in tape target XRL development up to now. An XRL employing the quasi-steady state (QSS) collisional excitation scheme requires a gain medium length of about 25 mm to attain gain saturation intensity.[14] It is difficult to maintain the flatness of the surface of such a wide tape target. Employing the TCE scheme, a higher gain coefficient of 30-80 per centimeter has been achieved, and a gain medium length of only 4-6 mm is sufficient for the generation of the XRL with saturated intensity.[15] As a result, a TCE XRL can be generated with a shorter flat length of the tape target than a QSS XRL. Here, we describe the generation of a 13.9 nm XRL using a silver (Ag) tape target and the demonstration of a highly coherent XRL produced with an oscillator-amplifier configuration[16, 17] using two tape target systems and TOPAZ laser system[4].

2. Tape target sysytem

For the generation of a Ni-like Ag XRL, the Ag target must have a flat surface like a commercial Ag foil or an Ag film deposit on the polished surface of a glass slide. The thickness of the Ag layer need only be the laser ablation depth of a few μm, but a thin Ag foil has the risk of breaking after ablation by the laser shot and during the rotation of tape. Therefore, we used 30-μm and 50-μm thick Ag tape targets for the XRL generation. Even when the thickness of the Ag tape target is 30-50 μm, since the tape at the irradiation position of the laser shot is broken by the ablation shock wave, the width of the tape needed to be larger than the length of the line focus of the pumping laser. In the case of line focus length of 7 mm, it was necessary for the stable XRL generation that a 15-mm wide tape target with the thickness of 30 μm be used. A photograph of the tape target driver is shown in Fig. 1. The direction of the XRL was parallel to the surface of the tape target. The main components of the tape target driver were two DC motors coupled with planetary gear mechanisms and a tape head. These motors and gear mechanisms are specialized for vacuum use. One DC motor was mounted on the upper-mounted spool and rolled up the Ag tape between the laser irradiation periods. The other DC motor was mounted on the lower-mounted spool and pulled the tape in the direction opposite that in which it moves during the operation. When the torque of the upper-mounted motor was greater than that of the lower-mounted motor, the Ag tape target was tightly stretched, and sufficient flatness of the surface of the tape target was realized at the laser irradiation position. When the imprint of laser irradiation is made on the tape target every 10 mm, it is possible for the tape target driver to maintain the flatness of the tape target.

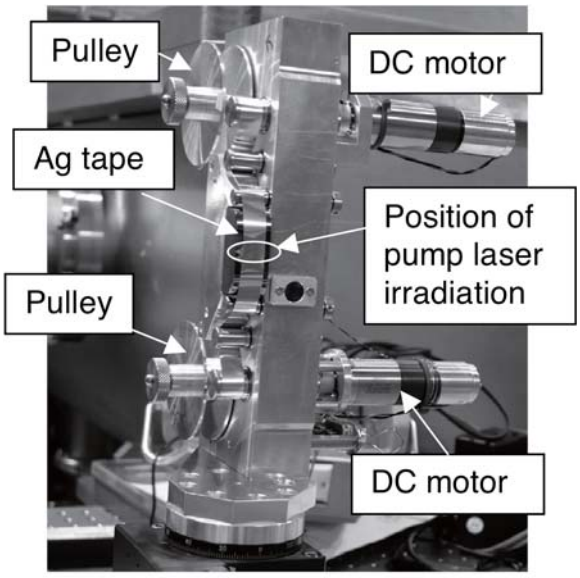


Fig. 1. Photograph of tape target system

3. Experimental setup

The Ag tape target was irradiated with a pumping laser beam from the pumping laser system using a Ti:sapphire regenerated amplifier" operating at 1.053 μm. We have already constructed and demonstrated a nickel-like Ag laser at wavelength of 13.9 nm using an Ag deposited slab target and the TOPAZ laser system.[4] The pumping laser was normally incident to the target, and focused to a line shape of 20 μm width and 7 mm length on the target by quasi-traveling-wave pumping using a 4-step mirror.[15] The irradiation consisted of two laser pulses, the duration of each pulse being 4 ps with a pulse-to-pulse separation of 1.2 ns. The total pumping energy of the first and second target was set to 5 and 7 J, respectively. The energy ratio of a prepulse to the main pulse was 1:8 on the target. The contrast ratio of the ASE level to the peak intensity was about 5×10^{-4}, and the pedestal level of the main pulse was about 1×10^{11} W/cm^2. The XRL beam was reflected on a molybdenum-silicon multilayered mirror with an incident angle of 45° and filtered with a zirconium foil. The far-field pattern (FFP) and time-integrated energy of XRL were obtained with an x-ray CCD camera.

4. Experiment

We carried out an experiment comparing the XRLs generated by the slab and by the tape target using one beam of the TOPAZ lasers. Figure 2(a) shows an FFP of the XRL from the Ag deposited slab target. The beam divergences along vertical and horizontal axes were 7 and 5 mrad FWHM, respectively. The output energy was about 2 μJ. Figure 2(b) shows an FFP of the XRL from an Ag tape target with 30-μm thickness. The beam divergences along vertical and horizontal axes were 5 and 7 mrad FWHM, respectively. The output energy was about 1.5 μJ and the FFP was a rounder pattern than the XRL from the slab target. The target surface is on the right-hand side in the figure, and the refraction angle was 6 mrad from the target surface in both cases. These XRL beams were considered in the gain-saturated region by comparison with the output energy of previous experimental results[4]. Figure 2(c) shows an FFP of the XRL from an Ag tape target with 50-μm thickness. The FFP image when the thickness of the tape target was 50-μm was similar to when the thickness was 30-μm, but the output energy of XRL decreased to about 1/3 that of the 30-μm thickness target. The 50-μm thickness tape target was hard, and

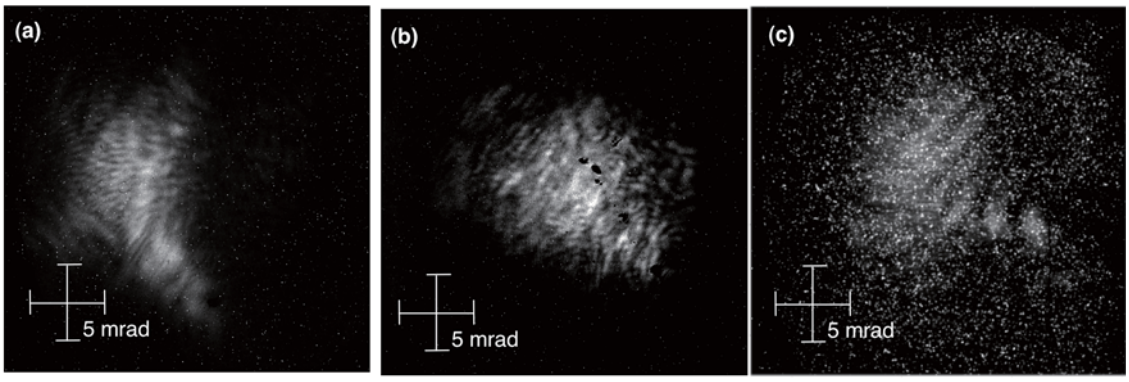


Fig. 2. FFPs of (a) the XRL using Ag deposited slab target, (b) the XRL using Ag tape target with 30-μm thickness, and (c) the XRL using Ag tape target with 50-μm thickness.

therefore the tape target drive system could not pull the target with sufficient tension. When the tape was pulled only by the upper mounted motor, there was no tension on the tape, and the XRL was not generated. Therefore, the flatness of the tape target needed for the XRL generation was found to be achieved with the tension induced by the lower mounted motor.

5. Summary

We have constructed and demonstrated a XRL using an Ag tape target for continuous XRL generation. The output energy and divergence are comparable to the XRL from a slab target. The installation of new tape target systems for the oscillator-amplifier configuration was successful, and a highly coherent XRL was generated with a 0.1 Hz repetition rate using the TOPAZ laser system.

References

[1] P.V. Nickles *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78**, 2748(1997).
[2] J. Dunn *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2825(1998).
[3] D. Strickland and G. Mourou, Opt.Commun. **56**, 219 (1985).
[4] Y. Ochi, N. Hasegawa, T. Kawachi, and K. Nagashima, Appl. Opt. **46**, 1500 (2007).
[5] R. Keenan *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 103901(2005).
[6] J. J. Rocca *et al.*, Opt. Lett. **30**, 2581 (2005).
[7] Y. Wang *et al.*, Nature Photonics. **2**, 94 (2008).
[8] S. Sebban *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 3004 (2001).
[9] Y. Liu *et al.,* Phys. Rev. A **63**, 033802 (2001).
[10] Y. Hironaka, Y. Fujimoto, K.G. Nakamura, and K. Kondo, Appl. Phys. Lett. **74**, 1645 (1999).
[11] T. Mochizuki, Proc. SPIE **3886**, 306 (2000).
[12] Y. Hisada, P. Abraha, K. Takamoto, N. Yamaguchi, and T. Hara, Jpn. J. Appl. Phys. **37**, 5071 (1998).
[13] E. Fill, J. Bayerl, and R. Tommasini, Rev. Sci. Instrum. **73**, 2190 (2002).
[14] H.Daido *et al.*, Opt. Lett. **21**, 958 (1996).
[15] T. Kawachi *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 033815 (2002).
[16] M. Tanaka *et al.*, Opt. Lett. **28**, 1680 (2003).
[17] M. Nishikino *et al.*, Phys. Rev. A **68**, 061802(R)

4.5 フェムト秒レーザーアブレーションにおけるパルスの蓄積効果

Incubation Effect of Femtosecond-laser Ablation

山本 稔 [1,2]，長谷川 登 [2]，寺川 康太 [3]，梅田 善文 [1]，富田 卓朗 [1]，
越智 義浩 [2]，河内 哲哉 [2]，大場 俊幸 [2]，海堀 岳史 [2]，南 康夫 [3]，末元 徹 [3]
徳島大院工 [1]，原子力機構・量子ビーム応用 [2]，東大物性研 [3]
Minoru YAMAMOTO[1,2], Noboru HASEGAWA[2], Kota TERAKAWA[3], Yoshifumi UMEDA[1],
Takuro TOMITA[2], Yoshihiro OCHI[2], Tetsuya KAWACHI[2], Toshiyuki OOBA[2], Takeshi KAIHORI[2],
Yasuo MINAMI[3], and Tohru SUEMOTO[3]
The Univ. of Tokushima[1], QuBS JAEA[2], ISSP The Univ. of Tokyo[3]

Laser ablation was performed on Pt thin film (thickness: 300nm) with the femtosecond Gaussian laser beam (wavelength: 800 nm, pulse duaration: 70 fs). In this experiment, the soft X-ray laser (wavelength: 13.9nm, pulse duration: 7ps) interferometry based on the double-Lloyd's mirror and atomic force microscopy (AFM) were used to evaluate the surface displacement caused by femtosecond-laser multiple irradiation. We observed the incubation effect of laser pulses for lower fluence (1.0 J/cm^2). At this fluence range, the sample surface dilates for the intial several laser pulses. After several shots, boring process started and the sample surface was ablated monotonically. We revealed that femtosecond-laser ablation shows nonlinear behavior for the lower fluence.

……..

Keywords: Laser Ablation, Soft X-ray Laser Interferometer, Surface morphology, Incubation Effect

1．序論

近年，フェムト秒レーザー照射により誘起されるアブレーションや表面構造変化において，ナノ秒パルスや連続波のレーザーでは見られなかった現象が数多く報告されている．例示すると，1 レーザーパルス照射あたり非常に浅い加工が起こる低アブレーションレート領域の存在[1]，照射波長よりも短い周期をもつ微細周期構造の自発的な形成[2]などがあげられる．これらの現象はナノメートルスケールの加工手法として注目を集めており，産業応用の観点からも期待されている．

レーザー加工の特性を評価する代表的なパラメータとして，アブレーションレートがあげられる．アブレーションレートとは加工深さをショット数で平均したものであり，そのフルエンス依存性を測定することにより加工深さを制御するための指標とすることができる．1 レーザーパルス照射あたり平均的に数 nm ずつ加工が起こるという低アブレーションレート領域の存在が Hashida らよって報告されているが，このアブレーションプロセスについては，ショット毎に一定の低いアブレーションレートで加工が起こっているのか，それともある程度のショットが蓄積して急激に加工が起こっているのか明らかにされていない．そこで，本研究の目的は低フルエンスのフェムト秒レーザーパルス照射によるショット毎の加工特性やパルスの蓄積効果を明らかにすることとした．

上記研究を遂行するために，我々はコヒーレント軟 X 線パルスレーザーをプローブ光とし，フ

ェムト秒レーザー照射領域をその場観察することができる干渉計を構築した．この干渉計，原子間力顕微鏡(AFM ： Atomic force Microscope)，走査型電子顕微鏡(SEM ： Scanning Electron Microscope)を用いることにより，フェムト秒レーザーアブレーションにおけるパルスの蓄積効果を評価した．その結果，1.0J/cm^2 という低フルエンス領域においてパルス照射毎に平均して加工が起こるのではなく，パルス照射の効果がある程度蓄積して加工が起こることが明らかになった．

2. 実験

アブレーション用の光源として，フェムト秒チタンサファイアレーザー(繰り返し周波数：10Hz，波長：795nm，パルス幅：70fs)を用い，白金試料(厚さ:300nm)表面に焦点を合わせて垂直入射で照射した．電動シャッターを用いて 1 パルスずつ照射されるように開閉時間を調整してレーザーパルス照射回数を制御し，1 から 10 ショットまで 1 ショットずつフェムト秒レーザーパルスを照射したサンプルを作製した．また，フルエンスの違いによるパルスの蓄積効果を比較するために，1.0J/cm^2，1.7J/cm^2 とピークフルエンスを変えた照射を行った．なお，白金膜は溶融石英基板上にイオンビームスパッタ(IBS)法にて成膜されたものである．

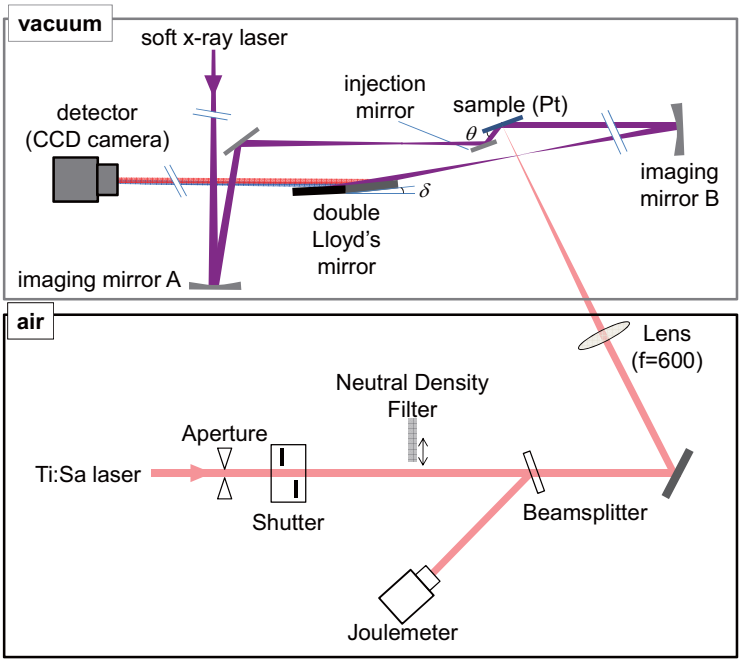


Figure 1. Experimental setup for *in-situ* observation of femtosecond-laser pulse incubation effect.

さらに，低フルエンスレーザー照射領域をその場観察するために軟 X 線レーザーをプローブ光とする干渉計を用いた．軟 X 線レーザーは日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所で開発された空間コヒーレンスの高いプラズマ軟 X 線レーザー(繰り返し周波数：0.1Hz，波長：13.9nm，パルス幅：7ps)である[3]．軟 X 線レーザー干渉計は，Figure 1 に示すように微小角をつけた 2 枚の白金コートミラー(double Lloyd's mirror)を用いて干渉縞を得ることで，試料表面の凹凸を高感度でイメージングすることができる．この干渉計は既報のとおり，横方向約 1.5μm，深さ方向約 1nm の分解能を達成している[4]．干渉計測では，干渉縞のシフト量から深さ方向の情報，また干渉縞のシフト方向から正の変位(凸)あるいは，負の変位(凹)かどうかを見積もることができる．今回，左側への干渉縞のシフトは正の変位，右側へのシフトは負の変位に対応している．また，解析を行う上で 1 フリンジシフト，すなわち干渉縞の縞と縞の間隔は 20nm の表面凹凸に相当する．

軟 X 線レーザー干渉計を用いた観測では，20nm 以上の表面変位を観測することが困難であるため，AFM(TOPOMETRIX Explorer)によるレーザー照射領域の観察を併用して行った．探針は窒化ケイ素(Si_3N_4)を材料としたものを用い，試料表面に探針を接触させてカンチレバーの変位から表面形状を測定するコンタクトモードで測定した．また，レーザー照射領域の表面形状を SEM(Hitachi S4700)により観察し，表面形状を評価した．

3. 実験結果と考察

Figure 2 にピークフルエンス 1.0J/cm^2 のフェムト秒レーザーパルスを単発照射した際に得られた(a)干渉像および(b)地形回復像を示す．フェムト秒レーザーを照射した領域において，左側への干渉縞のシフトが起こっており，膨らみが発生していることがわかる．干渉計により得られたレーザー照射領域の断面図を同図(c)に示す．同図(c)は，(b)における A-B 間の断面である．フェムト秒レーザーパルスを 3 回以上照射している領域は，表面変位量が干渉計で計測できる範囲を超えていたため AFM によって観察を行い，照射回数を増やした際の表面変位量の変化を求めた．

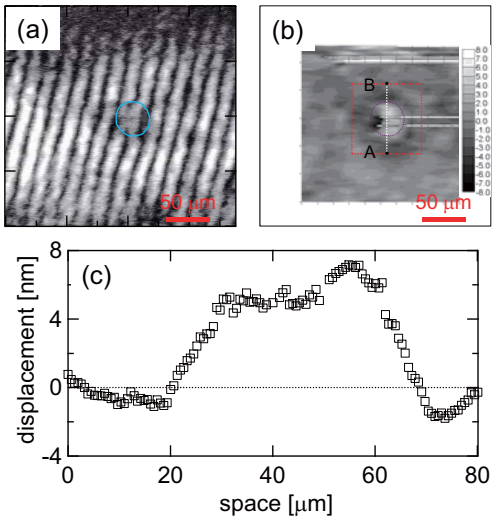


Figure 2. Interferometric image of single shot laser irradiation region with the fluence of 1.0 J/cm^2.

ここで, 横軸を照射回数, 縦軸を最大表面変位量としてプロットしたグラフを Figure 3 に示す．なお，同図(a)はピークフルエンス 1.0J/cm^2，(b)はピークフルエンス 1.7J/cm^2 の結果であり，それぞれレーザー照射領域の中心部における表面変位をプロットしている．低フルエンスである 1.0J/cm^2 の結果では，最初の数ショットの間に膨らみが発生しており，その後掘削に転じるという特異な振る舞いが観測された．一方，1.7J/cm^2 の結果では，ほぼ線形に穴があいていくことがわかる．これらの結果からピークフルエンスの違いにより，加工プロセスが異なることが明らかになった．

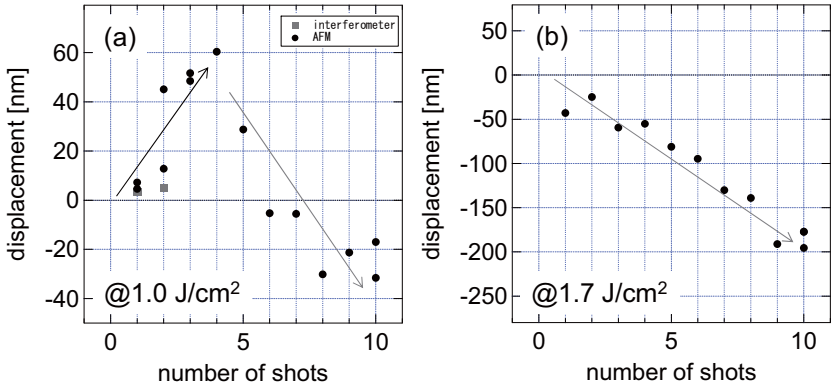


Figure3. Development of surface displacement obtained by multi laser shots for 70 fs laser pulse.

低フルエンスにおいて膨らみが発生する過程を明らかにするために，レーザー照射領域における表面形状の SEM 観察を行った. その結果を Figure 4 に示す. なお, Figure 4 に示したものは Figure 3 (a)におけるピークフルエンス 1.0J/cm^2 のフェムト秒レーザーパルスを 3 回照射した領域である．同図(b)-(d)からわかるように，バブル構造が形成され，それらがはじけて固まったような形状をしている．このような構造は，白金[5]だけでなく，金[5]やニッケル[6]でも報告されている．

バブルの大きさに着目すると，照射領域の中央から外周部へ向かうにしたがって小さくなって

いくことがわかる．すなわち，ビーム強度の強い中央付近では大きなバブル構造が形成され，ビーム強度の弱い外周部では小さなバブル構造が形成されている．このようなバブル構造の分布は，ガウシアン型のビームプロファイルを反映した結果であると考えている．また，同図(e)に示すように大きなバブル構造が小さなバブル構造を内包するように分布していることがわかる．このようなバブル構造の形成に伴って低密度の領域が発生した結果，表面の膨らみが発生したと考えられる．

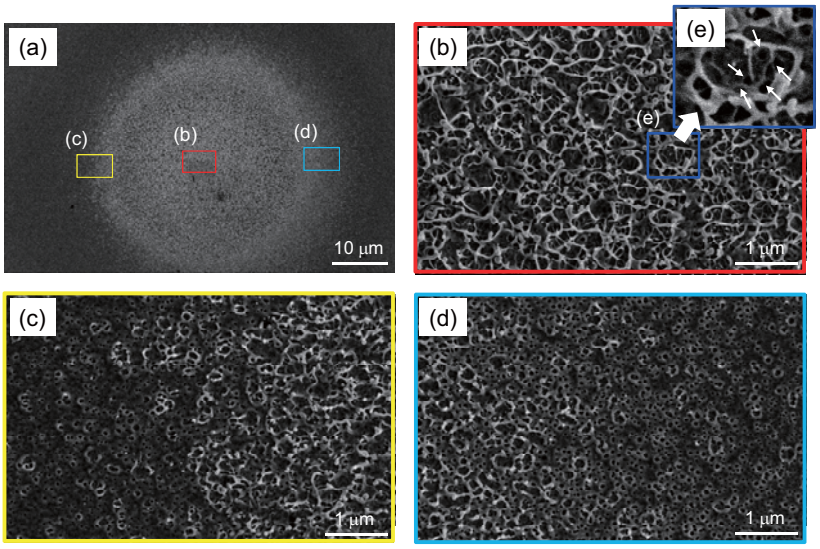


Figure4. SEM image of femtosecond-laser ablation region irradiated with three laser shots.

4. 結言

低フルエンス(ピーク値：1.0 J/cm^2)と高フルエンス(ピーク値：1.7 J/cm^2)において，軟 X 線レーザー干渉計や AFM，SEM を用い，フェムト秒レーザーパルスを積算照射した際に起こるアブレーション過程をショット毎に観察した．高フルエンスでは，ほぼ線形に穴があいていく加工が起こるが，低フルエンスでのアブレーションにおいて，数回目の照射までは表面に数 nm から数十 nm までの膨らみが発生していることが明らかになった．膨らみが発生している領域ではバブル構造が形成されており，その結果として低密度な状態を形成し，膨らみが生じていると結論付けた．このような低フルエンスにおけるアブレーション過程をナノメートルスケールの加工手法として応用していくためには，より詳細にそのメカニズムを明らかにしていく必要がある．

参考文献

[1] M. Hashida, A. Semerok, O. Gobert, G. Petite, and J. F. Wagner : Proc. SPIE **4423** (1999), pp.178-185.

[2] T. Tomita, K. Kinoshita, S. Matsuo and S. Hashimoto : Jpn. J. Appl. Phys. , **45** (2006), pp.L444-L446.

[3] Y. Ochi, T. Kawachi, N. Hasegawa, M. Nishikino, T. Ohaba, M. Tanaka, M. Kishimoto, T. Kaihori, K. Nagashima, and A. Sugiyama: Jpn. J. Appl. Phys. **48** (2009), 120212 (pp.1-3).

[4] T. Suemoto, K. Terakawa, Y. Ochi, T. Tomita, M. Yamamoto, N. Hasegawa, M. Deki, Y. Minami, and T. Kawachi : Optics Express, **18** , No. 13 (2010) , pp.14114-14122.

[5] A. Y. Vorobyev, V. S. Makin, and Chunlei Guo : J. Appl. Phys., **101** (2007), 034903(pp.1-4).

[6] W. Jia, B. Zhou, X. Li, L. Chai, R. Zhang, and C. Wang : Chinese Optics Lettters, **8**, No.1, (2010), pp.38-40.

4.6 低エネルギー軟 X 線平面結像型回折格子の開発

Development of Low Energy Soft X-Ray Flat-Field Grating

今園孝志、河内哲哉、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
小枝勝、長野哲也、笹井浩行、大上裕紀、米澤善央、倉本智史
株式会社 島津製作所 デバイス部
佐野一雄
島津エミット株式会社
Takashi IMAZONO, Tetsuya KAWACHI, Masato KOIKE
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency
Masaru KOEDA, Tetsuya NAGANO, Hiroyuki SASAI, Yuki OUE, Zeno YONEZAWA, Satoshi KURAMOTO
Device Department, Shimadzu Corporation
Kazuo SANO
Shimadzu Emit Co., Ltd.

Soft X-ray emission spectroscopy (SXES) is a powerful tool to give information on the electronic structure of materials. Combining with transmission electron microscopy, SXES is expected to reveal physical properties and chemical bonding states of identified small specimen areas of various compounds. The existing SXES instruments for comventional transmission electron microscopes (TEM's) detect from 60 eV to 2000 eV. The extension of the energy range to a much wider range is necessary for applying to cutting edge material science. For this reason, a novel SXES development for TEM extends the energy range to be from 50 eV to 3800 eV by use of four gratings. A newly designed and fabricated grating is taking charge of the lowest energy range from 50 to 200 eV. The design and evaluation of diffraction efficiencies of the grating are described.

Keywords: Diffraction grating, Soft X-ray, Spectrograph, Diffraction efficiency

1. はじめに

軟Ｘ線発光分光法（SXES）は内殻電子を励起して生成した正孔に価電子帯電子が遷移する際放出される軟Ｘ線領域の発光（SXE）を分光計測する手法で、物性を支配する化学結合状態の情報を取得できるため物質・材料の評価法として有用である[1]。SXES と透過電子顕微鏡（TEM）を組み合わせた計測法（TEM-SXES）は、ナノスケール領域の構造評価とその化学結合状態の同定が可能で、物質・材料研究に極めて有用である。これまでに 60eV から 2 keV 超までのエネルギー領域をカバーする TEM-SXES 計測システムの開発に成功している[2, 3]。

近年、リチウムイオン電池に代表される二次電池材料や次世代ストレージ材料（In、Te 等）のナノスケール構造とその化学結合状態に対する関心は極めて高い。しかし、既存の TEM-SXES は Li-*K* から Te-*L* スペクトル領域（50-3800 eV）を計測することは出来ない。そこで、産業界等からの関心が極めて高い当該領域に対応する TEM-SXES 計測システムの研究開発に着手した。

50 eV から 3800 eV を 1 つの回折格子でカバーするのは難しく、エネルギー領域を 4 つに分割し、それぞれに最適化した回折格子を用いる手法をとることにした。本報告では、溝形状の異なる 2 種類のホログラフィック回折格子で、Li-*K* スペクトル計測を主目的とする低エネルギー領域（50-200 eV）用平面結像型回折格子（略称：JS50XL）の設計、製作、回折効率測定の結果について述べる。

2. 回折格子 JS50XL の設計

回折格子 JS50XL の設計指針は以下の通りである:(1)波長範囲:6-25 nm (参考: Li-*K* 54.3eV, 22.833 nm)、(2)入射角:86°、(3)中心刻線密度(中心での格子定数 *D* の逆数):1200 本/mm、(4)回折格子有効サイズ:46 × 26 mm^2(外形:50 × 30 mm^2)。(5)溝形状:ラミナー型及びブレーズド型。Fig.1 に JS50XL を用いた平面結像型回折格子分光器の構成を示す。光源から回折格子までの距離は 237.268 mm である。格子溝パターンを *y-z* 平面に投影した際の *y* 軸上の点 *w* で回折格子の溝番号 *n* を級数展開すると、

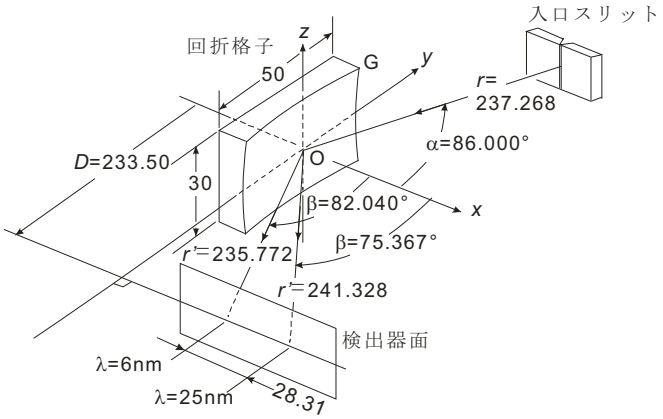


Fig.1. Schematic diagram of spectrograph

$$n = (1/D)(w + n_2 w^2 + n_3 w^3 + n_4 w^4) \tag{1}$$

と書ける。ここで、展開係数 n_2、n_3、n_4 は不等間隔溝を表すパラメータで、これらの具体的な値は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* と共に Table 1 に示されている [4]。展開係数は Table 1 の条件を満足する溝間隔が形成されるようにホログラフィック露光光学系を設計する。設計にはホログラフィック非球面波露光光学系[5]を想定した。露光パラメータは下記の通りである;レーザー波長 441.6 nm、$\gamma = -8.411943°$、$\delta = 22.558763°$、$R_C = 599.130$ mm、$p_C = 347.839$ mm、$q_C = 425.000$ mm、$R_D = \infty$、$r_D = p_D + q_D = 583.948$ mm、$\eta_C = -33.507853°$。なお、各露光パラメータの詳細については文献[5]を参照されたい。

次にラミナー型とブレーズド型の溝設計について述べる。効率が最大となる波長をλ_p、その時の回折角をβ_pとする。ラミナー型の場合、一般に最適溝深さ *h* は、1 次光が溝の凸部と凹部で正反射された光の位相が強め合う条件[6]から

$$h = \lambda_p / 2(\cos\alpha + \cos\beta), \tag{2}$$

と表される。一方、ブレーズド型回折格子の場合のブレーズ角θ_Bは

$$\theta_B = (\alpha + \beta)/2, \tag{3}$$

と表される。回折効率はラミナー型、ブレーズド型ともに最大効率波長の短波長側では長波長側に比較して変化が急なため、最短波長と最長波長での効率のバランスがとれるようにするため、波長範囲が 6-25 nm の場合、$\lambda_p \sim 10$ nm とする。$\lambda_p = 10$ nm、入射角$\alpha = 86°$、刻線密度 $1/D = 1200$ 本/mm とすると、回折角$\beta_p = -80.252704°$となる。ラミナー型の場合(2)式より $h = 20.915$ nm となる。また、ブレーズド型の場合

Table 1 Optimized radius of curvature of the grating and expansion factors, n_2, n_3, and n_4, of the groove number, *n*, when the groove pattern is projected onto the *y-z* plane and the groove number at the point *w* on the *y*-axis is series expanded.

R (mm)	n_2(mm^{-2})	n_3(mm^{-3})	n_4(mm^{-4})
3960	-3.39645×10^{-3}	1.35347×10^{-5}	-5.10467×10^{-8}

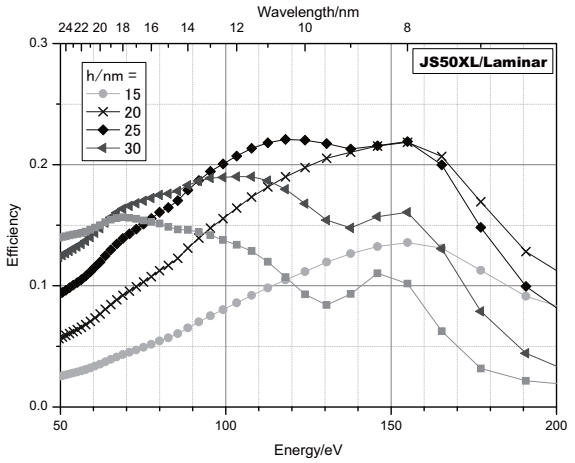


Fig.2. Calculated diffraction efficiencies of Au-coated laminar-type grating (α = 86°, a/D = 0.3). Groove depth, h, vs. the +1-st order diffraction efficiency.

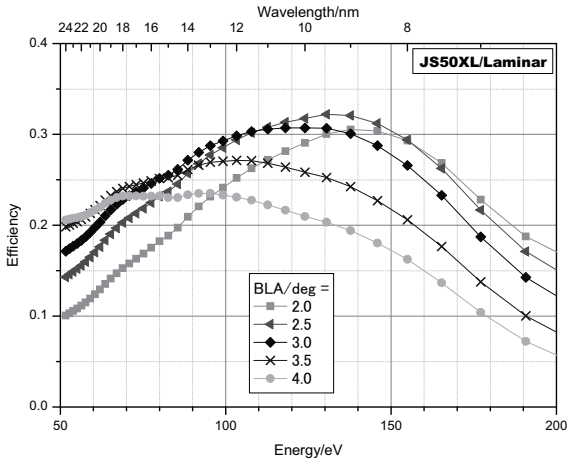


Fig.3. Calculated diffraction efficiencies of Au-coated blazed-type grating (α = 86°). Blaze angle (BLA), θ_B, vs. the +1-st order diffraction efficiency.

(3) 式よりθ_B = 2.873648°となる。

ラミナー型回折格子の格子面の凸部の長さ a と格子定数 D の比(duty ratio)を a/D = 0.3(一般に高い回折効率が得られる凸部と凹部からの寄与がほぼ等しくなる値)、入射角をα = 86°、蒸着物質を Au(膜厚:100 nm)とした時の回折効率(1 次光)のシミュレーション結果を Fig. 2 に示す。溝深さ h = 20~25 nm の時、全領域で効率が高くなることが分かる。また、Fig.3 は、ラミナー型と溝形状以外同じ条件で計算したブレーズド型回折格子の回折効率(1 次光)のシミュレーション結果である。ブレーズ角θ_B = 2.5~3.0°の場合、全領域で効率が高くなる。なお、回折効率の計算には市販のソフトウェア[7]を用いた。

3. 回折格子 JS50XL の製作と回折効率測定

回折格子の製作は前節の考察に基づいて島津製作所において行われた。ホログラフィック回折格子の基板には BK-7(ホウケイ酸クラウン光学ガラス)を用いた。50 倍の対物鏡を用いた干渉顕微鏡で測定した表面粗さは約 0.3 nm rms であった。露光光学系には第 2 節の非球面波露光光学系[5]を用いた。ラミナー型の格子溝の作製にはフォトレジストを現像してできる正弦波状の基板上のパターンをエッチングマスクとして用いた。この正弦波状の溝パターンに対し、CHF_3 による反応性イオンビームエッチング[8]を行うことで基板内にラミナー型またはブレーズド型の溝形状を作製する。この溝の上には約 50 nm 厚の Au 膜を蒸着した。溝形状は触針式表面形状計測器で測定した。

作製した 2 種類の回折格子について、まず、ラミナー型に関して述べる。作製したラミナー型回折格子の中心近傍における溝深さは 20.5 nm、duty ratio は 0.24 であった。また、溝深さの平均は 20.8 nm、duty ratio の平均は 0.28 であった。回折格子の効率測定は立命館大学 SR センター軟X線ビームライン BL-11 に設置された軟 X 線光学素子評価システム[9]を用いた。Fig. 4 は、ラミナー型回折格子の 0、1、2 次光の回折効率曲線である。実線は計算値である。54 eV 付近の 1 次光の回折効率は約 8%であった。

次に、ブレーズド型回折格子について述べる。ブレーズド型溝形状が回折効率に与える影響を考慮するため、実際に作製した回折格子(No. 3、4)の溝形状を表面形状計測器により測定した。この結果を基に 1 次光回折効率を計算し直した結果を Fig. 5 に示す(実線)。挿入図は両回折格子の溝形状である。また、ブレーズド型回折格子の回折効率の計算には市販のソフトウェア [10]を使用した。ラミナー型と同様に、作製した 2 つのブレーズド型回折格子の回折効率は軟 X 線光学素子評

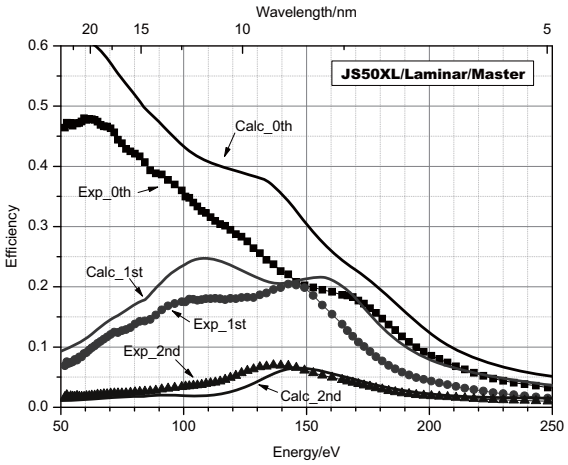


Fig.4. Measured diffraction efficiency curves of the laminar-type grating. The solid lines indicate the calculated results.

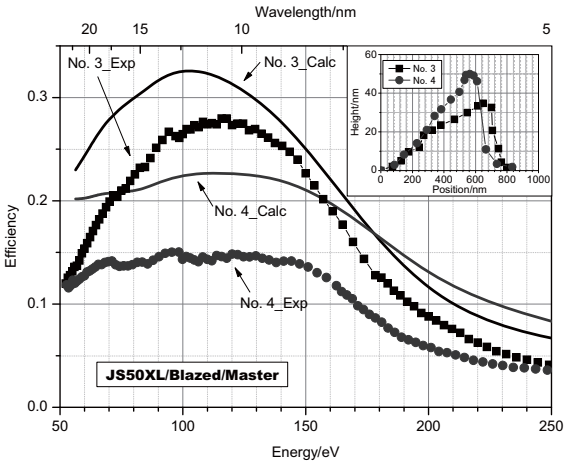


Fig.5. Measured diffraction efficiency curves of the blazed-type gratings. The solid lines indicate the calculated results. The inset indicates the groove shapes of the respective gratings measured by a profilometer.

価システムを用いて評価した(Fig. 5)。No. 3、4 の効率曲線は理論とも良く一致しているのが分かる。特に、No. 3 の場合、8-16 nm で 20%以上、24 nm でも 10%以上と、全測定波長域でラミナー型より高効率であった。この結果は回折効率の高いブレーズ型を TEM-SXES システムに採用するのが良いことを示唆している。しかし、図示していないが、ブレーズド型は 2 次光以上の高次光強度も十分強い。これは高次光を利用した高分解能計測には有利である一方、研究対象とする物質が単原子物質でない場合、他の物質からの高次光が計測対象とする SXE スペクトル領域に重なる可能性が出てくる。そのような場合、スペクトル分析には都合が悪いため高次光を低減できるラミナー型の方が良い。したがって、どちらの回折格子を採用すべきか十分に事前に検討する必要がある。

今回設計、作製、評価した 2 種類の平面結像型ホログラフィック回折格子 JS50XL は 50-3800 eV 領域の TEM-SXES 計測システムの低エネルギー側をカバーし、Li-*K* スペクトル計測の実用に耐えうる性能を有することが分かった。今後は、高エネルギー側をカバーする多層膜回折格子を開発していく予定である。

本研究の一部は科学技術振興機構産学協同シーズイノベーション化事業(育成ステージ)「ナノスケール軟 X 線発光分光システムの開発」として行われた。

参考文献

[1] T. Imazono, Y. Hirayama, S. Ichikura, O. Kitakami, M.Yanagihara, and M. Watanabe, Jpn. J. Appl. Phys. Part 1 43, 4334–4337 (2004).
[2] M. Terauchi and M. Kawana, Ultramicroscopy 106, 1069–1075 (2006).
[3] M. Terauchi, M. Koike, K. Fukushima, and A. Kimura, J. Electron Microsc., 59 (4), 251-261 (2010).
[4] M. Koike and T. Namioka, Appl. Opt., 33, 2048-2056 (1994).
[5] T. Namioka and M. Koike, Appl. Opt., 34, 2180-2186 (1995).
[6] K.-H. Hellwege, Z. Phys. 106, 588-596 (1937).
[7] GSOLVER V4.2c, Grating Solver Development Co., Allen, Texas, U.S.A.
[8] E. Ishiguro et al., Rev. Sci. Instrum., 63, 1439-1442 (1992).
[9] M. Koike et al., Rev. Sci. Instrum. 73, 1541-1544 (2002).
[10] PCGrate2000MLX, International Intellectual Group, Staten Island, N.Y., U.S.A.

4.7　同一の正分散媒質をパルス伸張・圧縮に用いた実用的フェムト秒チャープパルス増幅レーザーの開発

Research for Robust Femtosecond Chirped-Pulse Amplification Laser with an Identical Positive Dispersive Media as Pulse Stretcher and Compressor

赤羽 温、小川 奏、辻 公一、青山 誠、山川 考一
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
Yutaka AKAHANE, Kanade OGAWA, Koichi TSUJI, Makoto AOYAMA, Koichi YAMAKAWA
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

We have proposed and demonstrated a simple and robust femtosecond optical-parametric chirped-pulse amplification scheme in which an even order dispersion of an idler pulse is compensated by passing through an identical positive dispersive material used for temporal stretching a signal pulse. By compressing the idler pulses having a negatively chirp in this manner, high power sub-100 fs pulses were successfully obtained with only a transparent glass block used for the stretcher and compressor.

Keywords: Chirped-Pulse Amplification (CPA), Optical-Parametric Chirped-Pulse Amplification (OPCPA), Dispersion Compensation

1. はじめに

チャープパルス増幅(CPA)法を用いたフェムト秒高強度極短パルスレーザーは、材料の熱緩和時間より短時間で照射可能なため非熱加工が可能であり、レーザー加工等の産業分野で大きなアドバンテージを有している。しかしながら 21 世紀を迎えた今日でも高強度パルスレーザーの産業利用では Nd:YAG レーザーや CO_2 レーザーが主流でフェムト秒 CPA レーザーは存外普及が進んでいない。

フェムト秒 CPA レーザーの産業応用が進まない理由として装置の脆弱性が挙げられる。下の図1の様に CPA レーザーでは通常パルス伸張及び圧縮に回折格子対等の精密光学素子を用いるが、これら光学素子はホコリ等での汚染に弱く、また温度、湿度等環境の変化に弱くレーザー加工場の様な現場環境にはなじまない。またパルス圧縮時に増幅光の半分程度を失うという低伝送効率の問題もある。フェムト秒 CPA レーザーが産業分野に普及する為には上記の弱点を克服したシンプルで環境耐力が高く、高伝送効率のレーザー装置を構築する必要があり、本研究はこのレーザー装置の構築を目的としている。

2. アイドラー光パルス圧縮の原理

本研究では実用的 CPA レーザー装置を実現するために光パラメトリックチャープパルス増幅(OPCPA)時に発生するアイドラー光に着目した。光パラメトリック増幅(OPA)は位相共役過程であ

るため、アイドラー光の偶数次の波長分散の符号はシグナル光に対して反転する[1,2]。この性質から正分散媒質で正チャープにパルス伸張されたシグナル光に対して OPA 時に負チャープのアイドラー光が発生する。このアイドラー光はシグナル光をパルス伸張したのと同じ正分散媒質を通すことでパルス圧縮が可能で、パルス伸張・圧縮にガラスブロック等の正分散媒質のみを用いたシンプルで環境の変化に強いレーザー装置が構築可能である。

3. アイドラー光パルス圧縮実験

実証実験の配置を Fig.1 に示す。フェムト秒モードロック発振器のパルス幅 57 fs(FWHM)出力パルスを2つに分け、励起光源である Yb:YLF ポンプレーザー[3,4]及び OPCPA の種光として用いた。図2の Yb:YLF 再生増幅器での増幅光を2 ps までパルス圧縮し、2倍波に波長変換後 1 mm ϕ 程度にダウンコリメートして OPCPA のポンプ光として用いた。ポンプ光の OPA 結晶(BBO、長さ 7 mm)入射直前のエネルギーは 0.9 mJ で強度は 60 GW/cm^2 であった。OPCPA のシグナル光は長さ 5 cm の SF11 高分散ガラスブロックで 390 fs (FWHM)までパルス伸張された後に 1.1 mm ϕ にコリメートされ、OPA 結晶内で交差角 1.2 度でポンプ光と重ね合わされ、増幅された。OPA の利得は～10^3 程度でパイロディテクタで計測したアイドラー光エネルギー6.4 μJ と良い一致を示した。発生アイドラー光を球面ミラーで集光した後にシグナル光パルス伸張に用いたのと同一の SF11 ガラスブロックを透過させ,パルス圧縮した。パルス圧縮前後のアイドラー光のパルス幅はシングルショット自己相関器で計測した。

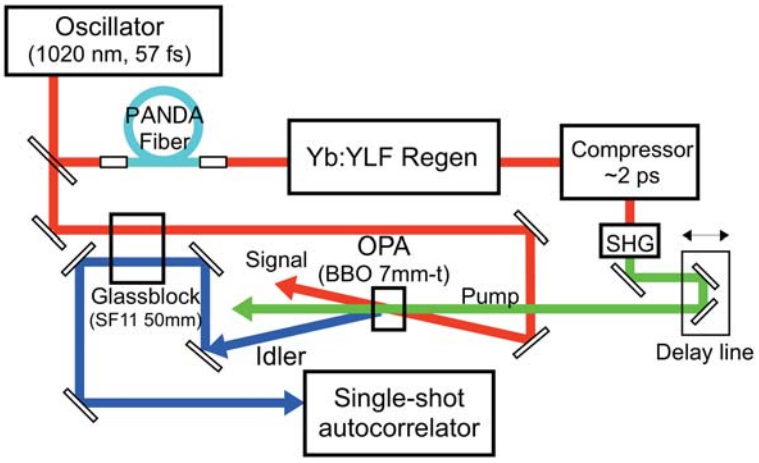


Fig.1 Experimental Setup of Idler Pulse Compression

4. 結果、考察

実験での OPA シグナル光及びアイドラー光のスペクトルを Fig. 2 に示す。アイドラー光の中心波長はシグナル光に対して 40 nm 程度短波長側にシフトしている。これは今回の実験での非同軸配置によるものである。パルス圧縮前後のアイドラー光の自己相関波形を Fig. 3 に示す。ガラスブロック再透過前のパルス幅 290 fs (FWHM) に対して透過後は 73.9 fs (FWHM)にパルス圧縮されていることを確認した。この圧縮後のアイドラー光パルス幅はフーリエ変換限界(59.3 fs)に比べて若干長いが、先ほどの非同軸配置に起因したシグナル光とアイドラー光間の波長シフトが原因である。波長 980 nm での SF11 ガラスブロックの群遅延分散は 1020 nm 波長のものと 440 fs^2 異なっており、この値は 19fs のパルス伸張に相当し、得ら

れたアイドラー光パルス幅とフーリエ変換限界との差とよく一致している。このような波長不一致はより同軸な OPA 配置をとることによりほぼゼロにすることができる。

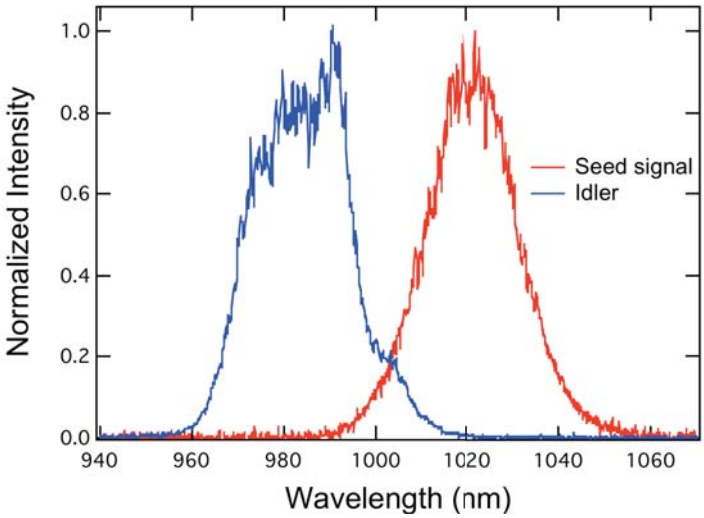


Fig.2　OPA Spectra of Signal (Red Line) and Idler (Dashed Line) Pulses. The Center Wavelength of the Idler Pulse was Shifted to ~40 nm with Respect to the Signal Pulse. FWHM Bandwidth of the Signal and Idler Pulses are 22 nm and 26 nm, Respectively.

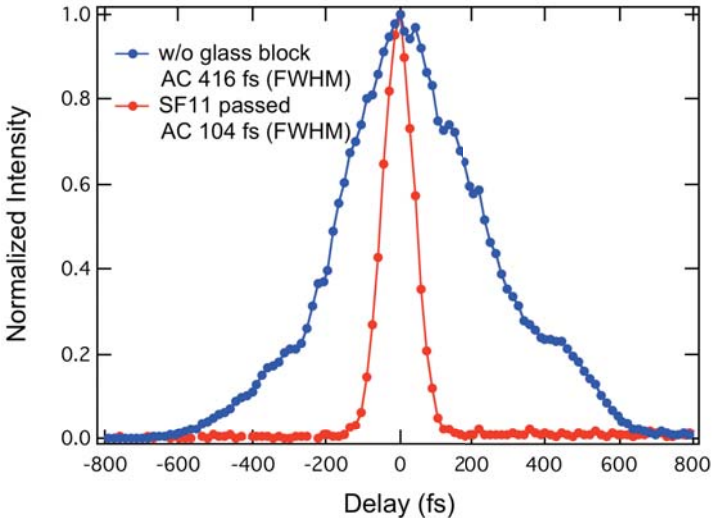


Fig. 3　Autocorrelation Traces of Idler Pulses. Autocorrelation Widths with (Red Line and Circles) and without (Blue Line and Circles) SF11 Glass Block were Measured to be 104 fs and 416 fs, Respectively. Pulse Durations of the Idler Pulses were 73.9 and 295 fs, Respectively.

なお、今回のアイドラーハルス圧縮手法では OPA 時に反転する偶数次の分散は補償されるが、奇数時の分散は補償されず、ガラスブロック透過毎にパルスに蓄積していく。本研究では実用時の残留 3 次分散の時間波形への影響を評価するために、シグナル光の 5ps パルス伸張時を想定して残留 3 次分散の計算を行った。その結果残留 3 次分散は $2x10^5$ fs^3 となり、Fig. 4 に示す時間波形の様にサブ 100 fs パルス発生に問題無いレベルであることを確認した。

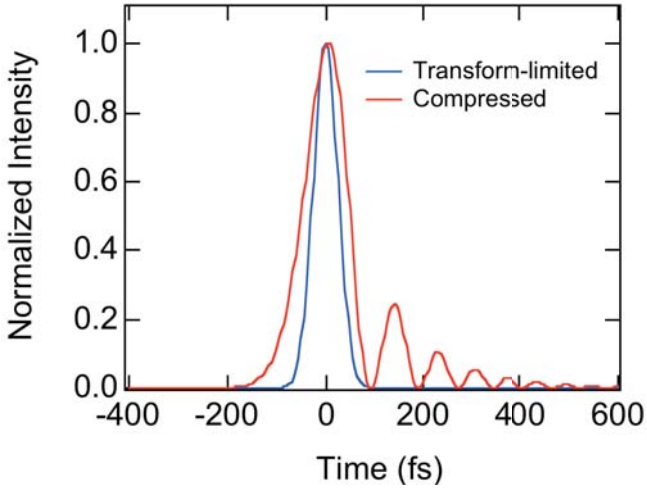


Fig. 4　Calculation Result of Tempporal Profile of Compressed Idler pulse with 75cm SF11 Glass Block for Pulse Stretcher and Compressor (Red Line). The Duration of the Compressed Pulse is 83.5 fs (FWHM). Blue Line is the Fourier Transform-Limited Pulse (57 fs (FWHM)).

5. おわりに

フェムト秒光パラメトリックチャープパルス増幅におけるアイドラー光を圧縮することでパルス伸張・圧縮に同一のガラスブロックを用いた CPA レーザーが構築可能であることを提案し実証した。実証実験ではパルス幅サブ 100 fs の極短パルスを容易に得ることが出来た。この手法を用いることでフェムト秒レーザー加工への応用はもちろん、他の多くの産業利用に供するシンプルで環境の変化に強く、高効率な高強度フェムト秒レーザーが実現することを期待される。

参考文献

[1] A. Piskarskas, A. Stabinis and A. Yankauskas, “Phase phenomena in parametric amplifiers and generators of ultrashort light pulses”, Sov. Phys. Usp. **29**, 869 (1986).

[2] I. N. Ross, P. Matousek, G. H. C. New and K. Osvay, “Analysis and optimization of optical parametric chirped pulse amplification”, J. Opt. Soc. Am. **B19**, 2945 (2002).

[3] J .Kawanaka, K. Yamakawa, H. Nishioka and K. Ueda, “30-mJ, diode-pumped, chirped-pulse Yb:YLF regenerative amplifier”, Opt. Lett. **28** 2121 (2003).

[4] K. Yamakawa, M. Aoyama, Y. Akahane, K. Ogawa, K. Tsuji, A. Sugiyama, T. Harimoto, J. Kawanaka, H. Nishioka and M. Fujita, “Ultra-broadband optical parametric chirped-pulse amplification using an Yb:$LiYF_4$ chirped-pulse amplification laser”, Opt. Expres. **15**, 5108 (2007).

4.8 保全分野に利用する核融合用マイクロカプセル作製技術

Application of the Nuclear Fusion Micro Capsule Manufacturing Technology to Facility Maintenance

伊東　富由美、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
Fuyumi ITO, Akihiko NISHIMURA
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Fine magnetic particles having UV fluorescence were specially developed in magnetic crack detection technique. To apply this technique for inspection on the heat exchanger tubes of aging nuclear power plants, hundreds micron sized capsules containing the fine magnetic particles were chemically synthesized. The resultant microcapsules indicated the collective sensitivity by distribution of leakage magnetic flux.

Keywords*:* **microcapsule, magnetic particle testing, magnetic crack detection.**

1. 目的

核融合エネルギーは地球温暖化・化石燃料問題等を解決する手段のひとつであり、大阪大学レーザーエネルギー学研究センターでは慣性核融合反応と呼ばれる研究が進められてきた。一方、核融合反応を起こすために燃料ターゲットとレーザーの制御は極めて重要であり精度向上の研究も並行に進められてきた。以前、報告者は燃料ターゲット開発に携わっており、この成果を応用する事で保全学に貢献する事が可能となる。本報告ではこの応用方法について述べる。

2. 実験

市販の蛍光磁粉を内包したマイクロカプセル(磁粉 MC)の作製を行った。エマルションを安定化させるために、油相(O 相)と水相(W1 相、W2 相)の密度を一致させ、重力の影響を緩和する方法（密度整合エマルション法）で作製し[1,2]溶媒散逸過程における O 相の壁膜の厚みを一様にする攪拌工程[3]を経て磁粉 MC を作製した。エマルションの W1 相は磁粉・界面活性剤・純水、W2 相は 5wt%ポリビニルアルコール水溶液、O 相はポリスチレンをベンゼンと 1,2-ジクロロエタンの混合有機溶媒に溶解させた溶液である。磁粉 MC の作製前に、これら 3 種類の溶液密度の調整を行う必要がある。W1 相・W2 相の密度は約 1.015 であるため、ベンゼンと 1,2-ジクロロエタンの比率を変化させることにより O 相の密度調整を行った。次に W1 相(3mL)と O 相(4.5mL)をサンプル瓶の中に入れ、攪拌することにより W1/O エマルションを作製した。溶媒の散逸により W1/O エマルションをカプセル化するため、このエマルションを W2 相(500mL)の入った 500mL ビーカ中に滴下し、70℃で 2 時間加熱攪拌を行うことで、O 相の混合有機溶媒を蒸発させた。その後、W2 相を取り除くための洗浄を行った。

3. 結果

MC に内包した磁粉量が多すぎると磁粉 MC の形状が球形ではなく楕円状に変形した。この原因として、W1 相・W2 相・O 相の密度不整合が考えられる。MC の作製過程において、重力を緩和した状態で作製する必要があり、W1 相・W2 相・O 相の密度整合は不可欠である。しかし磁粉 MC の場合、W1 相には沈殿する磁粉を含有させているため、W1 相・W2 相・O 相の密度整合は容易でない。磁粉量を多く含有させた場合、加熱攪拌中、エマルション内に磁粉が沈殿したため、形状が変形したと推察される。さらに、O 相と W1 相の攪拌により O 相に W1 相の微粒子が分散した。この時の微粒子の大きさは磁粉 MC の内径となることを確認した。微粒子の大きさを制御するため、W1 相と O 相の攪拌速度を変化させた結果、磁粉 MC の直径もこれに応じて変化することを確認した。従って、攪拌速度をパラメータとすることで、欠陥部の大きさに適した磁粉 MC を作製することが可能である。

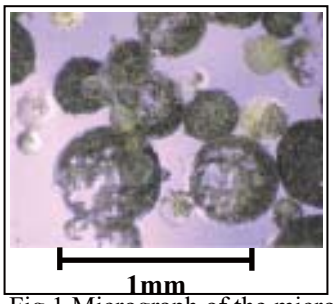


Fig.1 Micrograph of the micro capsule containing the magnetic particles (6.7wt%).

磁化器に対して垂直方向(Fig.2(a))と平行方向(Fig.2(b))に深さ 50μm・幅 0.6mm の欠陥をつけた鉄板を用いて、Fig.1 に示す磁粉 MC を散布し、起磁力 1099AT の磁化器を用いて鉄板を磁化させた。その結果、磁化器に対して垂直方向の欠陥部にのみ磁粉 MC が集合した。Fig.3 に示すように、欠陥部の透磁率は小さいため、磁束は欠陥部を迂回して分布し、その一部は空間に漏洩する。ここに MC を塗布すると、磁粉が磁化され欠陥の形状に沿って磁粉が付着し磁粉模様が形成される。磁束は磁化器に対して平行方向に流れるため、磁化器と平行方向の欠陥部(Fig.2(b))には磁粉 MC は集合せず、一方磁化器に対して垂直方向の欠陥部(Fig.2(a))には漏洩磁束が発生したため、欠陥部に磁粉 MC が集合したと推察した。

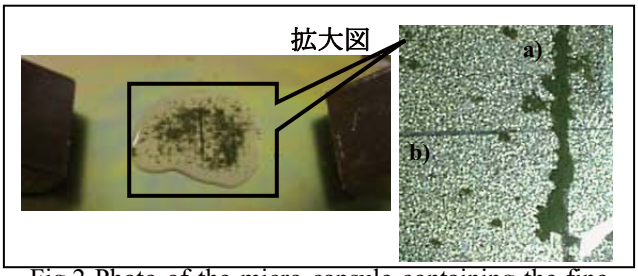


Fig.2 Photo of the micro capsule containing the fine magnetic particles, when electric current flows through an electromagnet..

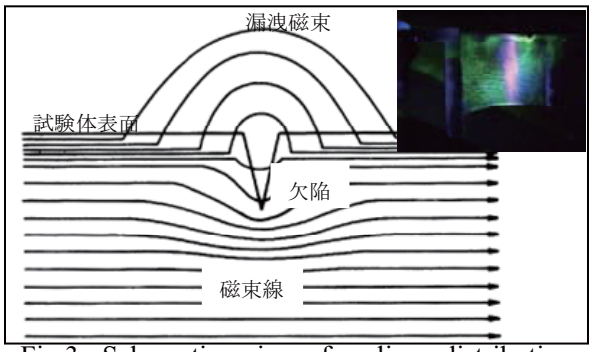


Fig.3 Schematic view for line distribution magnetic flux when a ferromagnetic material was magnetized by Handy-Magna. The long axis direction of the crack is the same as the direction of the magnetizer.

4. 結言

レーザー核融合反応には、球殻燃料カプセルの作製技術の向上はレーザー技術と並ぶ必須課題である。一方、安心・安全が技術開発として注目される今日、原子炉・化学プラント等の保全技術にはより高精度な検査が要求されるであろう。現在、原子力機構では伝熱配管内部の検査装置の開発を進めている。今後、ここでのマイクロカプセル技術を中核に、各分野の技術を結集する事で、保全分野において新たな活用を目指す。

参考文献

[1] 長井圭治ら,"レーザー核融合,「レーザープラズマ実験用ターゲットの製作技術と新材料の利用」, J. Plasma Fusion Res., Vol.80, No.7, pp 626, (2004).

[2] F. Ito *et al*., “Low-Density-Plastic-Foam Capsul of Resorcinol/Formalin and (Phloroglucinol carboxylic Acid)/Formalin Resins for Fast-Ignition Realization Experiment (FIREX) in Laser Fusion Research”, Japanese Journal of Applied Physics, 45, pp L335, (2006).

[3] F. Ito *et al*., “Optimization of Gelation to Prepare Hollow Foam Shell of Resorcinol-Formalin Using a Phase-Transfer Catalyst”, usion Science and Technology, 49, pp 663, (2006).

4.9 HfO_2/SiO_2 誘電体多層膜のレーザー光ダメージ部分の結晶化に関する考察

Negative Effect of Crystallization on the Mechanism of Laser Damage in HfO_2/SiO_2 Multilayer Dielectric Mirrors

立野 亮、岡田 大、乙部 智仁、川瀬 啓悟、J.K.甲賀、杉山 僚
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
原田 善寿、井原 正博
株式会社島津製作所デバイス部
柏木 邦宏
東洋大学理工学部電気電子情報工学科
Ryo TATENO[1)], Hajime OKADA[1)], Tomohito OTOBE[1)], Keigo KAWASE[1)], J.K.KOGA[1)],
Akira SUGIYAMA [1)],Yoshihisa HARADA[2)],Masahiro IHARA[2)],and Kunihiro KASHIWAGI[3)]
1) Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency, 8-1Umemidai, Kizugawa-shi, Kyoto 619-0215, Japan Phone: +81-774-71-3370 Fax: +81-774-71-3316,
2) Shimadzu Corporation,1, Nishinokyo-Kuwabaracho Nakagyo-ku,Kyoto 604-8511, Japan
3) Department of Electrical & Communication Engineering, Faculty of Science and Engineering,Toyo University

次世代の極短パルス超高ピーク出力レーザー用の高耐力ミラーを実現するためには、レーザー損傷のメカニズムの解明が不可欠である。本研究では、レーザーミラーの損傷箇所をレーザー顕微鏡により表面観察、透過型電子顕微鏡(断面 TEM)により断面観察を行った。損傷した HfO_2 には微結晶の HfO_2 の粒界が確認出来た。これら結果とミラーの耐性評価から、膜内の結晶の形成がミラーの耐性を決める大きな要因であることが明らかになった。

Keywords:損傷メカニズム，誘電体多層膜ミラー，結晶化，透過型電子顕微鏡（断面 TEM）

1. 序論

近年、高強度極短パルスレーザーの開発及び応用研究が盛んに行われている。特にレーザー加速[1]による粒子ビーム発生は新しいガンの粒子線治療[2]や飛翔鏡によるアト秒領域の X 線発生[3]等に繋がるものとして注目されている。次世代の極短パルス超高ピーク出力レーザーシステムを実現するには、高強度のレーザー光に対して高い耐久力を有するレーザー多層膜ミラーが不可欠である。現状の極短パルスレーザー媒質として主に用いられているチタンサファイア媒質は、レーザーダイオードで直接発光できない吸収波長と数 μs という蛍光寿命の短さから、励起光源として 10Hz 動作の Nd:YAG レーザーの 2 倍高調波が主に用いられているが、次世代レーザー装置には、高効率レーザー発振・増幅技術による装置の省スペース化、品質の向上のための出力安定化、何よりも実機装置開発を狙う高繰り返し化が要求される。よって、極短パルス超高ピーク出力レーザーの発振繰り返し周波数が、これまでの数～10Hz に対して 2 桁以上高い kHz 級が求められているため、高強度パルスによる多層膜の劣化と、レーザーミラー多層膜での微小な光吸収による発熱の影響が重要課題となる。そのため、現状のレーザーミラー多層膜を用いた場合、耐久力が足りず、極短パルスの光強度が長期にわたって安定しないことが問題になっている。高耐力の多層膜ミラーの開発にはその詳細なメカニズムの解明と理解が必要不可欠であり70年代から研究が進められている[4]。多層膜ミラーはレーザーの波長に対して透明な素材であり、その損傷過程は複雑な物理過程を含んでいる。レーザーによるダメージ生成過程は大きく量子力学に基づく過程と熱による過程に分けられる。レーザー照射中では最初に多光子吸収やトンネル励起により価電子帯から伝導帯へ

の電子励起が起こる[5]。伝導帯に高強度の光で励起された電子はさらに光子を吸収し電子雪崩を起こす[6]。電子励起により吸収されたエネルギーはその後原子の運動に移る。エネルギーが急激に吸収されるとアブレーション等非熱過程が起こる。一方、エネルギー吸収が穏やかまたは少ない時は膜中に欠陥など様々な構造変化を引き起こす(incubation effect) [7]。この構造変化がミラーの光学特性を変化させ、レーザー照射を繰り返すことで損傷が引き起こされる[8]。また不純物や欠陥があることで損傷の確率が大幅に増大することが明らかになっている[9]。しかしながらレーザー損傷過程は量子力学からプラズマまでの領域を含んだ過程であり、より詳細な理解が必要である。本研究の目的は、多層膜ミラーの損傷に至る各段階での TEM 画像を解析することで、表面からの損傷部位の観測だけでなく深さ方向の変化を微視的に観測し、損傷メカニズムを解明することである。

2. 実験方法

高耐力レーザー性を有する膜を作製するため、様々な成膜条件のもと、イオンアシスト電子ビーム蒸着装置を用いて成膜を行った。蒸着材料として、高屈折率材料に HfO_2(CANON OPTRON 製)を、低屈折率材料に SiO_2(USTRON 製)を選択し、装置の下部に挿入した。この蒸着材料を電子ビーム(EB)を用いて溶融・気化し、上部のドーム状基板ホルダーに装着した石英ガラスにコーティングを行った。その際、膜厚制御はモニターガラスで、蒸着レート制御は水晶モニターを用いて行った。

3. 実験結果及び評価方法

ISO-11254[10]に則ったレーザー発振損傷閾値(LITD)テストベンチを用いてレーザー損傷試験を行った。評価法は 1-on-1 法で、毎回新しい部位を照射した。レーザー光源は、以下の仕様で行った。波長 1064nm、パルス幅 8nm、繰り返し 20Hz、出力 20W、最大エネルギー密度 156.91J/cm^2 の QSW Nd:YAG レーザーである。ミラー基材上のスポットサイズは、ϕ0.5mm、M2 1.91 である。LITD 試験の破壊前後の判断基準をモニターするために、ミラーの照射位置に斜めからプローブ用 He-Ne レーザーを照射し、その反射光をプロファイルモニターで観察した。その結果、破壊前後でプロファイル形状に違いが生じることをダメージの有無の判断基準とした。その損傷前段階において、破壊の前駆的信号と思われる現象を確認した。この信号発生の原因については、以下の可能性が考えられる。レーザー照射に依るアブレーションは物の表面を硬い金槌で叩いて音を発生する現象と似ている。この場合、表面付近が凹み、音が発生する。音の発生の前の運動量に方向があるので、その方向に強い、いわゆるショックウェーブ(衝撃波)と呼ばれる正の音圧の半波のパルスが発生する[11]。これによる表面形状の可逆的変化が反射光の振動として観測されたものと考えられる。損傷評価で使用した試験ミラーは、以下の仕様で行った。Nd:YAG1064nm、直径 1 インチ、入射角度(AOI) 0° Unpolarized、反射率 99%。図1に各段階での損傷・非損傷部分の TEM による断面図を示した。最表面の黒い層は損傷保護の為のタングステンデポジットである。各図内に四角で囲った部分の電子線回折像の結果を示した。(a),(b)はレーザー照射前の状態であり、各層は均一でアモルファス構造であることがわかる。(c),(d)では損傷が起きた最外層付近の高屈折率材料が結晶化していることがわかる。(e),(f)は損傷した時の断面で損傷時の条件は、スポットサイズ径 ϕ 0.5mm、103.63J/cm^2、8ns であり、表面にクラックが生成している。また電子線回折像から損傷部付近の膜内部に微結晶が生成しており、開口部の幅約 3.4μm、深さ 2.7μm 程度の穴が開いている。アブレーションが起きている表層部分は溶けて SiO_2 と HfO_2 が混ざり合った状態になっている。それより深い部分では(d)で見られた結晶化がより鮮明に見られる。この結果から損傷の段階としてレーザー励起により熱が発生し、損傷の前段階としてアモルファスであった HfO_2 内部に結晶を生成している事が分かった。

4. 考察

アモルファスと結晶では光学的、機械的特性は明らかに違う。これまで欠損や不純物といった defect が吸収の核となって損傷を促進することは分かっているが[12]、結晶化が早い段階で起きて物性変化を起こすという点については研究が進んでいない。均一だったアモルファス状態内に特性の違う結晶の領域ができることが損傷を促進させる要因になることは十分考えられる。微結晶の存在の影響を明らかにするために、ミラー作成時の基板加熱の温度を変えたものを3種類作製した。図2にそれぞれ 60℃、150℃、300℃で基板加熱したものの XRD ピークスペクトル像を示した。温度を上げることで明らかに結晶が生成
していることが分かる。ぞれぞれのレーザー損傷に対する耐性と屈折率を評価したものを図 3 に示した。基板加熱温度を上げ、結晶が生成したものほど耐性が低くなっていることが分かる。一方屈折率は基板加熱温度を上げるにしたがって上がる傾向にあり光学的特性も大きく変化していることが分かる。HfO_2 は温度上昇により容易に結晶化する結果からその影響が大きいと思われる。

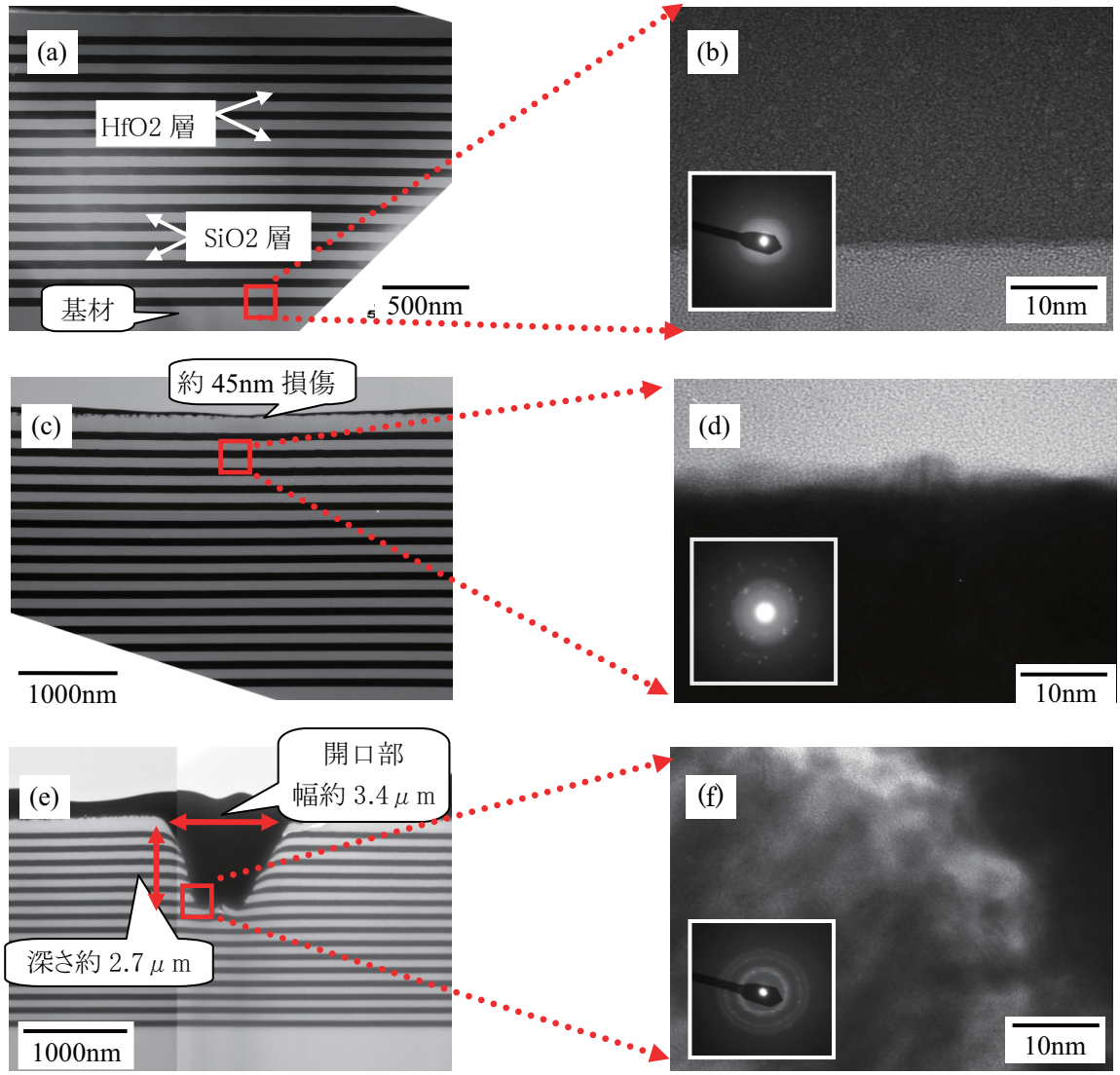


図 1　ミラー基板における誘電体多層膜 TEM 観察像と高屈折率膜材料の電子線回折像、(a,b)レーザー非損傷、(c,d)レーザー損傷初期、(e,f)レーザー損傷過渡期

5. 結論

損傷が起こる前段階として HfO_2 のアモルファス内での微結晶の生成が起こっていることが分かった。同時に我々はミラー作製段階での基材加熱温度を変えたミラーの損傷閾値の違いを測定した。その結果、

膜内の結晶の存在と膜材料の結晶形成がバンドギャップ、不純物、欠陥に並ぶ多層膜ミラーの耐性を決める新たな要素である事が分かった。我々は HfO_2/SiO_2 の多層膜ミラーの各損傷過程での TEM 画像から損傷の前段階として微結晶の生成が起きていることを明らかにし、この結晶化がミラー耐性を大きく低下させる要因である事を発見した。微結晶の存在とレーザー耐性の関係は光学的、熱的視点からこれからの研究で明らかにしていかなくてはいけない点である。

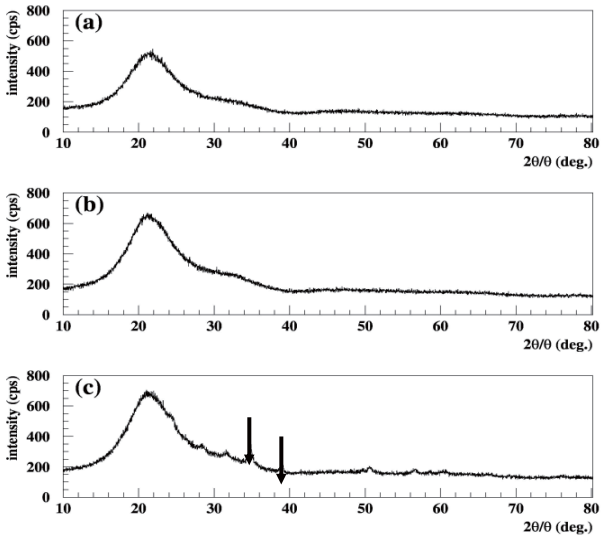


図 2 成膜時の基板温度における HfO_2 薄膜の XRD 回折パターン、(a)60℃(b)150℃(c)300℃

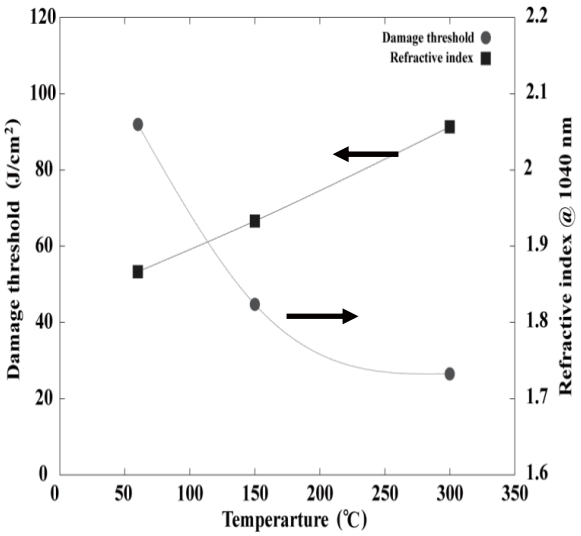


図 3 損傷閾値と屈折率の成膜時基板温度依存性

謝辞 This research was supported by the Photon Frontier Network Program of the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology, Japan.

参考文献

[1] T.Tajima and J.M. Dawson, Phys. Rev. Lett. Vol 43, 267 (1978)

[2] A. Yogo et al, Appli. Phys. Lett. Vol94 181502(2009)

[3] M.Kando et al., Phys. Rev. Lett. Vol 103, 235003 (2009)

[4] T.W. Walker, A.H. Guenther, and P.E. Nielsen, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-17**, 2041 (1981), J. Jasapara et al., Phys.Rev. B,,Vol,63,045117(2001), Jianke Yao et al., J. Appli. Phys. Vol.103,083103(2008)

[5] L.V. Keldysh, Zh. Éksp. Teor. Fiz. **47**, 1945 (1964) [*Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965)].

[6] Yuanan Zhao ,Weidong Gao , Jianda Shao and Zhengxiu Fan, Roles of absorbing defects and structural defects in multilayer under single-shot and multi-shot laser radiation, Applied surface science Vol. 227, pp275-281 (2004)

[7] B. Rethfeld, Phys. Rev. Lett. 92, 187401 (2004); Phys. Rev. B B73, 035101 (2006)

[8] S.C. Jones, P. Braunlich, R.T. Casper, X.-A. Shen, and P. Kelly, *Opt. Eng. (Bellingham)* **28**, 1039 (1989), M. Lenzner, J. Kruger, W. Kautek, and F. Krausz, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* **68**, 369 (1999)

[9] Mark R. Kozlowski et al.,Proc. SPIE, Vol. 2253, 743 (1994), Yuan Zhao et al., Appli. Sur. Sci. Vol. 227, 275-281 (2004)

[10] ISO11254-1:2000,Laser and laser-related equipment -Determination of laser-induced damage threshold of optical surfaces-Part1:1-on-1 test.

[11] Introduction to Ultrasonic Wave Technique.Y.Udagawa[ed.],p152.

[12] C.J. Stolz, R.J. Tech, M.R. Kozlowski and A. Fornier, A comparison of nodular defect seed geometries from different deposition techniques. SPIE 2714 (1996), pp. 374-382

4.10 光医療研究連携センターにおけるレーザー駆動粒子線治療器に向けた小型・高強度レーザーシステム開発

Development of a Compact a High-Intensity Laser System for Integrated Laser-Driven Ion Accelerator at PMRC

鈴木将之 [1]、桐山博光 [1,2]、大東 出 [1]、岡田 大 [2]、佐藤方俊 [3]、吉井健裕 [3]、玉置善紀 [3]、松岡伸一 [3]、菅 博文 [3]、ポールボルトン [1]、杉山 僚 [2]、近藤公伯 [1,2]、河西俊一 [1,2]

[1] 独立行政法人日本原子力研究開発機構 光医療研究連携推進センター

[2] 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

[3] 浜松ホトニクス株式会社

Masayuki SUZUKI[1], Hiromitsu KIRIYAMA[1], Izuru DAITO[1], Hajime OKADA[2], Masatoshi SATO[3], Takehiro YOSHII[3], Yoshinori TAMAOKI[3], Shin-ichi MATSUOKA[3], Hirofumi KAN[3], Paul R. BOLTON[1], Akira SUGIYAMA[2], Kiminori KONDO [1,2], Shunichi KAWANISHI [1,2]

[1]Photo-Medical Research Center, JAEA

[2]Quantum Beam Science Directorate, JAEA

[3]Hamamatsu Photonics K.K.

We present the current status of OPCPA/LD-pumped Yb:YAG hybrid laser system development at the Photo-Medical Research Center (PMRC) as a candidate for a laser-driven medical accelerator to be applied to cancer therapy. To improve the contrast ratio of the final recompressed laser pulse, an OPCPA preamplifier is used as an alternative to a regenerative one. An Yb:YAG thin disk amplifier pumped at 940 nm by a high energy, high repetition rate LD has been developed as a second amplifier in the system. An output laser energy of 120 mJ with a specrual bandwidth of 3 nm (FWHM) was obtained. We have also measured for the first time the contrast ratio of this hybrid laser system after final pulse compression. The contrast ratio was measured to be 10^{-8} at -150 ps prior to the main peak of the pulse. This new result indicates that such a hybrid laser system can generate high contrast laser pulses.

Keywords: Laser particle acceleration, Cancer therapy, High intensity and high contrast laser system, Yb:YAG, OPCPA, hybrid laser system

1. Introduction

High energy protons (and other ions), adequately accelerated by an intense laser irradiation that is focussed to peak intensities in excess of 10^{20} Wcm^{-2} can potentially be used for cancer therapy [1]. It is well-known that the particle energy in such laser-driven schemes depends critically on the laser intensity at the source. In some cases the number of relevant (available) high energy protons can be as much as 10^{7-8}

per laser pulse. At this single pulse proton yield level laser systems will still need to operate at ~ 100 Hz in order to deliver $10^{9\text{-}10}$ protons per second for a hadron therapy [2]. The Ytterbium (Yb) doped crystal, especially Yb:YAG, is a promising material for compact, high power, high repetition rate laser systems because of the relatively broad fluorescence bandwidth and the LD pumping (at 940 or 976 nm)[3]. Yb based chirped pulse amplification (CPA) systems have been recently demonstrated worldwide [4-5] where typically a regenerative preamplifier has been used. It is well-known that the prepulse and amplified spontaneous emission (ASE) levels can be significant with a regenerative amplifier. In most experimental studies it is very important to suppress the prepulse and ASE levels, because a preplasma is generated before the peak of the laser pulse can alter the target condition and limit proton energy. Optical parametric chirped pulse amplification (OPCPA) is known to further reduce these levels [6]. Our OPCPA preamplifier has improved the temporal contrast (by at least two orders of magnitude) and the spectral bandwidth narrowing at high repetition-rates. The Yb:YAG thin ceramic disk amplifier downstream of the OPCPA unit allows for large aperture size and the highly efficient water cooling at the back surface of the disk. In this proceeding we report the current status of our new OPCPA/Yb:YAG hybrid laser system.

2. Experimets and discussion

As seen in Fig. 1 the laser system consists on an oscillator, an aberration free stretcher, a nonlinear preamplifier (OPCPA unit), a multi-pass Yb:YAG amplifier, and a pulse compressor. From the oscillator near transform-limited pulses of energy of 25 nJ are delivered at an 40 MHz repetition rate (i.e. 1W average power). The Stretched oscillator pulses are amplified in two stages and subsequently recompressed with grating pair compressor. With a bandwidth of 5 nm (FWHM) centered at 1030 nm the pulse duration (FHWM) is 200 fs. The Öffner stretcher (consisting of a gold coated grating by Jobin Yvon Horiba, a spherical mirror and a concave mirror) extends the seed pulse duration to 1 ns with 13.8 nJ energy

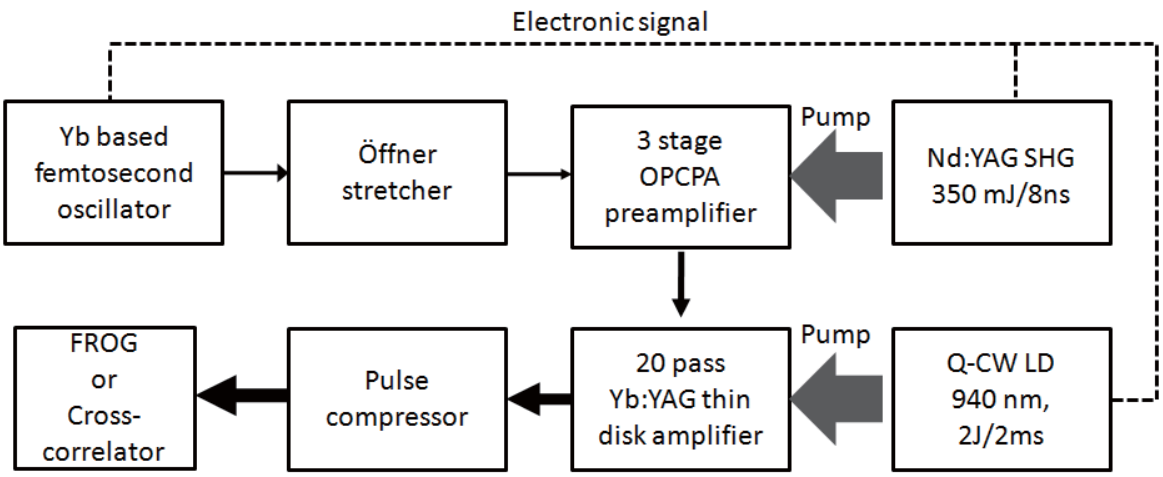


Fig. 1. Layout of the OPCPA/Yb:YAG hybrid laser system. The laser system is composed of an oscillator, an Offner type stretcher, a OPCPA preamplifier, a 20-pass Yb:YAG thin disk amplifier and a pulse compressor

(stretcher energy efficiency of 55 %). Following the stretcher a commercial pulse selector extracts seed pulses at a 10 Hz repetition rate that is synchronized to the 10 Hz repetition rate of the Nd:YAG pump laser. Details of the OPCPA setup are described in Ref. 7. The single pass OPCPA gain (through a 56 mm length) exceeds 10^5 such that the output energy is amplified to 7.2 mJ with only a 13.8 nJ input. The spectral bandwidths (FWHM) before and after the OPCPA are about 5 nm and 10.8 nm, respectively. Spectral broadening and associated pulse shaping are optimized in the OPCPA unit by angle tuned phase matching in the BBO crystals. Consequently, unlike the peaked asymmetric spectral profile of the incident seed exiting the stretcher, the spectral profile of the preamplified laser pulse is that of an asymmetric flat top. Following preamplification by the OPCPA, the laser pulse was further amplified by the Yb:YAG (0.7 at %) ceramic thin disk. The thin disk of 0.6 mm thickness is monted on an un-doped YAG of 1.4 mm thickness and diameter of 10 mm. This disk was pumped by the Q-CW fiber coupled LD (Model LA1216, Hamamatsu Photonics) at an energy of 2 J with 2 ms duration (kW peak power) . The detailed pumping scheme using the LD unit for the Yb:YAG thin disk has been described in Ref. 8. Currently the maximum output energy from the thin disk amplifier after 20 passes is 120 mJ with bandwidth of 3 nm and at a 10 Hz repetition rate. The transform-limited pulse duration is estimated to be 300 fs from this experiment result. This spectral bandwidth narrowing to 3 nm is due to the strong gain at the 1030 nm wavelength. The output laser pulse from Yb:YAG amplifier is subsequently recompressed with a compressor comprised of a gold grating pair. The compressed pulse duration is measured to be 300 fs by using FROG (GRENOUILLE UPM-10-100, Swamp Optics). The compressor efficiency exceeds 70 % and the compressed pulse energy is 85 mJ, potentially. The incident spectral bandwidth (5 nm) could be maintained by combining media with gain peaked at slightly different wavelengths. For example this could be Yb doped material used in a second multi-pass thin disk amplifier immediately after the Yb:YAG disk amplifier.

Figure 2 illustrates the temporal contrast of the amplified laser pulse. The contrast level 150 ps before the main pulse is measured to be 10^{-8} using a third-order femtosecond cross-correlator (Squoia, Amplitude Systems Inc). Also shown in Fig. 2, several peaks were observed at -40 ps, -20 ps, 20ps, and 40 ps. These signals before and after amplified main pulse are attributed to the front and back surface of Yb:YAG disk. These reflections can be removed with Brewster angle incidence of the seed laser pulse on the thin disk.

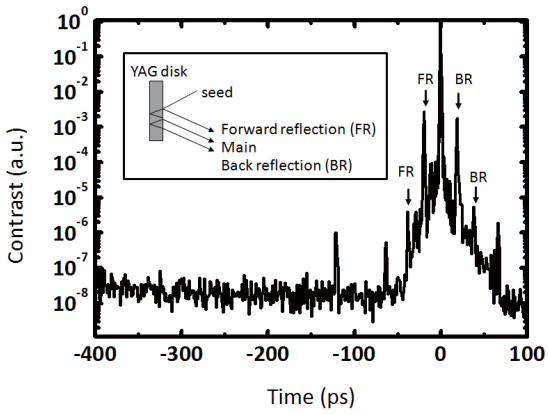


Fig. 2. Temporal contrast of the amplified pulse. Inset, diagram of front and back surface reflection from thin disk amplifier

3. Conclusion

We have demonstrated an OPCPA/Yb:YAG hybrid laser system as a candidate for an integrated laser driven ion accelerator system (ILDIAS) at PMRC, JAEA. Following twenty passes through the thin Yb:YAG disk output pulse energy of 120 mJ with spectral bandwidth of 3 nm was achieved. The temporal contrast ratio of the recompressed laser pulse is 10^{-8} at 150 ps before the main peak of amplified pulse. This demonstration shows that this type of hybrid laser system can generate intense pulses at a high repetition rate with high contrast.

Acknowledgements

This work was supported by the Special Coordination Fund (SCF) for Promoting Science and Technology commissioned by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) of Japan and partly by the "Consortium for Photon Science and Technology" program funded by the Special Coordination Fund for Promoting Science and Technology.

References

[1] S. Kawanishi, H. Daido, and T. Tajima, The Review of Laser Engineering **36**, 440-446 (2008). (in Japanese)

[2] M. Murakami, Y. Hishikawa, S. Miyajima, Y. Okazaki, K. L. Sutherland, M .Abe, S. V. Bulanov, H. Daido, T. Zh. Esirkepov, J. Koga, M. Yamagiwa, and T. Tajima, in *Laser-drive Relativistic Plasmas Applied for Science, Industry, and Medicine: The 1st International Symposium*, S. V. Bulanov, and H. Daido eds., Vol. **1024**, AIP Conference Proceedings (American Institute of Physics, Melville, NY, 2008), 275.

[3] T. Y. Fan, IEEE J Quant. Electron. **28**, 2692 (1992).

[4] M. Siebold, M. Hornung, R. Boedefeld, S. Podleska, S. Klingebiel, Ch. Wandt, F. Krausz, S. Karsch, R. Uecker, A. Jochmann, J. Hein, and M. Ch. Kaluza, Opt. Lett. **33**, 2770 (2008).

[5] J. Tümmler, R. Jung, H. Stiel, P. V. Nickles, and W. Sandner, Opt. Lett. **34**, 1378 (2009).

[6] H. Kiriyama, M. Mori, Y. Nakai, T. Shimomura, H. Sasao, M. Tanoue, S. Kanazawa, D. Wakai, F. Sasao, H. Okada, I. Daito, M. Suzuki, S. Kondo, K. Kondo, A. Sugiyama, P. R. Bolton, A. Yokoyama, H. Daido, S. Kawanishi, T. Kimura, and T. Tajima, Opt. Lett. **35**, 1497 (2010).

[7] M. Suzuki, H. Kiriyama, I. Daito, H. Okada, Y. Nakai, S. Orimo, M. Sato, Y. Tamaoki, T. Yoshii, J. Maeda, S. Matsuoka, H. Kan, P. R. Bolton, H. Daido, and S. Kawanishi, Applied Physics B- Laser and Optics (Rapid Communications) **97**, 379 (2009).

[8] A. Giesen, and J. Speiser, IEEE JSTQE **13**, 598 (2007).

4.11 高エネルギーイオンのリアルタイム計測結果の解析

Analysis of High Energy Ion Measured by Real Time Measuring Instrument

谷本壮 [1, 2], 榊泰直 [2], 西内満美子 [1, 2], 福田祐仁 [1, 2], 堀利彦 [2], 西尾勝久 [3], 近藤公伯 [1, 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
[2] 独立行政法人　日本原子力研究開発機構　光医療研究連携センター
[3] 独立行政法人　日本原子力研究開発機構　先端基礎研究センター
Tsuyoshi TANIMOTO [1, 2], Hironao SAKAKI [2], Mamiko NISHIUCHI [1, 2], Yuji FUKUDA [1, 2],
Toshihiko HORI [2], Katsuhisa NISHIO [3], and Kiminori KONDO [1, 2]
[1] Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency
[2] Photo Medical Research Center, Japan Atomic Energy Agency
[3] Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency

CR-39 was used in order to measure the high energy ion. However, CR-39 needs prolonged time for analysis and can not measure in the real time. In this experiment, multi wire proportional counter (MWPC) was used in order to measure in the real time. We analyzed the MWPC results and converted MWPC results into 2D images. This image became approximately-same as image of fluorescent plate.

Keywords: Real Time Measurement, High Energy Ion

1. はじめに

これまで高繰り返しのレーザーを用い，レーザー駆動によって生成した高エネルギーイオンの検出器として，イオン計測のノイズ源となり得るプラズマから発生する電子やX線に感度が無いCR-39等の固体飛跡検出器が用いられている [1-3]. しかしながら，CR-39 は，解析を行うためにエッチングなどの化学処理や顕微鏡などを用い高エネルギーイオン入射時に形成されるピットの形状，ピット数をオフラインで調べなければならず，ワンショットあたりのプラズマパラメーターの揺らぎを持つレーザーパラメータと比較しながら統計的に調べ,物理現象を理解するには適していない.

そこで本研究では，原子核実験で高エネルギーイオンの計測器として用いられている Multi-Wire Proportional Counter (MWPC) [4]をレーザー駆動粒子線計測用に調整し，レーザー駆動によって生成した高エネルギーイオンを用い，プラズマパラメーターの解析を行うことを考え，予備実験的にリアルタイム計測を行った. 今回は，磁石を用いて，イオン形状を収束させると共に，電磁石によりイオン位置を変化させ，イオンの形状と位置について把握する.

2. 実験セットアップ

実験セットアップの概要図を Fig.1 に示す. 超高強度レーザーを固体ターゲットに照射し，発生する高エネルギーイオン（主にプロトン）を磁場レンズ効果によって収束発散させる効果を持つ 4 極永久磁石（permanent quadrupole magnet: PMQ）により長距離伝送させ MWPC により計測する. その際，MWPC の

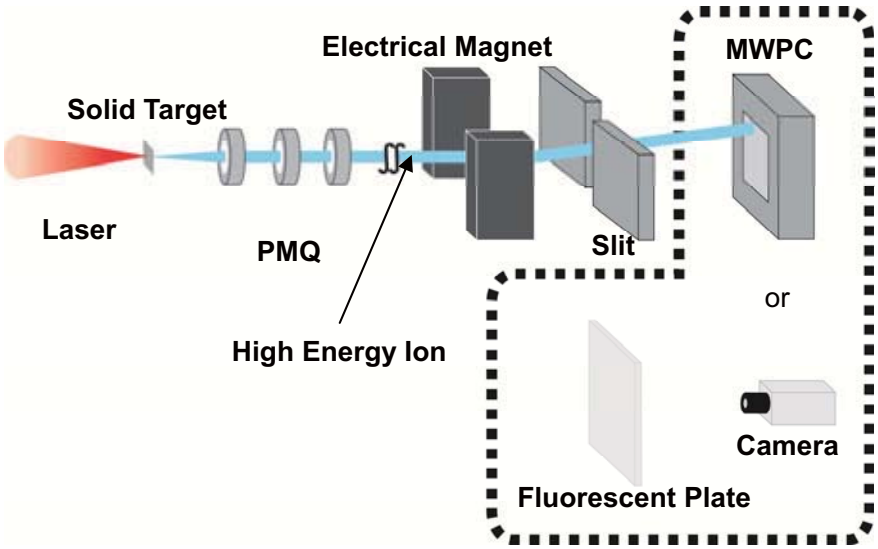


Figure 1. Experimental Setup.

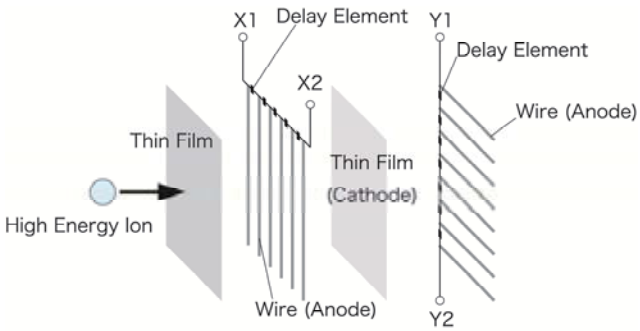


Figure 2. Simple Overview of MWPC.

前に 1cm のスリットを設置し，スリットの前に設置される電磁石（高速磁場応答が可能な磁石）の磁場の強さ（電流値）をショット毎に変化させ高エネルギーイオンの計測を行う．また，MWPC の位置に蛍光板を設置し MWPC により得られた結果と比較した．

本研究で用いる MWPC はガスチャンバーであり，高エネルギーイオンが入射することにより MWPC 内のガスが電離し，その時発生する電子をアノードのワイヤーで検出し，高エネルギーイオンを計測する．本研究で用いた MWPC の概略図を Fig.2 に示す．高エネルギーイオンの入射側に薄膜を張り，MWPC 内のガスの漏れ及び低エネルギーイオンの入射を防いでいる．MWPC の中身は，縦と横のアノードのワイヤー間にカソードの薄膜の入った三層構造になっている．アノードのワイヤー間には，遅延素子を設置し，ワイヤー毎の情報を計測することができる．図中の X1，X2，Y1 及び Y2 はそれぞれ計測端である．この計測端にオシロスコープを接続し計測する．また，印加電圧及びガス密度を変化させることによりイオン 1 個から計測を行うことができるといった特徴がある．本研究では，計測ワイヤーとして Y1 及び Y2 の 1 層のみを用いて計測を行った．

3. 解析結果

本実験では，高エネルギーイオンを長距離伝送させたことにより，X 線による影響は見られなかった．さ

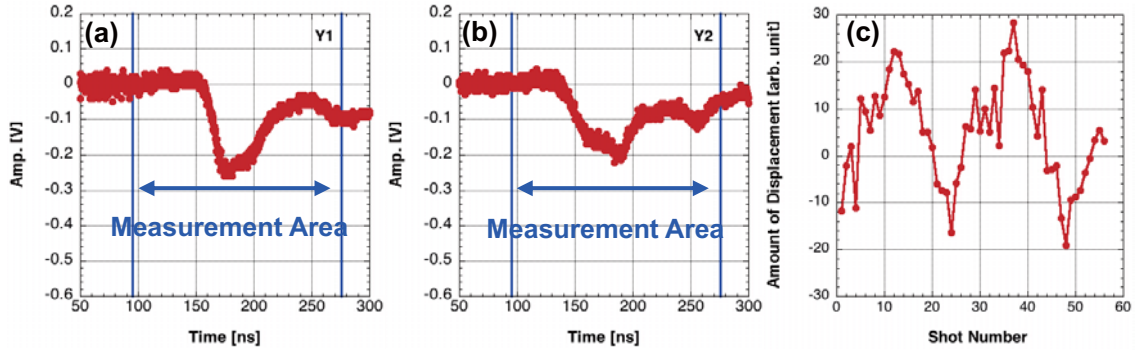


Figure 3. (a) and (b) are Y1 and Y2 data , respectively. (c) becomes relation between amount of displacement and shot number from detector center.

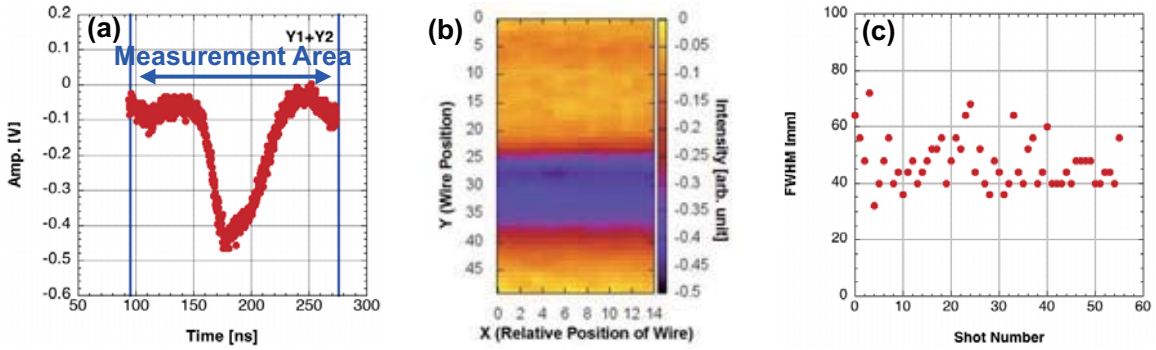


Figure 4. (a) This figure is added Y2 to Y1. This Y2 is converted in order to add to Y1. (b) is 2D image of Fig. 4(a). (c) becomes relation between FWHM (Full Width at Half Maximum) and shot number.

らに，MWPC の前に設置された電磁石により電子とイオンを分離して計測を行ったため，電子による影響も見られなかった．

Fig.3 の(a)及び(b)に MWPC の計測端 Y1 及び Y2 で得られた結果を示す．Y1 及び Y2 はそれぞれ上側及び下側から計測を行っておりピークの時間が異なることが分かる．検出器の中心にイオンが入射した場合このピークの時間が同じ時間になることから，検出器の中心からイオンビームがズレて入射していることが分かる．このズレ量をワイヤー間距離及びワイヤー間の遅延時間を用い評価することにより検出器の中心からのズレ量を評価することができる．本研究ではショット毎に電磁石の磁場を変化させている．(c)にショット番号と検出器の中心とピーク位置の変位量の関係を示す．電磁石の磁場をショット毎に変動させることにより，ピーク値の位置も変化した．

Fig.4(a)の Y1+Y2 は，Fig.3(a)の Y1 を基準にして Fig.3(b)の Y2 を並べ替えて足し合わせた図になる．この図を元に Fig.4(b)のような 2 次元像へと変換を行う．変換方法は，ワイヤー間の遅延素子の遅延時間よりそれぞれのデータ点が何本目のワイヤーに相当するか評価し，各ワイヤー上の点については，ワイヤー毎の点の数で位置を決め，2 次元像へと変換した．Fig.1 の実験セットアップの概略図に示すように，MWPC の前に設置された縦方向のスリットの影響により Fig.4(b)の横方向の両側が切れたような像が得ら

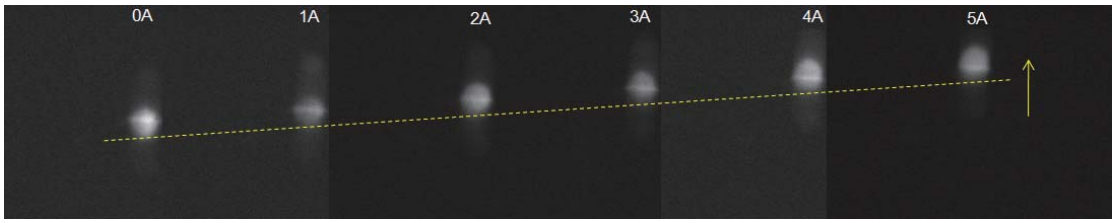


Figure 5. These figures show image of fluorescent plate when the current of electrical magnet was changed.

れた.

変換した 2 次元像から，ショット毎による半値幅を求めた．Fig.4(c)にショット番号と半値幅(FWHM Width)の関係を示す．半値幅は，ワイヤー間距離 4[mm]を用い評価した．Fig.3(c)のようなショット毎による顕著な相関は得られなかった．これは，レーザーの条件やプラズマの条件などショット毎に変化し，それにともない高エネルギーイオンも変化したためだと考えられる．

MWPC の位置に蛍光板を設置し，電磁石の電流値（磁場の強さ）を変化させたときの像を Fig.5 に示す．電磁石の磁場を強くすることによりイオンのパターンが上方向に移動していることがわかる．これは，MWPC によって得られた結果（Fig.3(c)）と同様な傾向を示している．また，Fig.4(b)の像は Fig.5 と同様な 2 次元像が得られたことが分かった．

リアルタイム計測器である MWPC を用いることにより，レーザー条件やプラズマの状態が変化した場合リアルタイムでその状態が把握でき，レーザー光の変化と相関をとるなどしてプラズマパラメーターにおける物理を解析することが出来ることがわかった．

4. まとめ

MWPC を用いてレーザー駆動により生成した高エネルギーイオンを計測した結果について解析を行った．ショット毎に電磁石の磁場を変化させることにより，イオンのピーク位置の変動を計測することができた．また，MWPC の結果より 2 次元像へ変換した像と蛍光板の像では同様な像が得られた．

これより，MWPC を高エネルギーイオンの 2 次元像をリアルタイムに計測可能であることを示唆していることが分かった．

今後，リアルタイム計測器をイオン検出器として用い，レーザー条件等のパラメーターと組み合わせて高エネルギーイオンの生成などの物理機構の解明を行う．

参考文献

[1]. M. Nishiuchi, et. al., Appl. Phys. Lett. **94**, 061107 (2009).

[2]. Y. Fukuda, et. al., Phys. Rev. Lett. **103**, 165002 (2009).

[3]. H. Sakaki, et. al., Plasma and Fusion Research: Rapid Comm. **5**, 009 (2010).

[4]. M. M. F. Ribeirete, et. al., Nucl. Instr. And Meth. **214**, 561 (1983).

4.12 テラワットレーザー励起により固体ターゲットから放射されたテラヘルツ波の放射角度特性
Measurement of Terahertz Radiation Pattern Emitted From Solid Targets by Exciting Terawatt Lasers

○菜嶋 茂喜[1], 細田 誠[1],
織茂 聡[2], 小倉 浩一[2], 匂坂 明人[2], 大道 博行[2]
[1]大阪市立大学大学院 工学研究科
[2]日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門
○Shigeki NASHIMA and Makoto HOSODA,
Satoru ORIMO, Koichi OGURA, Akito SAGISAKA, and Hiroyuki DAIDO
[1]Department of Applied Physics, Graduate School, Osaka City University
[2] Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

We have investigated the radiation distribution characteristics of terahertz (THz) waves from Ti foil target that was horizontal to the incident plane by using JLITE-X system. We found that intense THz radiation had a wide distribution around the reflective direction and its polarization was linear parallel to the incident plane.

Keywords : Terawatt laser, terahertz (THz) radiation, laser plasma, transition radiation

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，高強度光と高密度プラズマとの相互作用による THz 波放射の発生機構には，様々な放射機構が予想される. その中で，THz 波放射角度特性は幾つかの予想される放射機構の可能性を議論する上で重要である. 放射機構の解明に至れば，THz 波放射強度の更なる増大も期待でき，THz 波の応用の一つである生体イメージングの高速化や，非線形テラヘルツ分光などの未開拓学術領域の道が開かれることになる. また，同時に発生している高速電子や高エネルギーイオンとの相関関係が明らかになれば高エネルギー粒子の発生過程を知る一つのツールとしての役割も期待できる[5, 6].

これまで，我々は JLITE-X システムを用いて固体ターゲットである Ti 箔を励起し，そこから放射される THz 波を計測してきた. これまでの結果より，高強度レーザーを用いて Ti 箔をプラズマ化した際に発生する THz 波は，焦電検出器などの常温動作の検出器を用いても容易にシングルショット計測が行える程の強度を有していることが明らかになった[7-9]. また，偏光特性や励起光強度依存性の結果から，レーザー入射面上で計測した THz 波の偏光特性はレーザーの偏光には依存せず，入射面上に強く偏光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サブピコ

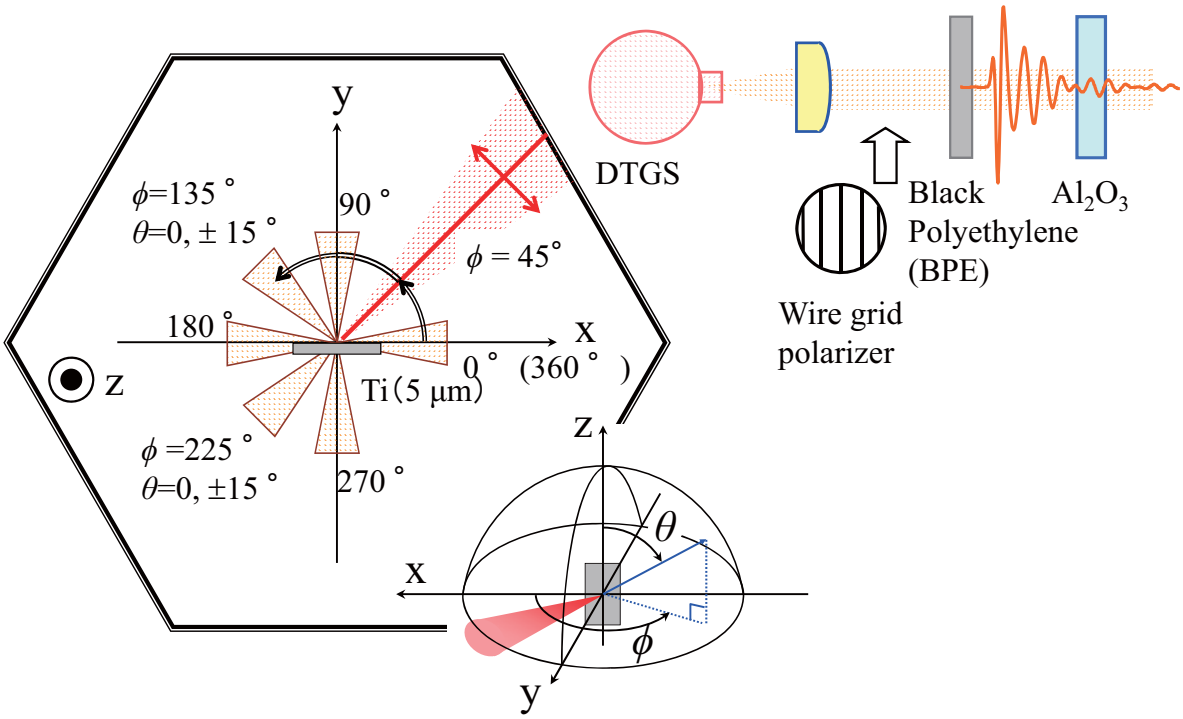


Figure 1: Schematic illustration of experimental setup for the detection of terahertz radiation.

秒スケールでの分極が形成されていることを意味している．本研究では，THz 波放射に起因する分極の向きについて検討するために THz 波の放射角度特性を調べた．

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 システムを用いて，是迄と同じ励起条件で 5 μm 厚の Ti 箔に照射した[9]． THz 波の計測は，仰角を 0º（θ= 90º）とにして，ϕ = 0º, 90º, 135º, 180º, 225º, および，270º の方向で行った．また，ϕ = 135º, および，225º 方向では，θ= 75º および 105º 方向の計測も行った[10]．各方位角に放射された THz 波は，樹脂製の THz 波用平凸レンズ（f :50 mm）や金属ミラーを用いて真空容器外に取り出し，DTGS 検出器によりその放射強度を計測した．各方位角での計測では，ペリクルを用いて励起光強度を調整し，励起光強度依存性を調べた．また，検出器直前に挿入したワイヤーグリッド偏光子を用いて透過した THz 波強度を計測し，偏光特性を調べた．

3. 結果および考察

Figure 2 は，励起光強度が約 100 mJ において Ti 箔ターゲットから放射された THz 波放射の方位角分布である．図中の縦軸の信号強度は，伝搬経路に含まれる各種フィルターの透過率を考慮に入れて元の信号強度に換算した数値である．図より，計測したどの方位角でも THz 波が計測されており，特に，励起光の反射方向側の広い範囲で高強度な THz 波が放射されているのがわかる．そして興味深いことに，Ti 箔ターゲットの励起光入射側とは反対の方向でも THz 波が計測されている．

Figure 3 は，ϕ = 135º, 180º, および，225º 方向に放射された THz 波強度の励起光強度依存性のグラ

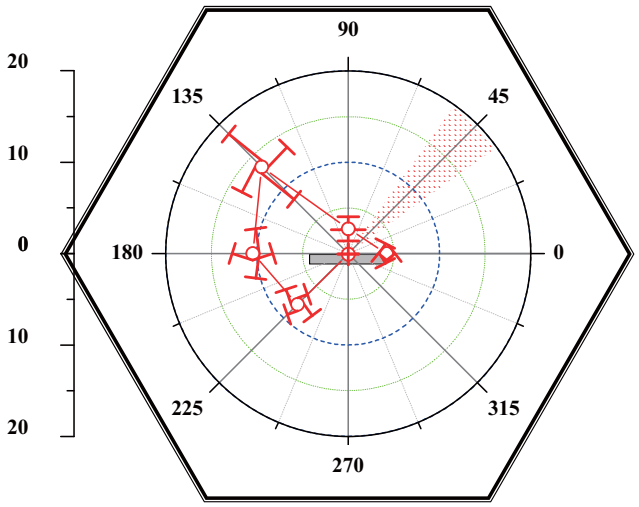


Figure 2. Radiation distribution characteristics of THz waves from Ti foil target parallel to the incident plane.

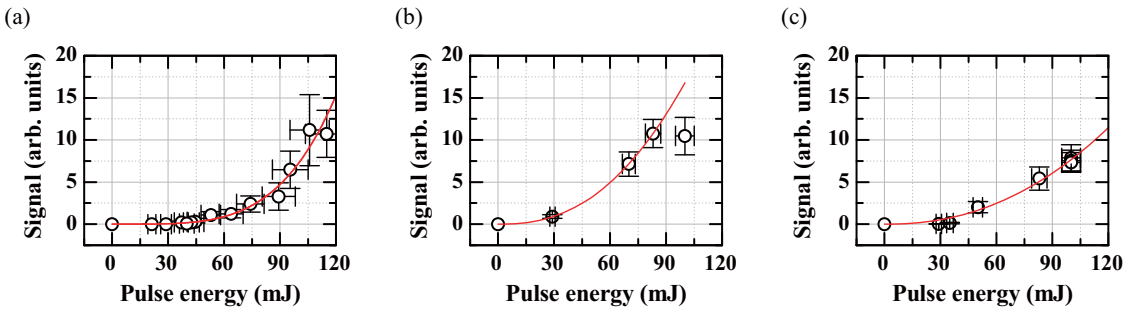


Figure 3. Radiation power characteristics vs. laser pulse energy. Solid lines show curve fittings as a function of power of a number for laser pulse energy. THz signals were measured at (a) $\phi = 135°$ and $\theta = 90°$, (b) $\phi = 180°$ and $\theta = 90°$, and (c) $\phi = 225°$ and $\theta = 90°$.

フである．図より，どの方位角においても励起光強度に対して指数関数的に増加する放射特性を示している．また，偏光特性の結果も方位角による違いは見られず，ほぼ入射面に平行な直線偏光であることを示している．

THz 波放射強度の励起光強度依存性や偏光特性の結果から，どの方位角で計測された THz 波も同じ傾向を示す放射特性を示している．しかしながら，Figure 2 に示した放射分布の結果より，Ti ターゲットの励起光入射側と反対の面の方向にも THz 波が計測されている．このことは THz 波放射に起因する分極は一つではないことを予想させる．Ti の THz 波の侵入長は 0.1 μm 以下と本実験を用いた Ti 箔の厚さに対しはるかに小さく，透過した THz 波を計測したと考えることはできない．このことから，Ti ターゲットの励起光入射側に形成された分極に依る放射だけではなく，ターゲットの裏面方向にも THz 波の発生源となる分極が形成されていることがわかる．このターゲット裏面にサブピコ秒スケールで形成された分極には，プロトン加速のモデルとして有力なシース場の形成過程が関係していると考えられる．シース場の形成に関係すると云われている高速電子バンチがターゲットから放出される時間スケールは，レーザー・プラズマ相互作用時間に関係すると考えられることから，その時間スケールは THz 波の周期と同等のサブピコ秒台であると予想される．また，高速電子の粒子数やシース場強度は，THz 波放射強度の励起光強

度依存性と同様に，励起光強度に対し指数関数的な増加を示すことが実験結果から得られている[11, 12]．今後，同条件下で得られる高速電子のダイナミクスについて詳細が得られれば，THz 波放射機構についての議論がより具体的になるであろう．

4. まとめ

本研究では，是迄と同じ実験条件下で THz 波の方位角方向における放射強度特性および偏光特性を調べた．その結果，THz 波は励起光の反射方向側に広い範囲に放射されていることがわかった．また，励起光が照射されるターゲット面とは反対の方向にも THz 波が放射されていることが明らかになった．さらに，励起光の入射面内において，計測された THz 波の偏光方向は，いずれの方位角においても入射面に平行な直線偏光であることが本実験より確かめられていた．これらのことから，THz 波放射に起因する分極はターゲットの両面に発生し，高速電子の発生とそれに伴うターゲット近傍のシース電場が大きく関係していることが示唆された．

参考文献

[1]. H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 2725-2728.

[2]. W. P. Leemans, C. G. R. Geddes, J. Faure, Cs. Tóth, J. van Tilborg, C. B. Schroeder, E. Esarey, G. Fubiani, D. Auerbach, B. Marcelis, M. A. Carnahan, R. A. Kaindl, J. Byrd, and M. C. Martin, Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 74802-74804.

[3]. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, Appl. Phys. Lett. **77** (2000) 453-455.

[4]. D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, Opt. Lett. **25** (2000) 1210-1212.

[5]. M. van Exter, Ch. Fattinger and D. Grischkowsky, Opt. Lett. **14** (1989) 1128-1130.

[6]. B. B. Hu and M. C. Nuss, Opt. Lett. **20** (1995) 1716-1718.

[7]. S. Nashima, K. Shimizu, M. Hosoda, S. Orimo, K. Ogura, A. Sagisaka, and H. Daido, Proc. of the Joint Meeting of Ultrafast Pulse High Intensity Laser Research Collaboration and JAEA-KPSI 8th Symposium on Advanced Photon Research, JAEA-Conf2008-007 (2008) 81-84.

[8]. S. Nashimaa, K. Shimizua, M. Hosodaa, H. Murakamib, S. Orimob, K. Ogurab, M. Morib, A. Sagisakab, and H. Daidob, Proc. of IRMMW-THz2006, IEEE Shanghai, China, (2006).

[9]. S. Nashima, H. Daido, and M. Hosoda, Proc. of the Joint Meeting of Ultrafast Pulse High Intensity Laser Research Collaboration and JAEA-KPSI 7th Symposium on Advanced Photon Research, JAEA-Conf2007-001 (2007) 129-132. (in Japanese)

[10]. S. Nashima, M. Hosoda, S. Orimo, K. Ogura, A. Sagisaka, and H. Daido, Proc. of The 10th Symposium on Advanced Photon Research, JAEA-Conf 2010-002（2010）161-164. (in Japanese)

[11]. S. C. Wilks, W. L. Krues, M. Tabak, and A. B. Langdon, Phys. Rev. Lett. **69** (1992) 1383-1386.

[12]. Z. Li, H. Daido, A. Fukumi, A. Sagisaka, K. Ogura, M. Nishiuchi, S. Orimo, Y. Hayashi, M. Mori, M. Kado, S. V. Bulanov, T. Zh. Esirkepov, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, S. Nakamura, A. Noda, Phys. Plasmas **13** (2006) 043104(1)-(6).

4.13 First layer のクーロン爆発を効果的に利用した陽子加速

Using the Coulomb Explosion Effect of a First Layer on Proton Acceleration

守田利昌、S.V. BULANOV、T.Zh. ESIRKEPOV、J. KOGA、神門正城
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
T. MORITA, S.V. BULANOV, T.Zh. ESIRKEPOV, J. KOGA, M. KANDO
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

It is shown by PIC simulations that higher energy protons are obtained by using "light material" in the first layer of a double-layer target. It is shown that this is because a hard coulomb explosion occurs in the "light material". As a result, the protons keep accelerating for a longer time.

Keywords: Ion acceleration, monoenergetic ion beams, laser plasma interaction, Particle-in-Cell simulation

1. はじめに

現在、超高強度レーザーを用いたイオンの加速の研究が活発に行なわれている。レーザー駆動陽子加速において、現在得られている生成プロトンのエネルギーはまだ十分でなく、その応用にはより高いエネルギーのプロトンが必要とされている。単純には、より強いレーザーを用いることで、より高いエネルギーのプロトンを生成することは可能である。しかし、現在利用可能なレーザーの強度は、医療応用に必要とされている200MeV 程度のプロトンを、単純に強い強度を照射することで生成するにはまだ低い状況である。そこで、さまざまな工夫を検討して、あるレーザー強度の条件下で、少しでも高いエネルギーのプロトンを生成する条件を検討することが重要となってくる。

本研究では、極力低い出力のレーザーで、出来るだけ高いエネルギーでかつ高品質なプロトンビームを生成する条件の検討をコンピュータシミュレーションにより行なった。ターゲットには、ある物質の表面に水素を配置したダブルレイヤーターゲット(Fig.1)を用いた。ダブルレイヤーターゲットを用いることにより高品質なプロトンビームの生成が可能であることが報告されている[1,2]。また、ターゲットに対してレーザーを最適な角度で斜め入射することで、より高いエネルギーのプロトンが生成されることが示されている[3,4]。さらに、レーザー斜め入射時に、水素の層をレーザーの中心位置からずらせて配置することで、エネルギー広がりの少ない高品質なプロトンビームが得られるが示されている[5]。本研究で目標とするのは、極力低い出力のレーザー（P＜500TW）で、高エネルギー（$\mathcal{E}\approx$ 200MeV）かつ、高品質（$\Delta\mathcal{E}/\mathcal{E}_{ave}$＜5%）なプロトン生成の方法を示すことである。

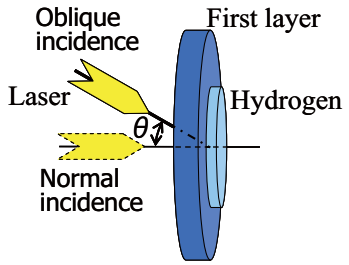


Fig.1 The configuration of a double layer target and laser pulse incidence

本報告では first layer の素材を変化させることで高エネルギープロトンの生成を検討した結果について述べる。シミュレーションは、PIC 手法による３次元粒子シミュレーションコードを用い、３次元解析を実施した。

2. シミュレーションモデル

計算に用いたシミュレーションモデルについて述べる。用いたレーザーは、p-偏光のガウス形レーザーパルスであり、波長 λ=0.8 μ m、スポット径は半値幅で 4 λ、パルス幅は 10 λ、強度は 5.3×10^{21}W/cm^2 である。このとき、レーザー出力=426TW、エネルギー=11J となる。ターゲットの大きさは、first layer の直径=8 λ、厚み=0.5 λ、second layer の直径=4 λ、厚み=0.03 λ である。以下に示す検討において、first layer の素材を変化させているが、全てのケースにおいてイオンの価数は 6 価に統一しており、イオンの個数密度も全てのケースで同一としている。First layer の電子密度は、3×10^{22} 個/cm^3 である。シミュレーション領域は、レーザー垂直入射のケース(3章)においては、$L_x\times L_y\times L_z$ = 120 λ ×36.5 λ ×36.5 λ であり、用いたグリッド数は、3300×1024×1024 である。レーザー斜め入射のケース(4章)においては、$L_x\times L_y\times L_z$ = 120 λ ×73 λ ×36.5 λ であり、用いたグリッド数は、3300×2048×1024 である。また、用いた粒子の総数は 8×10^7 個である。

3. First layer の素材の違いと生成プロトンのエネルギー

ここでは、first layer に金を用いた場合と、炭素を用いた場合の２つのケースの結果を示す。この検討では、first layer の素材の違いに対する生成プロトンのエネルギーの違いを見るのが目的であるので、レーザーパルスは垂直入射としている。

Fig.2 に first layer が金のケース(a)と炭素のケース(b)の結果を示す。計算は３次元計算で行なっているが、fig.2 の結果図では、z 軸の方向（磁場の方向）から見た z=0 での断面を２次元的に表示している。Fig.2 (a)と(b)の比較から、クーロン爆発により炭素のケースでは金のケースに比べて first layer がより広い領域に分布しているのが分かる。Fig.3 に金のケースと炭素のケースにおけるプロトンのエネルギースペクトル図を示す。エネルギー広がりは、両ケース共に小さな値になっている。プロトンの平均エネルギー（$\mathcal{E}_{ave}$）は、金のケースで 38.3MeV で炭素のケースでは 63.4MeV である。よって、生成プロトンのエネルギーは、first layer に炭素を用いたケースでは金を用いたケースの 1.7 倍となっている。Fig.4 は t=50 におけるターゲット付近のイオン及びプロトンの分布とプロトンを加速する力となる x 方向電場(E_x)のコンター図を示している。金の場合(a)と炭素の場合(b)を比較すると、プロトン位置において、炭素のケースの方がより高い E_x となっていることが分かる。すなわち炭素のケースの方がプロトンはより強く加速され続けているのである。

Fig.5 は、色々な素材を first layer に用いた場合の生成プロトンのエネルギーを示している。横軸は $M_q=A/Z_i$ としている。ここで、A は質量数、Z_i はイオンの価数である。縦軸は生成プロトンのエネルギーを first layer が金のケースにおける生成プロトンのエネルギーとの比で示している。Fig.5 は、M_q が小さいほ

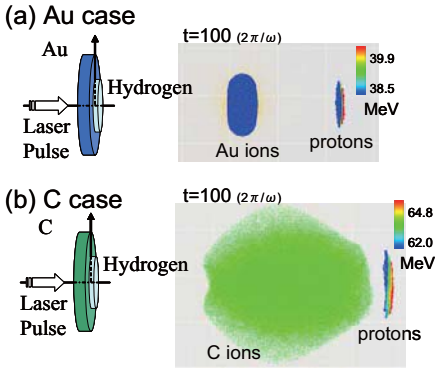


Fig.2 Distribution of ions and protons.

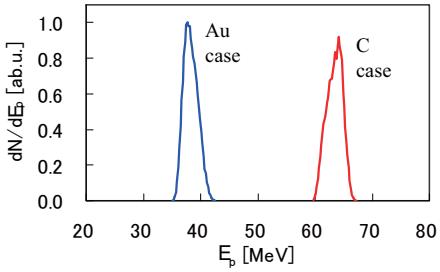


Fig.3 The proton energy spectrum at t=100.

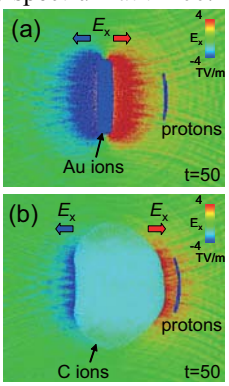


Fig.4 Electric field E_x and distribution of ions and protons.

ど、すなわち“軽い物質”を first layer に用いるほどに、高いエネルギーのプロトンが得られることを示している。

4. 高エネルギーかつ高品質なプロトンの生成

ここでは、これまでに得られた研究成果を用いて、極力低いレーザーエネルギーで、高エネルギーかつ高品質なプロトン生成の検討を行なった結果を示す。

3章で示した検討結果より、first layer には炭素を採用し、以前の検討結果より、レーザーを斜め 30 度でターゲットに入射し、径の小さなプロトン層（直径=4/3 λ）をレーザーの中心位置から下方向へずらせて配置した（fig.6(b)参照）。その他の条件は2章に示したとおりである。

Fig.6(a)にプロトンのエネルギースペクトル図を示す。出力=426TW、エネルギー=11J のレーザーを用いて、平均エネルギー$\mathcal{E}_{ave}$=111MeV、エネルギー広がり$\Delta\mathcal{E}/\mathcal{E}_{ave}$=2.8%、個数=$2\times10^7$ 個のプロトンが生成されている。

Fig.7 に t=50 における炭素イオン及びプロトンの分布と、x 方向電場 E_x を示す。クーロン爆発を起こし膨張している炭素イオンの先端には強い加速電場が存在し、プロトンはその加速電場の中にいることが分かる。Fig.7(a)は3次元表示であり、fig.7(b)は z=0 の面での状態を表示している。

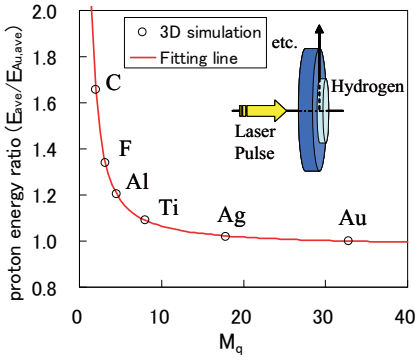


Fig.5 Proton energy vs fist layer material.

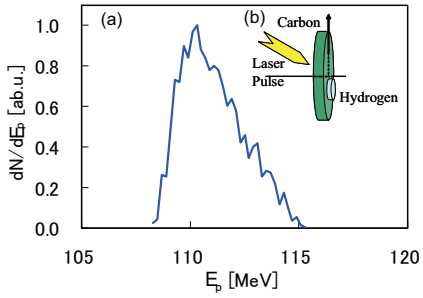


Fig.6 (a) The proton energy spectrum at t=100. (b) The configuration of a double layer target and laser pulse incidence.

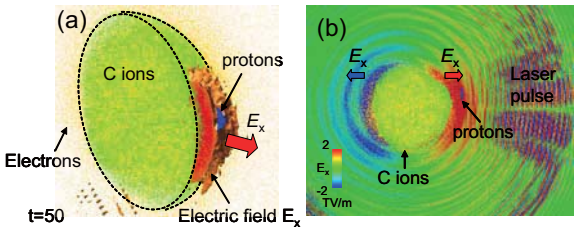


Fig.7 Electric field E_x and distribution of ions and protons. (a) 3D view; half of the box is removed. (b) Surface view at z=0 plane.

5. まとめ

レーザーを用いたプロトンビーム生成において、“軽い物質”を first layer に用いた方が高いエネルギーのプロトンが得られることが分かった。そしてそれは、クーロン爆発による first layer の膨張で、プロトンにより強い加速電場を与えるからであることを示した。

参考文献

［1］S. V. Bulanov and V. S. Khoroshkov, Plasma Phys. Rep. **28**, 453 (2002)

［2］T. Zh. Esirkepov, *et al.,* Phys. Rev. Lett. **89**, 175003 (2002)

［3］T.Morita, T.Zh.Esirkepov, S.V.Bulanov, J.Koga, M.Yamagiwa, Phys. Rev. Lett. **100**, 145001 (2008)

［4］T.Morita, T.Zh.Esirkepov, J.Koga, M.Yamagiwa, S.V.Bulanov, Plasma Phys. Control. Fusion **51**, (2009)

［5］T.Morita, S.V.Bulanov, T.Zh.Esirkepov, J.Koga, M.Yamagiwa, Phys. Plasmas **16**, 033111 (2009)

4.14 太陽風から電磁気学的推力を得る磁気プラズマセイルの推力評価

Thrust Evaluation of Magneto Plasma Sail that Obtains an Electromagnetic Thrust from the Solar Wind

梶村好宏[1)]、船木一幸[1)]、臼井英之[2)]、山川　宏[3)]
1)宇宙航空研究開発機構、2)神戸大学工学研究科、3)京都大学生存圏研究所
Yoshihiro KAJIMURA[1)], Ikkoh FUNAKI[1)], Hideyuki USUI[2)], Hiroshi YAMAKAWA[3)]
1)Japan Aerospace Exploration Agency, 2)Kobe University, 3)Kyoto University

Magneto Plasma Sail (MPS) is a propulsion system used in space, which generates its force by the interaction between the solar wind and an inflated magnetic field via a plasma injection. The quantitative evaluation of the thrust increment generated by injecting a plasma jet with a β_{in} less than unity was conducted by three-dimensional hybrid particle-in-cell (PIC) simulations in an ion inertia scale. The injected plasma beta β_{in} is 0.02 and the ratio of Larmor radius of injected ion to the representative length of the magnetic field is 0.5 at the injection point. In this situation, the obtained thrust of the MPS is 1.6 mN compared with the 0.2 mN of the thrust obtained by the pure magnetic sail since the induced current region on magnetosphere expanded by the magnetic inflation.

Keywords: Magneto Plasma Sail, Solar Wind, Magnetic field, Hybrid PIC Simulation

1. はじめに

外惑星探査や宇宙航行の短期間化、低コスト化を実現すべく、我々の研究グループでは、超高速航行可能な新しい宇宙推進システムの実現を目指して研究を行っている。イオンエンジンを搭載した小惑星探査機「はやぶさ」は、2003年に打ち上げられ、2005年の小惑星「イトカワ」へのタッチダウンの後、2010年6月に地球へ帰還した [1)]。またアメリカのボイジャーは、27年をかけて太陽系を脱出する成果を挙げている。このように長期化する宇宙ミッションを背景に、宇宙推進分野のブレークスルーを果たすため、我々は、10年程度で太陽系を脱出可能な次世代の超高速宇宙推進システムを開発すべく研究を実施している。本研究では、その候補の一つに挙げられる磁気プラズマセイル（MPS:Magneto Plasma Sail）[2)] に着目する。

MPS は、宇宙機に搭載したコイルが作る小規模な磁気圏を、宇宙機からのプラズマ噴射によって広範囲に拡大する。そして、高速のプラズマ流である太陽風を拡大磁場で受け止め、電磁気学的に推進力を得る。Fig.1 に MPS の概要図を示す。また、Fig.2 に MPS の推力発生原理を示す。磁気圏境界面に太陽風圧力が加わると、その圧力と釣り合うように磁気圏境界面に誘導電流が流れる。ビオ・サバールの法則により、この電流が探査機に設置された磁場展開用のコイル付近に磁場を生成し、初期磁場生成のためのコイル電流とのローレンツ力

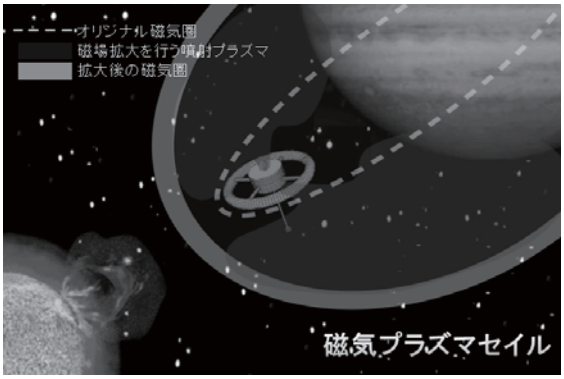


Fig.1 Image of MPS Spacecraft

を誘起する。この力が推力となり、ローレンツ力の直接計算、磁気圏周辺の太陽風の運動量変化や、コイルを取り囲む面の Maxwell 応力を算出することでこの力を近似できる。MPS では、いかに磁気圏を拡大し推力の増分を得ることができるかが推進システムとしての成立性において重要である。MPS の研究および開発は、JAXA が中心となって実施している実証衛星打ち上げに向けた地上実験 [3]に加え、実パラメータ（太陽風や惑星間磁場など）を用いた数値解析による高精度な性能評価を実施している [4]。本論文では、MPS の性能評価について、プラズマ噴射による磁気圏拡大プロセスならびに太陽風と拡大磁気圏との相互作用を同一の系にて解析した結果についてまとめる。

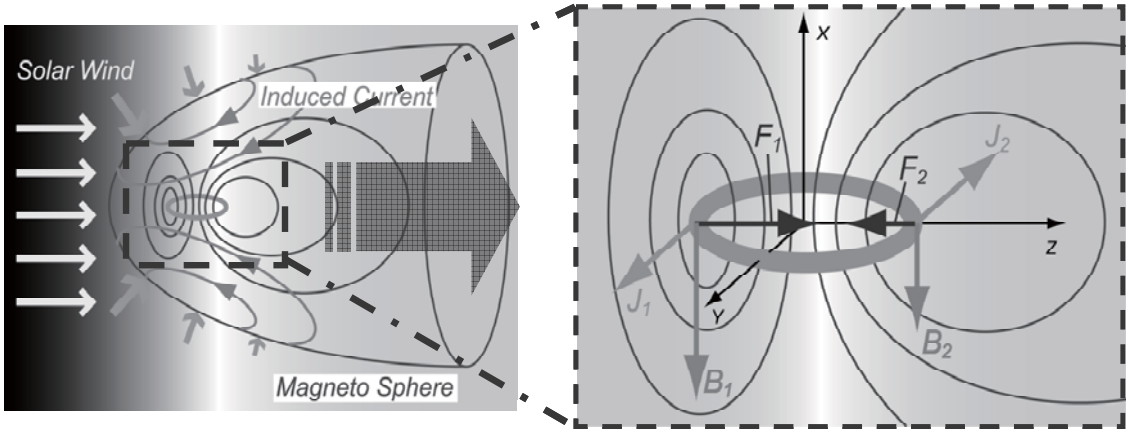


Fig.2 Thrust generation mechanism of MPS

2. 数値解析コード

MPS では、太陽風や噴射プラズマのイオンダイナミクスによる現象が支配的と考えられ、イオンを粒子として扱うハイブリッド粒子モデルが性能評価へのコストパフォーマンスに優れている。よって本解析では、イオンを粒子、電子を慣性を無視した流体として扱うハイブリッドコードを用いた [5]。荷電準中性条件を仮定し、イオンと電子の数密度があらゆるところで等しいと置き、プラズマ振動を除去する。また、ダーウィン近似を用い、電磁場の計算アルゴリズムには CAM-CL 法 [6]を用いた。真空中の電場は、ラプラス方程式を解いて求めた。真空領域とプラズマ領域の判断は密度を閾値として用い、太陽風を模擬したプラズマの密度に対し 20%以下の場合は真空と判断して解析を実施した。境界条件は、ノイマン条件を用いた。以下に計算のおおまかな流れを示す。

[1] 磁場、プラズマの粒子位置、速度の初期設定を行う。その上で電磁場を決定する。

[2] 格子点上でのイオンの数密度、電流密度をプラズマ粒子の情報から計算する。

[3] 電場を計算する。

[4] [1]で設定した磁場と、[3]で求めた電場から、プラズマの運動方程式に基づいて新たなプラズマ粒子の位置、速度を求める。

[5] サブステップにより電場と磁場の時間変化を計算する。

[6] [2]～[5]を繰り返し、プラズマの時間変化を追う。

3. 解析モデルおよび解析結果

解析モデルを Fig.3 に示す。コイルに流れる電流によって作られるダイポール磁場を解析体系の中心に配置する。コイルの磁気モーメントの方向は、太陽風方向（Fig.3 の－Z 方向）とした。解析領域全体に、

太陽風イオンをランダムな位置に配置し、太陽風の速度（＋Z 方向）、密度、温度を与える。時間の経過ごとに―Z 方向から＋Z 方向に向けて太陽風イオンを境界から注入し、また、ダイポール磁場の中心近傍から、等方的にプラズマを噴射し、ダイポール磁場、噴射プラズマ、太陽風プラズマの相互作用を時間発展させ、定常時の評価を行う。噴射プラズマについては、噴射位置における β in（噴射プラズマ圧/磁場圧）を 0.02、噴射位置における噴射プラズマのイオン Gyro 半径に対する磁場の代表長（$|B/(\partial B/\partial r)|$）を 0.5 と設定した。解析に用いた格子点数は、100 万（100×100×100、3 次元）であり、格子あたりの粒子数を 125 個とした。解析には OpenMP を用いてスレッド並列化したコードを用い、64CPU を用い 2 週間の計算を実施した。

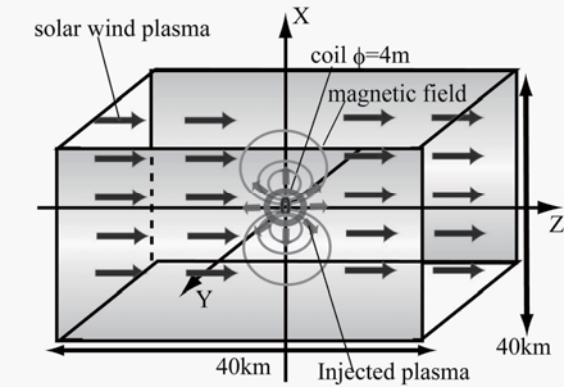


Fig.3 Simulation model

イオン慣性長スケールにおける MPS の全系（プラズマ噴射による磁気圏拡大、拡大磁気圏と太陽風との相互作用を統合した解析）の推力評価を実施した結果、推力の増分を磁気圏拡大によって得るためには、噴射位置において、低 β in（噴射プラズマ圧/磁場圧＜1）のプラズマを噴射することが必要であり、磁気圏境界に生じる誘導電流（推力の発生源）が噴射プラズマによって打ち消されないように磁気インフレーション（プラズマ噴射）を行う必要があることが分かった。Fig.4、5 に解析結果を示す。Fig.4 は、MPS がターゲットとする磁気圏サイズ（コイルの磁気圧と太陽風の動圧がつりあう距離（代表長）＝2km 程度）のダイポール磁場に太陽風プラズマが相互作用し、ほぼ定常状態となった際の磁束密度コンターを示した図である。また Fig.5 は、Fig.4 で示した解析と同じ条件で、コイル中心近傍から等方的にプラズマを噴出し、磁気圏を拡大させた際の磁束密度コンター図である。Fig.4 と比較し、プラズマ噴射によって磁気圏サイズが拡大されていることが確認できる。この時の推力の時間履歴を Fig.6 に示す。図に示したように、プラズマ噴射を実施しない Case1 で計算された推力は 0.2mN、プラズマを噴射し磁気圏を拡大した後に得られる推力は 1.6mN となり、約 8 倍程度の推力増分が得られた。今後、噴射プラズマの β in の値や噴射方向をコントロールし、推力が最大となる噴射パラメータの最適化を実施し、MPS の設計へのフィードバックを行う。また、噴射近傍の解析格子を細分化し、予測推力の精度を向上させるとともに、MPI 並列化を実施し、さらなる高度化、高性能化を実現し、MPS 実現に向けた開発に貢献したいと考えている。

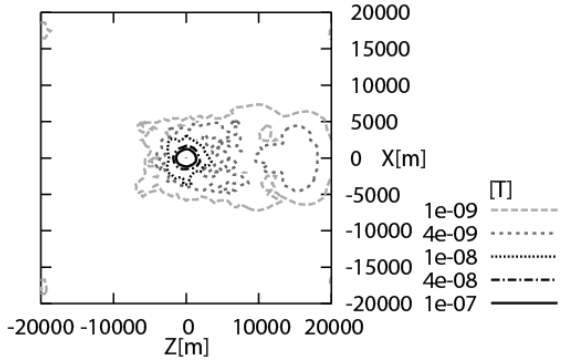


Fig. 4 Contour plot of magnetic flux density distribution on the xz plane (without plasma injection: Case 1).

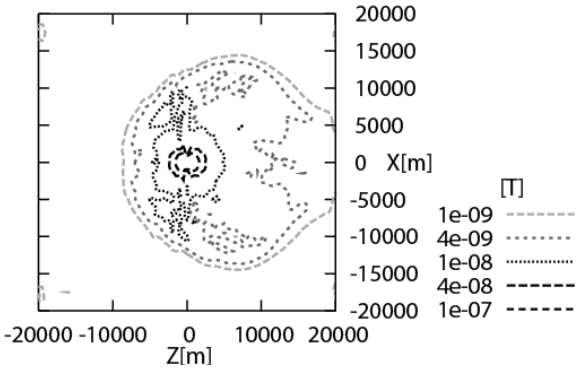


Fig. 5 Contour plot of magnetic flux density distribution on the xz plane (with plasma injection: Case 2).

4. まとめ

本解析では、MPS の推力評価について、ハイブリッド粒子モデルを用いた解析を実施し、磁気圏拡大後の推力増分について定量的に評価した。今回の解析では理想的な等方噴射を仮定し、最大で 8 倍の推力増分が得られることを示した。しかし、実際の MPS における噴射は限定方向であり、ダイポール磁場の赤道方向、極方向のみの噴射について解析を実施し、推力評価を実施することが今後の検討項目として挙げられる。また、イオンエンジンなどの推進システムと比較した際の優位性の評価も行う。一方、さらに推力を増やすにはどのようなパラメータで噴射すればよいかを考案することが性能向上に必要であり、同時にコイルの磁気モーメントが太陽風に対して垂直なケースの評価、推力安定性やコイル傾斜時のトルクやピッチングモーメントの評価も行う必要がある。

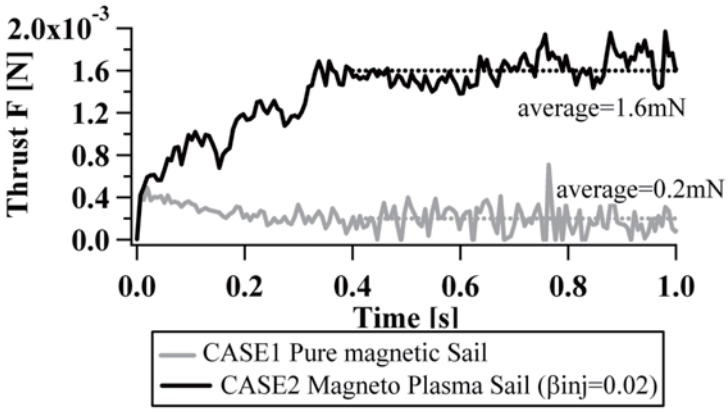


Fig.6 Time history of thrust in Case 1 and Case 2

謝辞

本研究を実施するにあたり、磁気プラズマセイル（MPS）研究グループの皆様からの多大なご支援と有益な議論に感謝いたします。本論文の数値計算は、京都大学生存圏研究所の共同利用研究プロジェクトとして電波科学計算機実験装置（KDK）を用いて行われました。また、宇宙航空研究開発機構（JAXA）情報・計算工学（JEDI）センターの計算機利用、科学技術振興機構（JST）、戦略的創造研究推進事業（CREST）プロジェクトによる支援、ならびにプロジェクトの共同研究者の皆様との有益な議論に感謝致します。

参考文献

［1］K. Nishiyama, et al., Hayabusa's Way Back to Earth by Microwave Discharge Ion Engines, 46th AIAA/ASME/SAE/ASEE Joint Propulsion Conference, AIAA-2010-6862,2010.

[2]船木他, 磁気プラズマセイルの研究と深宇宙探査への挑戦,J. Plasma Fusion Res. Vol.83, No.3 (2007), pp281-284.

[3] K. Ueno et al., Thrust Measurement of Pure Magnetic Sail using the Parallelogram-pendulum Method, Journal of Propulsion and Power, Vol. 25, No. 2, 2009, pp. 536-539.

[4] Y. Kajimura et al., 3D Hybrid Simulation of Pure Magnetic Sail including Ion-Neutral Collision Effect in Laboratory," Journal of Propulsion and Power, Vol. 26, No. 1, January–February 2010, pp. 159-165.

[5] D. Harned et al., Quasineutral Hybrid Simulation of Macroscopic Plasma Phenomena, Journal of Computational Physics, Vol. 47, No. 3, 1982, pp. 452-462.

[6] A. P. Matthews, Current Advance Method and Cyclic Leapfrog for 2D Multispecies Hybrid Plasma Simulations, Journal of Computational Physics, Vol. 112, 1994, pp. 102–116.

4.15 超高強度レーザーを用いたX線発生および配管の透過画像撮影

X-ray Generation using Ultraintense Laser Pulses and Its Application to X-ray Imaging of a Pipe

大石祐嗣、名雪琢弥、中島慶人、藤井隆、Alexei Zhidkov、根本孝七
（財）電力中央研究所
Yuji OISHI, Takuya NAYUKI, Chikahito NAKAJIMA, Alexei ZHIDKOV, Koshici NEMOTO
Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI)

The interaction of high-intensity ultrashort laser pulses with plasmas is currently an attractive issue, because there are many potential applications to various fields. Here, in order to show the feasibility of the laser-plasma x-ray for nondestructive diagnosis, we report the generation of hard x-ray from bremsstrahlung radiation with 230 mJ, 70 fs laser pulses focused on 10 μm thick Cu and Ta film targets with an intensity up to 10^{19} W/cm^2. The results show that signal intensity of Ta target is approximately two times higher than that of Cu target, and that the x-ray photon number generated by single shot laser is roughly estimated to be 1/700 of the ^{192}Ir with a dose of 10 Ci . We also present a demonstration of an x-ray image of a SUS 304 pipe using the laser plasma x-ray.

Keywords: Laser, High intensity, Laser Plasma X-ray, Facility Diagnosis, Radiographic Testing

1. はじめに

近年、超短パルス高強度レーザーを用いた高エネルギー粒子生成の研究が注目されている[1] ~[3]。電中研では、発電施設等の設備診断に利用できることから、高エネルギー粒子の中でも特にX線に着目している。X線は同位体線源やX線管を用いても発生可能であるが、前者は線源管理が厳しく煩雑であること、後者は狭隘部への持ち込みが困難である等の課題がある。レーザーは比較的小さいパルスエネルギーで高エネルギーX線を発生でき、さらに極めて小さく集光できるため、透過画像の高解像度化に有利である。このため電中研では、図 1 に示すような狭隘部配管系における診断への適用を目指し、レーザープラズマX線源を用いた透過画像計測システムの開発を推進している[4], [5]。今回、レーザープラズマX線の非破壊検査への適用可能性を示すために、実験室系の真空チャンバー(サイズ：～1 m)にて、超高強度レーザー（～10^{19} W/cm^2 のレーザー）を金属薄膜ターゲットに照射することで、レーザープラズマX線を生成し、これを用いて配管（外径 34 mm，肉厚 4.5 mm）の透過画像を撮影した。

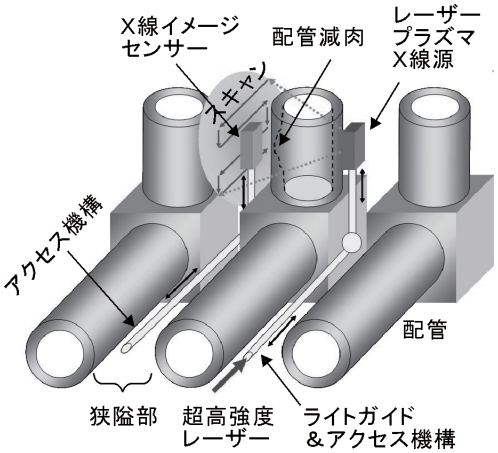


図1 レーザープラズマX線を用いた狭隘部における放射線透過計測システム
Fig.1 Concept of radiographic system using laser-plasma x-ray in a narrow space

2. 実験装置

小型レーザープラズマX線源については、文献[4] に示すほぼ 10 cm のサイズに収まる系において実験を行い、MeV クラスの高エネルギー電子を観測している。ただ、X線イメージングを行うにはまだ線量が少ないため、今回の実験では実験室系の真空チャンバー(サイズ:～1 m)にて実験を行った。 真空チャンバー内の光学系配置を、図 2 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。このレーザーはチャープ増幅により、最大エネルギー1 J、最短パルス幅 50 fs、最大出力 20 TW、繰り返し周波数 10 Hz にて動作するが、今回はレーザー安定性の観点から、レーザーエネルギーを 290 mJ に設定し、さらに 10 Hz のパルス列のうち 1 ショットのみ切り出す運転条件にて実験を行った。また実験時のパルス幅は 70 fs であった。基本中心波長 800 nm、P 偏光のレーザー光は、金メッキ蒸着の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 7.7×2.9 μm^2（半値全幅）にフォーカスされ、メインスポットには約 80%のレーザーエネルギーが到達する。以下ではメインスポット到達エネルギーをレーザーエネルギーと呼ぶ。最大レーザー強度はレーザーエネルギー232 mJ、パルス幅 70 fs 時において 1.3×10^{19} W/cm^2 に及ぶ。ターゲットには厚さ 10 μm の銅(Cu)およびタンタル(Ta)テープターゲット使用し、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。

測定には、図 3 に示す小型X線イメージセンサーとセンサーをスキャンさせるための XY ステージを組み合わせたX線イメージングシステムを使用した。イメージセンサー部はセンサー本体（浜松ホトニクス: S8985-02）と熱雑音を低減させる冷却機構部（ペルチエ素子＋冷水循環器）から構成され、センサー本体の中で検出素子（CsI の針状結晶）によりX線を可視光線に変換し、その可視光線を CCD（電荷結合素子）カメラで撮影する仕組みとなっている。従って、X線写真フィルムやイメージングプレートとは異なり現像作業が不要で、結果をその場で確認することができ、効率良い診断を行うことができる。また、センサー部のサイズは45×65×29 mmと非常にコンパクトであり、発電プラントなどの配管が複雑に入り組んでいるような 10 cm 程度しかスペースのない部分での撮影も可能である。S8985-02 は本来、歯科用に開発されたものであり、シンチレータ結晶 CsI の厚さも数十～数百 μm と薄い。そのため、非破壊検査でよく用いられるX線管や同位体線源のように数百 keV のエネルギーをもつX線に対しては吸収が小さく、感度が低い。そこで、感度の向上による撮影時間の短縮と作業の効率化を図るため、今回、検出素子(CsI)を通常タイプの～0.1 mm から 1.0 mm に厚膜化し、撮影感度を約 7 倍高めたものを使用した[5]。

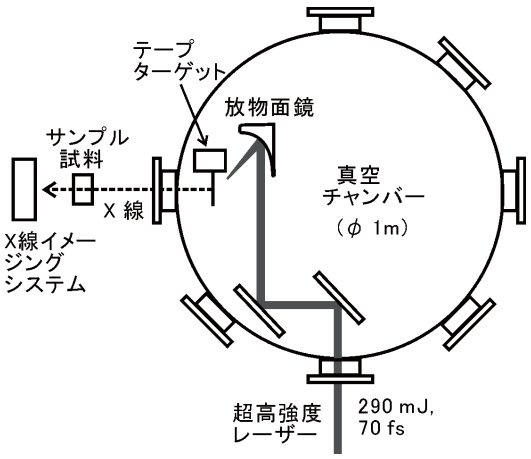


図 2 真空チャンバー内の光学系配置図
Fig.2 Layout in the vacuum chamber

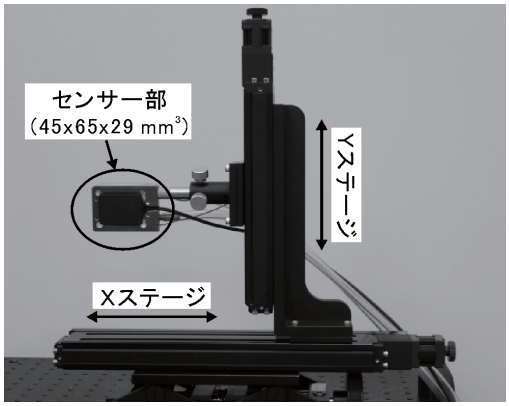
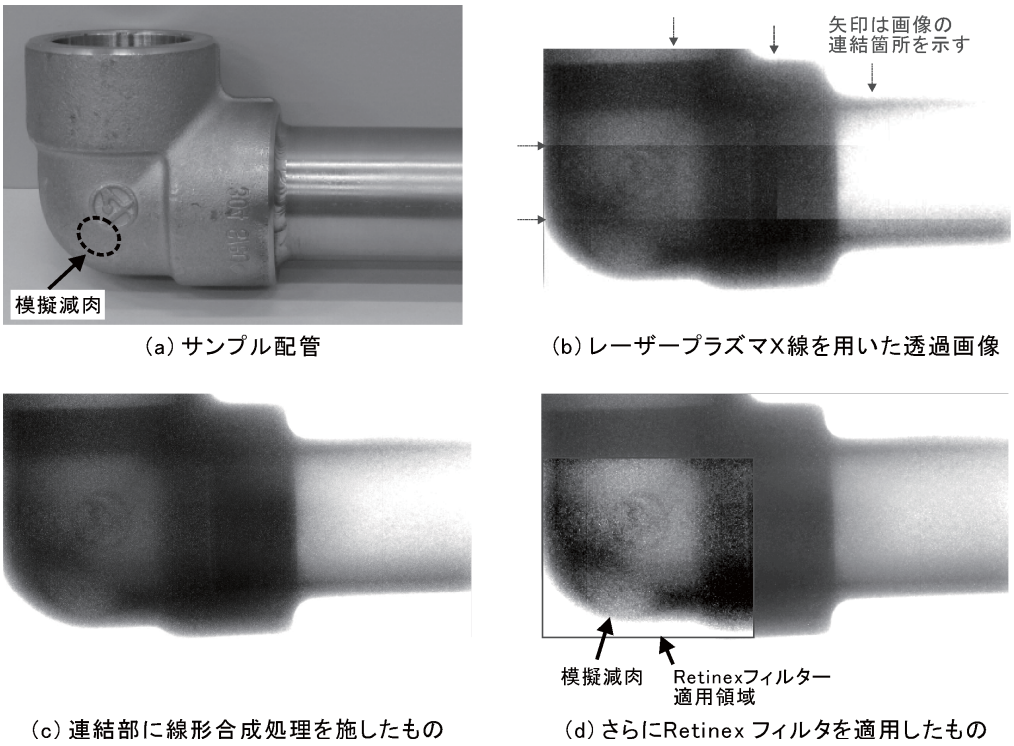


図 3 X 線イメージングシステム
Fig.3 X-ray imaging system

3. 実験結果および考察

はじめに Ta と Cu ターゲットの線量比較を行った。方法は厚さ 10mm のステンレス鋼板をサンプル試料とし、その透過像の平均輝度をレーザー1 ショットあたりで比較することとした。(ちなみに、厚さ 10 mm のステンレス鋼板におけるX線の透過率は2.6×10^{-5}% @50keV, 5.6% @100 keV, 42% @300 keV である[6]。) 実験の結果、透過像の平均輝度は Ta ターゲットにおいて Cu ターゲットよりも約 2 倍程度高い値となった。電子から制動輻射によるX線への変換効率は $NZ(Z+1)$, (N: 単位体積中の原子数, Z :原子番号) に依存し、Ta(496 mol/cm^3) が Cu(122 mol/cm^3)の約 4 倍であることを考えると、上記の実験結果は妥当である。同様に、イリジウム線源 ^{192}Ir を用いて、厚さ 10mm のステンレス鋼板の透過像平均輝度をレーザープラズマX線源の輝度と比較した。その結果、レーザーショットの繰り返し数が 1 Hz で、レーザープラズマX線源のエネルギーが全て ^{192}Ir 線源と等しいと仮定すると、Ta ターゲット照射 1 ショット当たりの線量は非破壊検査でよく用いられる ^{192}Ir 線源(線量 10 Ci)の約 1/700 に相当することが判明した。

次に図 4(a)に示す呼び径 25A、スケジュール 80、SUS304 のエルボ配管(配管部の外径 34 mm、厚さ 4.5 mm)の画像撮影を行った。図 4(b)は 500 ショット照射した場合の結果であり、センサーを横方向 4 箇所、縦方向 3 箇所にスキャンさせ撮影を行い、得られた画像を単純に連結させたものである。図 4(c) は画像を連結させる際に、隣接画像の重なり部分に対し線形合成処理を施したものである。これにより、図 4(b)で観測された連結部の不連続性が解消され、非常に滑らかな画像を得ることができた。更に、連結画像の一部に人の視覚特性をモデル化した Retinex フィルタ[7]を適用することで、図 4(d) に示すように配管減肉部分の視認性が向上した。



(a) サンプル配管　(b) レーザープラズマX線を用いた透過画像

(c) 連結部に線形合成処理を施したもの　(d) さらにRetinex フィルタを適用したもの

図 4 レーザープラズマX線源を用いた配管の透過画像撮影

Fig.4 X-ray imaging of a pipe using laser-plasma x-ray

4. まとめ

超高強度レーザー（10^{19} W/cm^2, 70 fs）を厚さ 10 μm の Cu および Ta 薄膜ターゲットに照射することでレーザープラズマX線を生成した。レーザープラズマX線の信号強度は Ta ターゲットに照射した場合の方が Cu ターゲットに較べ約 2 倍高く、1 ショットあたりの線量は非破壊検査でよく使用される同位体線源 ^{192}Ir (10 Ci)の約 1/700 であることが判明した。このレーザープラズマX線を数百ショット 積算することで、エルボ付配管（外径 34 mm, 肉厚 4.5 mm）の透過画像を得ることができた。以上により、レーザープラズマX線源の非破壊検査への適用可能性を示すことができた。

参考文献

[1] K. Ledingham, I. Spencer, T. McCanny, R. Singhal, M. Santala, E.Clark, I.Watts, F. Beg, M. Zepf, K. Krushelnick, M.Tatarakis, A. Dangor, P. Norreys, R. Allott, D. Neely, R. Clark, A. Machacek, J. Wark, A. Cresswell, D. Sanderson, and J.Magill, “Photonuclear Physics when a Multiterawatt Laser Pulse Interacts with Solid Targets”, Phys. Rev. Lett., Vol. 84, pp. 899-902 (2000).

[2] A. Yogo, K. Sato, M. Mori, T. Teshima, H. Numasaki, M. Murakami, Y. Demizu, S. Akagi, S. Nagayama, K. Ogura, A. Sagisaka, S. Orimo, M. Nishiuchi, A.S. Pirozhkov, M. Ikegami, M. Tampo, H. Sakaki, M. Suzuki, I. Daito, Y. Oishi, H. Sugiyama, H. Kiriyama, H. Okada, S. Kanazawa, S. Kondo, T. Shimomura, Y. Nakai, M. Tanoue, H. Sasao, D. Wakai, P.R. Bolton, and H. Daido, “Application of laser-accelerated protons to the demonstration of DNA double-strand breaks in human cancer cells”, Appl. Phys. Lett., Vol. 94, pp. 181502-3 (2009).

[3] K. Ogura, T. Shizuma, T. Hayakawa, A. Yogo, M. Nishiuchi, S. Orimo, A. Sagisaka, A. Pirozhkov, M. Mori, H. Kiriyama, S. Kanazawa, S. Kondo, Y. Nakai, T. Shimoura, M. Tanoue, A. Akutsu, T. Motomura, H. Okada, T. Kimura, Y. Oishi, T. Nayuki, T. Fujii, K. Nemoto, and H. Daido, “Proton-induced Nuclear Reactions Using Compact High-Contrast High-Intensity Laser”, Applied Physics Express, Vol. 2, pp. 066001-3 (2009).

[4] K. Takano, K. Nemoto, T. Nayuki, Y. Oishi, T. Fujii, A. Zhidkov, E. Hotta, M. Todoriki, and S. Hasegawa, "Hard X-ray Generation by Low Energy, Tightly Focused Laser Pulses", Appl. Phys. Lett., Vol. 92, pp. 251502-3 (2008).

[5] Y. Oishi, T. Nayuki, C. Nakajima, T. Fujii, A. Zhidkov, and K. Nemoto, "An X-ray Imaging System for Hard-to-Reach Facility Diagnosis Using Femtosecond Laser-Plasma", Jpn. J Appl. Phys., Vol. 49, pp. 046602-6 (2010).

[6] See http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html

[7] E. H. Land and J. J. MaCann, "Lightness and Retinex Theory", J. Opt. Sociery of America, Vol. 61(1), pp. 1-11 (1971).

4.16 2段階レーザー航跡場加速のための プラズママイクロオプティクス形成

Formation of a Transient Plasma Micro Optics for Two-Staged Laser Wake Field Acceleration

水田好雄[1]、西田明憲[1]、梶野祥平[1]、益田伸一[2,3]、神門正城[4]、森道昭[4]、小瀧秀之[4]、
林由紀雄[4]、セルゲイブラノフ[4]、アレクセイジドコフ[5]、細貝知直[2,3]、兒玉了祐[1,2,3]
[1]大阪大学大学院 工学研究科 [2]大阪大学 光科学センター [3]科学技術振興機構（JTS), CREST
[4]日本原子力研究開発機構 [5]電力中央研究所究部門
Yoshio MIZUTA[1], Akinori NISHIDA[1], Syohei KAJINO[1], Shinichi MASUDA[2,3], Masaki KANDO[4], Michiaki MORI[4], Hideyuki KOTAKI[4], Yukio HAYASHI[4], Sergei BULANOV[4], Alexei ZHIDKOV[5], Tomonao HOSOKAI[2,3], and Ryosuke KODAMA[1,2,3]
[1]Graduate School of Engineering, Osaka University ,[2]Photon Pioneers Center, Osaka University, [3]Japan Science and Technology Agency (JST), CREST,[4] Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency,[5]Central Research Institute of Electric Power Industry (CRIEPI),

A formation of a transient plasma micro optics (TPMO) is important in the two-staged laser wake- field acceleration scheme, because the electron self-injection and acceleration can be controlled independently. We have observed the TPMO created by laser pulses with the pulse duration of nanoseconds and picoseconds using interferometer. A density profile of the plasma cavity created by the nanosecond pulse was measured. In addition, temporal evolution of a plasma channel created by the picosecond pulse was also observed. The channel length was 750μm, which was four times the Rayleigh length.

Keywords: Laser WakeField Acceleration, Transient Plasma Micro Optics (TPMO), Laser prepulse, Preplasma

1. はじめに

レーザー航跡場加速においてナノ秒とピコ秒のパルス幅を持つプレパルスの波形を制御することで、高い指向性をもつ準単色の高エネルギー電子ビームを安定に生成できることが示されている[1,2]。これは、プレパルスがプレプラズマを集光点付近に形成しフェムト秒のパルス幅を持つメインパルスの集光および長距離伝搬に大きく寄与するためと考えられる。一般的にCPA(Chirped Pulse Amplification)レーザー装置から発生するフェムト秒レーザーパルスの裾野にはASE(Amplified Spontaneous Emission)に由来するパルス幅がナノ秒オーダーのナノ秒プレパルス、CPA増幅におけるパルスコンプレッサーからの圧縮漏れに由来する数ピコ秒オーダーのパルス幅を持つピコ秒プレパルスが存在する(Fig.1参照)。集光点付近のガス標的はメインパルスが到達する前にナノ秒プレパルスによって急加熱され膨張する。こうして、周囲より密度の低いキャビテ

ィー形状の領域(空乏領域)が形成される。急膨張するキャビティー形状と周囲のプラズマとの境界では衝撃波が駆動されプラズマが雪かき的に集められることによって、急峻な密度分布が生じる。キャビティー構造はプラズマ中の電子密度の変調によるプラズマの屈折率の変化により、レーザーパルスをレンズのように集光する効果をもつことになる。一方、ピコ秒プレパルスはナノ秒プレパルスが形成したキャビティー形状のプレプラズマ中を光導波される。これにより回折を抑制され、レーリー長を大きく超えるような長さの中空ファイバー形状の密度分布をレーザー伝搬軸上に形成する(Fig.2)。これらのプレプラズマをプラズママイクロオプティクス(transient plasma micro-optics : TPMO)と呼ぶ。

TPMO は、レーザー航跡場加速において重要な役割を果たしている。ナノ秒プレパルスによって形成された急峻なプラズマ密度分布はプラズマ波破砕による電子入射に大きく寄与する[1,3]。また、ピコ秒プレパルスによって形成された長いプレチャンネルはフェムト秒メインパルスの光導波路として働き、入射電子の安定な加速に寄与することが期待できる。

以上のようにレーザー航跡場加速において TPMO は重要な効果を持つが、その形成過程は未だ十分に調べられていない。これを明らかにするため本研究ではアルゴンの超音速ガスジェット標的にピコ秒とナノ秒の成分より構成されるレーザーパルスを集光し集光点近傍に形成される TPMO がレーザーパルスに及ぼす効果とその形成過程を干渉計を用いて調べた。

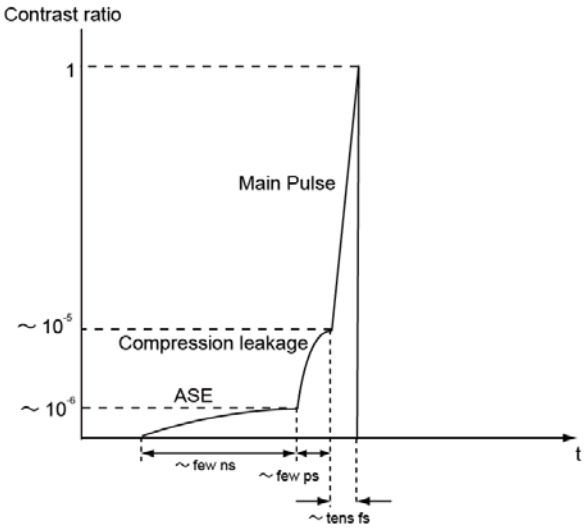


Fig.1 Typical CPA laser pulse

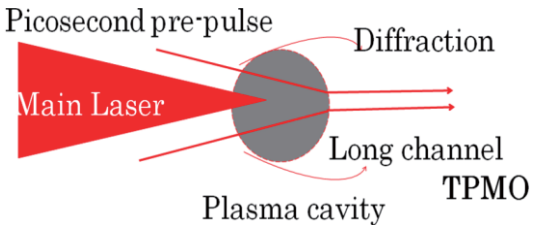


Fig.2 Pre-pulse effect

2. 実験セットアップ

ナノ秒およびピコ秒プレパルスによる TPMO 形成過程を調べるため、レーザーパルスの時間構造を最適化した。チタンサファイアレーザーの再生増幅器出口に設置されたポッケルスセルに引加する電圧とそのタイミングを調節することでナノ秒のプレパルスの強度およびパルス幅を制御した[4]。さらに、ピコ秒プレパルスの効果を確認するためパルス圧縮器内の回折格子対の間隔を変更し、メインパルスのパルス幅をピコ秒領域まで延ばして実験を行った。Fig.3 に TPMO 形成観測の実験セットアップを示す。標的には 1.2×4mm^2 の口径を持つ超音速ノズルから噴き出すアルゴンガスジェットを使用した。アルゴンガスのガス密度は 1.5×10^{19}cm^{-3} である。レーザーパルス、反射率 4%のペリクルによって 2 つに分けられる。透過光は、焦点距離 178mm(F ナンバー5.9)の軸外し方物面鏡によって標的に集光される。集光位置は

ノズルの出口から高さ 1.5mm、レーザー軸方向には真空との境界付近に設定した。真空中の集光点でのレーザーのスポットサイズは 6.9μm FWHM でパルス幅 0.3ps のときの強度は～10^{17}W/cm^2 である。メインパルスとプレパルスのコントラスト比は～1:10^{-5} である。反射光は電離した標的の電子密度分布を計測するためのプローブとして使用される。干渉系にはプリズムを使用し、干渉縞は CCD カメラにより観測される。図のようにプローブレーザーに光学遅延ラインを設け、干渉縞を時間分解して観測することで TPMO 形成の時間発展の様子が得られる。

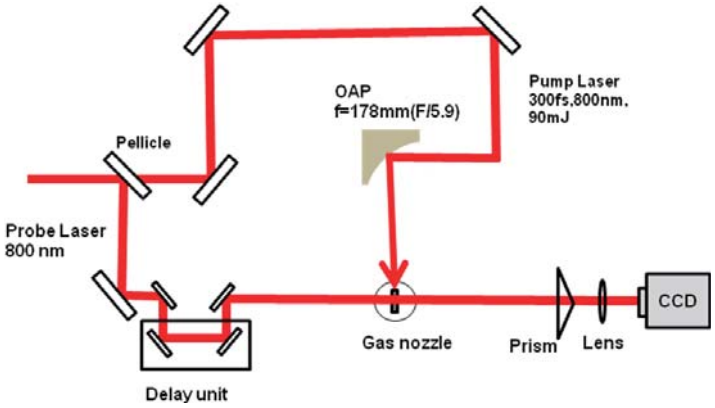


Fig.3 Experimental setup

3. 結果

Fig.4 に実験で観測された TPMO の形成過程を観測した干渉計像を示す。レーザーは図の左から右に向けて進行する(矢印の方向)。なお、図中の点線はガスと真空の境界である。

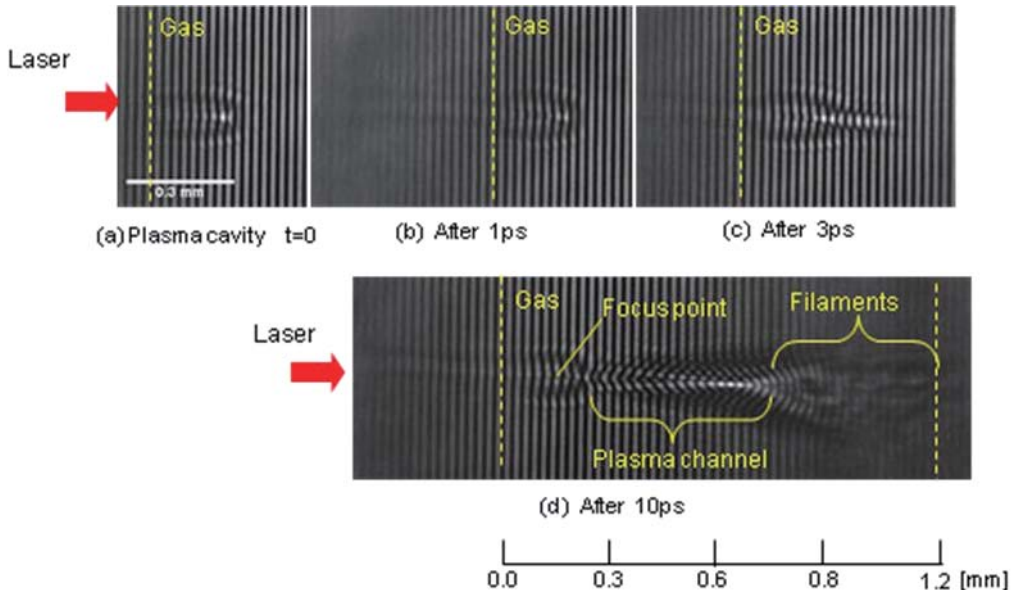


Fig.4 Image of TMPO

Ar gas jet target was used.

Gas length was 1.2 mm. Gas density was 1.5×10^{19}cm^{-3}

ナノ秒プレパルスが Fig.4(a)のようなキャビティー構造を形成する様子が確認できる。プレプラズマのキャビティー構造は270μmほどの長さを持つ。これを基準点とする(t=0[s])。Fig.4(b)はFig.4(a)から1ps後の様子である。図よりキャビティー構造の左側から 0.3ps のパルス幅を持つメインパルスが侵入する様子が見られた。さらに、Fig.4(c)ではキャビティー構造のレンズ効果により集光されたメインパルスがレーザー進行方向にのびていくのが分かる。最終的にメインパルスが作るプラズマチャンネルの長さは 750μm であり、レーリー長 190μm の 4 倍であった。

4. まとめ

レーザーのプレパルスによって形成される TPMO の形成過程の観測実験について報告した。ピコ秒プレパルスがナノ秒プレパルスによるプラズマキャビティ形状により光導波され、レーリー長の 4 倍のプラズマチャンネルが形成された。ナノ秒プレパルスによるプラズマキャビティの構造を電子密度分布の計測によって明らかにした。また、電子密度分布の時間発展を観測することにより、ピコ秒パルスによるプラズマチャンネルの形成過程も明らかになった。

参考文献

[1] T. Hosokai, A. Zhidkov, A. Yamazaki, Y. Mizuta, M. Uesaka, and R. Kodama, Appl. Phys. Lett. **96**, 121501 (2010)

[2] T. Hosokai, K. Kinoshita, A. Zhidkov, A. Maekawa, A. Yamazaki, and M. Uesaka, Phys. Rev. Lett. **97**, 075004 (2006)

[3] S.Bulanov, N.Naumova, F.Pegoraro, and J.Sakai, Phys. Rev.E **58** R5257 (1998)

[4] M.Mori, *et al* IEEE TRANSACTIONS ON PLASMA SCIENCE. **36**, 1875(2008)

4.17 二段階レーザー航跡場加速実験に用いる非対称超音速ガスジェット標的の密度分布評価

Asymmetric supersonic Gas Jet Target For Two-staged Laser Wake-field Acceleration

梶野祥平[1]，神門正城[2]，水田好雄[1]，西田明憲[1]，益田伸一[3,4]，小瀧秀行[2]，
セルゲイブラノフ[2]，細貝知直[3,4]，兒玉了祐[1,3,4]
[1] *大阪大学大学院 工学研究科*
[2] *日本原子力研究開発機構*
[3] *大阪大学 光科学センター*
[4] *科学技術振興機構 (JST) CREST*
Shohei KAJINO[1], Masaki KANDO[2], Yoshio MIZUTA[1], Akinori NISHIDA[1], Shinichi MASUDA[3,4],
Hideyuki KOTAKI[2], Sergei Bulanov[2], Tomonao HOSOKAI[3,4], Ryosuke KODAMA[1,3,4]
[1]*Graduate School of Engineering, Osaka University,*
[2]*Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency*
[3]*Photon Pioneers Center, Osaka University,*
[4]*Japan Science and Technology Agency (JST), CREST,*

We have studied laser wake-field acceleration (LWFA) for aiming at repeatable and high quality, (quasi-monoenergy, low-emittance, ultra-short pulse, high-energy, high-charge) electron source / accelerator. Two-staged LFWA schemes seem to be most promising way to make it practical. It is consisted of two distinct parts, a high-density plasma injector and a lower density plasma channel to provide higher energy with much lower energy spread of accelerated electrons. In order to get higher quality electron beams with this scheme, we develop an asymmetric supersonic slit-jet target. We evaluated the density distribution of the asymmetric gas jet target for two-staged LWFA by Computed Tomography(CT) technique.

Keywords: Laser, Wake-field Acceleration, Gas jet, Computed Tomography, Density, Gladstone-Dale, Phase-unwrapping, Mach-Zehnder

1. はじめに

レーザー航跡場加速を用いて、高エネルギー、大電荷、低エミッタンス、極短パルス、準単色という特徴をもつ高品質電子ビームを発生させる研究をおこなっている[1,2]。我々は、この高品質電子ビームを発生させるためにニ段階レーザー航跡場加速スキームを用いる。ニ段階加速に用いる標的はレーザーの焦点付近に高密度かつ急峻な密度勾配をもち、レーザー伝搬軸下流に沿って密度が減少する密度構造をもつ。このような密度構造はプラズマ波破砕による効率的な電子入射を可能にし[3]、脱位相長による加速距離制限を緩和することが出来る。このようなガスジェット標的を非対称超音速スリットノズルを用いて形成する。非対称超音速ガスジェット標的は内部構造が複雑でノズル出口付近の初期密度分布を正確に評価する必要がある。本研究では、真空容器内部に高速ソレノイドパルスバルブとともに非対称超音速ノズルを設置し、パルス駆動ガスジェットを発生させ、ガスジェット標的内部の密度構造の 3 次元分布を干渉計測および Computed Tomography(CT)の手法を組み合わせて詳細に評価した。

2. 密度計測

2．1 実験セットアップ

マッハチェンダー干渉計を用いて 1.26mm×4mm の非対称超音速ノズルを用いて発生させた標的の密度分布を計測した。このノズルは矩形スリット形状で、短辺の片側がラバール形状でもう片側が真っすぐな形状になっている。実験セットアップの概要を Fig.1 に示す。真空チャンバー内にはガスジェットノズルの中心を軸に回転するステージを設置し、発生させた標的を各方向から見ることが出来るようにした。今回の計測では、0～180° で 10° ごとに干渉縞を計測した。計測に使用したレーザーは He-Ne レーザー(λ=633nm)である。レーザーはビームエクスパンダーでビーム径をφ30mm にし、ビームスプリッターで参照光と透過光の 2 つに分けた。参照光は大気中を、透過光は真空チャンバー内に発生させたガスジェット標的を通る。それぞれのレーザーはビームスプリッターで再び一つのビーム軸上に戻され干渉縞を生じさせる。干渉縞はゲート付き ICCD カメラによって観測する。ICCD のゲートはガスジェットの噴出立ち上がりと同期させ 100μs の間だけ開くように設定した。

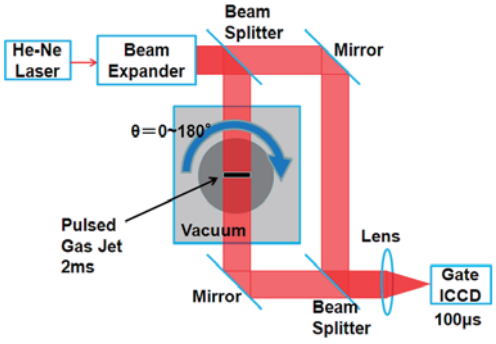


Fig.1 Setup of gas target with CT

2．2 位相分布を干渉縞から取り出す

フーリエ変換干渉法を用いると干渉縞から位相 ϕ を取り出すことが出来る[4] 。干渉縞の強度は

$$g(x,y)=a(x,y)+b(x,y)\cos[2\pi f_0+\phi(x,y)] \tag{1}$$

と表せる。ここで $a(x,y)$、$b(x,y)$ は干渉縞の平均強度および振幅を示し、ϕ は測定しようとする位相、f_0 は空間的に変化するキャリアを示す。この $g(x,y)$ を複素表示すると

$$g(x,y)=a(x,y)+c(x,y)\exp(i2\pi f_0 x)+c^*(x,y)\exp(-i2\pi f_0 x) \tag{2}$$

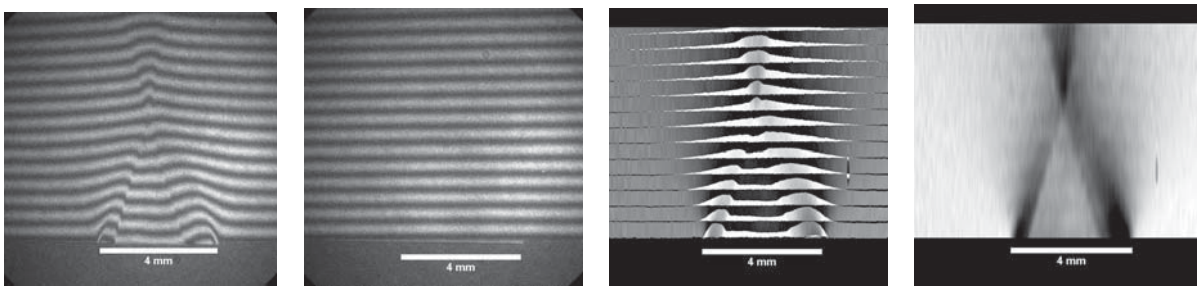
となる。ここで c は $c(x,y)=(1/2)b(x,y)\exp[i\phi(x,y)]$ である。式(2)をフーリエ変換すると

$$G(f,y)=A(f,y)+C(f-f_0,y)+C^*(f+f_0,y) \tag{3}$$

となる。次に $C(f,y)$ を得るために $C(f-f_0,y)$ のみを残し、周波数軸の原点方向に移動させる。移動させることによって得られた $C(f,y)$ を逆フーリエ変換し、その複素対数をとると

$$\log[c(x,y)]=\log[(1/2)b(x,y)]+i\phi(x,y) \tag{4}$$

となり、虚数成分のみを抽出すれば位相差成分を求めることが出来る。ガスジェットが存在するとき屈折率が変化するため干渉縞はFig.2(a)のようになり、ガスジェットが存在しないとき干渉縞はFig.2(b)のようになる。ガスジェットが存在するときの干渉縞の位相差分布からガスジェットが存在しないときの干渉縞の位相差分布を引くことによってガスジェットにより生じた位相差分布(Fig.2(c))を求めることが出来る。しかし、ここで求められた位相は－π～πの範囲の値を持つ不連続な位相分布で、位相の値が(2n+1)π を横切るたびに，その点で2πの位相飛びが生じる。ここでnは整数である。連続的な位相分布を求めるために位相が飛んだ分を埋め合わせる。そうすることによって連続した位相分布(Fig2.(d))が得られる。



(a)Signal image (b)Reference image (c) Discontinuous distribution (d) Continuous distribution

Fig.2 Image of interferometer and distribution

2．3 2 次元データと 3 次元データの関係

投影定理は CT で使用される定理で 2 次元データを 3 次元データに再構成する際に用いられる。今回は直接フーリエ変換法[5] を用いて再構成した。求めたい位相差の分布を $f(x,y)$ とする。干渉縞の位相シフト量 $\phi(u,\theta)$ は

$$\phi(u,\theta)=\int_{-\infty}^{\infty} f(u\cos\theta - v\sin\theta, u\sin\theta + v\cos\theta)dv \quad (5)$$

と表される。ここで

$$x = u\cos\theta - v\sin\theta$$
$$y = u\sin\theta + v\cos\theta \quad (6)$$

とした。位相シフト量を 1 次元フーリエ変換すると

$$\Phi(\omega,\theta)=\int_{-\infty}^{\infty}\phi(u,\theta)\exp[-ju\omega]du \quad (7)$$

また、実空間 (x,y) に対する周波数空間の角周波数の座標を (ω_x,ω_y) とし、位相差分布の 2 次元フーリエ変換を $F(\omega_x,\omega_y)$ とすると

$$F(\omega_x,\omega_y)=\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} f(x,y)\exp[-j(x\omega_x + y\omega_y)] \quad dxdy \quad (8)$$

となり、直交座標を極座標に変換すると

$$F_p(\omega,\theta)=\int_{-\infty}^{\infty}\int_{-\infty}^{\infty} f(x,y)\exp[-j\omega(x\cos\theta + y\sin\theta)] \quad dxdy \quad (9)$$

投影定理より $\Phi(\omega,\theta)=F_p(\omega,\theta)$ となる。つまり、位相シフト量を変数 u で 1 次元フーリエ変換したものと位相差分布を 2 次元フーリエ変換したものを極座標変換したものは等しいということになる。よって、位相シフト量を 1 次元フーリエ変換し、2 次元フーリエ逆変換を行えば位相差分布を求めることができる。

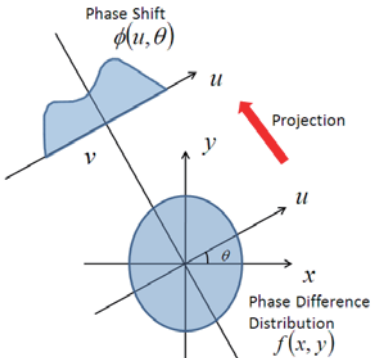


Fig.3 Coordinate system

2．4 位相差を密度に変換

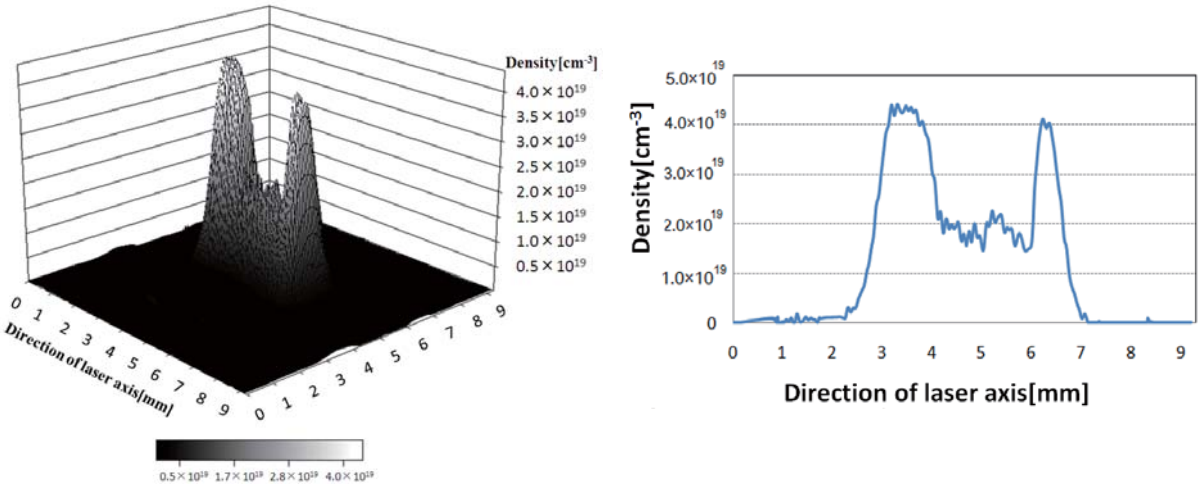
位相差を求めることが出来ればそこから密度を求めることが出来る。位相差から密度を求める式は

$$\rho = \frac{\lambda}{LK}\frac{h}{2\pi}N_A \quad (10)$$

で示される[6]。ここで ρ [cm^{-3}]はガス密度、λ [m]は使用したレーザーの波長、L[m]は光路、K[cm^3/mol]はグラッドストーンデイル定数、hは位相差、N_A[mol^{-1}]はアボガドロ数である。この実験ではアルゴンガスを He-Ne レーザー(λ =633nm)で計測したので、グラッドストーンデイル定数を K=6.298cm^3/mol とした[7]。 また、L は Gate ICCD で撮影した画像データーの 1 ピクセルの長さを用いた。

3. 結果

今回の計測では、ノズルリザーバーのよどみ圧 4MPa でアルゴンガスを噴射したときに生じたガスジェットの密度分布を求めた。 Fig.4 はノズルの先端から噴射方向に 1mm の場所の密度分布である。結果より高密度部分(4×10^{19}cm^{-3})と低密部分(2×10^{19}cm^{-3})から構成されていることが分かった。また Fig.2(a)より、撃波により内部は複雑な密度分布が形成されていることが分かった。衝撃波を利用することで、急峻な密度勾配を発生させることが可能となっていると考えられる。このときの急峻な密度勾配ΔN はΔN＝5.9×10^{16} cm^{-3}/μm であった。ノズルの形状を変えることで衝撃波を制御すれば、密度ピークの位置を変えることが出来る。



(a) 3D plot of density distribution of section in 1mm from tip of nozzle

(b) Density distribution on laser axis

Fig.4 Density distribution of gas jet target in 1mm from tip of nozzle

4. まとめ

非対称ノズルを用いてシート状の非対称超音速ガスジェットを発生させた。そして非対称超音速ガスジェット標的の干渉縞を計測し CT の技術を用いて 3 次元密度分布を求めた。ノズルの形状を変えることによって、高密度部分と低密度部分に急峻な密度勾配を持ち、レーザー伝搬軸に沿って減少するような標的を発生させることが出来れば、高品質電子ビームの発生が期待できる。

参考文献

[1] T. Hosokai, A. Zhidkov, A. Yamazaki, Y. Mizuta, M. Uesaka, and R. Kodama, Appl. Phys. Lett. **96**, 121501 (2010)

[2] T. Hosokai, K. Kinoshita, A. Zhidkov, A. Maekawa, A. Yamazaki, and M. Uesaka, Phys. Rev. Lett. **97**, 075004 (2006)

[3]S. Bulanov, N. Naumova, F. Pegoraro, and J. Sakai, Phys. Rev. E **58**, 5 (1998)

[4]M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayasi, J. Opt. Soc. Am. **72**, No.1(1982)

[5]R. M. Mersereau, Comput. Biol. Med. **6**, pp.247-258(1976).

[6]A. M. Garforth, COMBUSTION AND FLAME **26**, pp.343-352 (1976)

[7] W. C. Gardinrr, Jr., Y. Hidaka, and T. Tanzawa, COMBUSTION AND FLAME **40**,pp.213-219 (1981)

4.18 同位体選択的振動励起における分子配向効果：最適制御理論による研究

Molecular Orientation Effect on Isotope-selective Vibrational Excitations: Quantum Optimal Control Study

黒崎　譲
日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門　レーザー量子制御研究グループ
Yuzuru KUROSAKI
Quantum Engineering Group, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

In this study we try to obtain theoretically a single electric field that can realize efficient isotope-selective vibrational excitations for a full ensemble of randomly oriented molecules. Computational results strongly suggest that there is such a single field that can efficiently drive all members in the ensemble into their target states.

Keywords: Molecular orientation effect, Vibrational excitation, Isotope separation, Cesium iodide molecule (CsI), Optimal control theory (OCT)

1. はじめに

類似した性質を持つ物質の混合物を純粋な物質に分離するという問題は、科学の基礎から応用にわたる重要テーマの一つである。近年、この問題に量子制御の手法を用いて取り組む試みが提案され、その実現可能性が広く検討されている。本研究では、分子の同位体選択的振動励起を対象として、これを可能とする最適電場を理論的に見出しその機構を調べることを目的とする。ここでは特に、分子の双極子モーメントが電場の偏光方向に対しランダムに配向している混合アンサンブルを想定し、最適制御理論に基づく計算を実施する。その結果、このようなアンサンブル全体に対しても、効率的な選択的振動励起を可能とする単一電場の存在可能性を示す。

2. 理論計算

上記アンサンブルを高効率で制御する単一の最適パルスを変分法により求めるため、次の汎関数 J:

$$J = \frac{1}{2}\sum_A p_A \int_{-1}^{1} dx \left|\langle \psi_A(T,x) | \Phi_A(x)\rangle\right|^2 - \alpha_0 \int_0^T dt \varepsilon(t)^2$$
$$- \sum_A p_A \int_{-1}^{1} dx \,\mathrm{Re}\left[\langle \psi_A(T,x) | \Phi_A(x)\rangle \int_0^T dt \langle \chi_A(t,x) | \frac{\partial}{\partial t} + i(H_0^A - x\mu\varepsilon(t)) | \psi_A(t,x)\rangle\right]$$

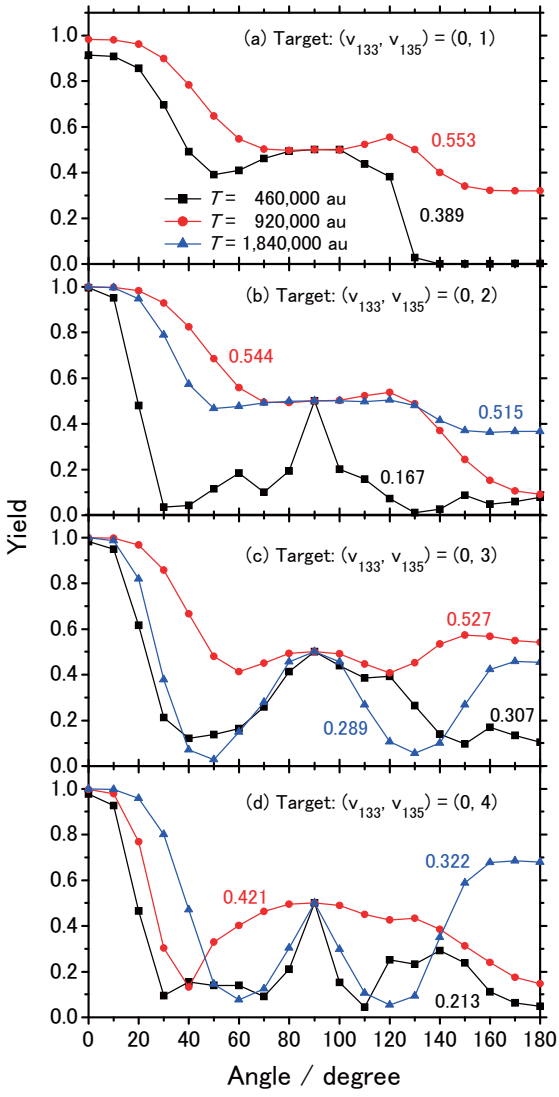
を考え、これを最大にする電場$\varepsilon(t)$の予測を試みる。J は三つの項からなる：(1) 波動関数$\psi_A(t, x)$のターゲット状態$\Phi_A(x)$への遷移確率の分子配向 $x = \cos\theta$および同位体 A についての和。ここで、p_A は同位体 A の存在確率、T はパルス時間である；(2) $\varepsilon(t)$のフルエンスに対するペナルティー項。α_0 は正の数である；(3) $\psi_A(t, x)$が Schröginger 方程式を満たすという拘束条件に起因する項。ここで、$\chi_A(t, x)$は Lagrange 未定乗数、H_0^A は field-free Hamiltonian、また、μは双極子モーメントであ

る。ψ_A, χ_A, εについての J の変分がゼロ($\delta J = 0$)であるという条件から得られる三つの式を J が収束するまで繰り返し解くことにより、J を最大にする$\varepsilon(t)$、すなわちランダムに配向した異種分子からなる ensemble 全体を制御する単一の最適電場が求まる。

ここでは例として、ヨウ化セシウム分子 ^{133}CsI と ^{135}CsI の 1:1 混合気体($p_{133CsI} = p_{135CsI} = 0.5$)を取り上げ、これらがともに基底状態($X0^+$)のポテンシャル曲線(PEC)上の振動基底状態にある状態(^{133}CsI (v = 0); ^{135}CsI (v = 0)) を時刻 $t = 0$ における初期状態とし、^{135}CsI のみが振動励起状態に上がった状態(^{133}CsI (v = 0); ^{135}CsI (v = 1,2…)) を $t = T$ におけるターゲット状態とする。PEC と双極子モーメントは我々が過去に計算したものを利用する[1]。

3. 結果と考察

我々はすでに、分子軸が電場の偏光方向と平行である場合の同位体選択的振動励起の最適制御問題について議論している[2,3]。まずこのとき求められた最適電場を用いて、遷移確率(yield)の配向角度依存性を調べた。計算結果を図 1 に示す。図 1a-1d は、それぞれターゲット状態が(v_{133}, v_{135}) = (0,1), (0,2), (0,3), (0,4)である場合の結果を示す。設定したパルス時間 T は、460,000, 920,000, 1,840,000 au (11.1, 22.2, 44.5 ps)である。配向角が 90°のとき電場と分子との相互作用はゼロとなるため何も起こらないが、遷移確率は($|\langle\psi_{133}(T)|\Phi_{133}\rangle|^2 + |\langle\psi_{135}(T)|\Phi_{135}\rangle|^2)/2$ で定義しているため 0.5 となる。図中に示された値は $\sum_A p_A \int_0^\pi d\theta \sin\theta \left|\langle\psi_A(T,\theta)|\Phi_A(\theta)\rangle\right|^2 \Big/ \int_0^\pi d\theta \sin\theta$ により求めた平均値である。ターゲット状態が(v_{133}, v_{135}) = (0,1)および(0,2)で T = 920,000 au のとき、配向角の増加に対する遷移確率の減少は比較的緩やかであることがわかる。その平均値はそれぞれ 0.544, 0.527 と算出され、明らかに 0.5 を上回っている。このことは、分子軸と電場が平行な場合に求められた最適電場であっても、ランダムに配向した分子の ensemble 全体に対してある程度の制御性があることを示している。



[1] Y. Kurosaki, L. Matsuoka, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, J. Chem. Phys. **128**, 024301 (2008).
[2] Y. Kurosaki, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, J. Mol. Struct. THEOCHEM **913**, 38 (2009).
[3] Y. Kurosaki, K. Yokoyama, and A. Yokoyama, J. Chem. Phys. **131**, 144305 (2009).

4.19 レーザー光還元による白金族元素分離回収技術の開発

―レーザー光還元における波長依存性－

Development of Novel Separation and Extraction of Platinum-Group Metals by Laser Photo-Reduction：Dependence of Laser Wavelength

大場弘則、佐々木祐二*、佐伯盛久
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 （*原子力基礎工学部門）
Hironori OHBA, Yuji SASAKI*, Morihisa SAEKI
Quantum Beam Science Directorate (*Nuclear Science and Engineering Directorate), JAEA

The laser wavelength dependence on the reduction rate in a photoredox reaction process for extraction of platinum group metal has been examined. The photoredox reaction of Rh trivalent ions in an aqueous solution with a concentration of 0.5 mM of $RhCl_3$ is performed by using a Nd:YAG laser light (355 nm, or 266 nm) or an ArF excimer laser light (193 nm). Since the legand-to-metal charge transfer (CT) in Rh(III) aqua chlorocomplexes have a strong absorption peak around 245 nm, the wavelength of laser light, 266 nm and 193 nm, can be excited the CT band effectively. The 193 nm laser light was better suited for the reduction of Rh trivalent ions compared to the 266 nm light. A more suitable reduction was observed for the Rh trivalent ions in a water/ethanol (1/1) mixture solution during the 193 nm light irradiation.

Keywords: Laser photo-redox, Platinum group metal extraction, Rhodium chloride aqueous solution

１．はじめに

原子力発電施設から取り出された使用済核燃料の再処理工程では、多くの長寿命の放射性各種がイオンとして溶解している高レベル放射性廃液が発生する。高レベル放射性廃液には核分裂生成物である白金族元素が溶解しており、これらの分離回収は環境負荷軽減のみならず、資源としての再利用に有効である。我々は、紫外波長領域にある白金族元素イオンの電荷移動吸収帯（CT遷移帯）を光励起して正イオンを還元し、中性化して微粒子を溶液中に形成させることによって高レベル放射性廃液から白金族元素（パラジウム、ロジウム、ルテニウム）を分離回収する技術の研究開発を行っている。これまでに、ネオジム、パラジウム、ロジウム、ルテニウムの塩化物を水/エタノール（＝1/1）混合溶液に溶解し、これに Nd:YAG 4 倍高調波を 40 分間照射して微粒子を生成させ、ネオジムを溶液中に残したまま、パラジウム、ロジウムは 99%以上、ルテニウムも 52%の割合で回収できることを確認している[1,2]。今後、白金族元素同士を相互分離するためには元素単体での光還元過程を調べる必要がある。今回は、ロジウム元素について分離回収効率の向上のために光還元過程におけるレーザー波長依存性を調べた結果を報告する。

２．実験

水/エタノール（＝1/1）混合溶液に $RhCl_3$ を溶解させて濃度 0.5 mM のロジウムイオン水溶液を調整した。調整した水溶液 2 mL を石英セルに入れ、撹拌しながら横方向からレーザー光を 40~60 分間照射した。使用したレーザーは、ArF エキシマ（193 nm=6.4 eV）、 Nd:YAG 4 倍高調波（266 nm=4.66 eV）、Nd:YAG 3 倍高調波（355 nm=3.49 eV）であり、繰返し 10Hz、ビーム径 5 mm とし、レーザー出力は光子エネルギーを考慮してそれぞれ 13.7 mJ、24-28 mJ、38.6 mJ に設定した。還元の進行はロジウムイオン水溶液の吸収スペクトルをレーザー光照射前後で紫外可視吸収分光光度計（日本分光製　V-660）を用いて測定し、レーザー照射時間と吸収スペクトルピーク強度の関係から調べた。また、ArF エキシマレーザー照射では、照射強度、水溶液、水/エタノール（＝1/1）混合溶液についても還元進行度を調べた。

３．結果および考察

ロジウムイオン水/エタノール混合溶液に ArF エキシマレーザー光を照射したときの紫外可視吸収スペクトルの時間変化を Fig.1 に示した。溶液調製してレーザー光照射直後までは、Rh-Cl 錯体の金属と配位子との間で電子の授受が行なわれる CT 遷移帯に起因する強い吸収ピークが紫外線領域に見られる。ArF エキシマレーザー光は CT 遷移帯の高エネルギー側を励起することができるので、照射を続けると配位子から中心金属への電荷の移動が起きて還元が進行し、吸収ピークは減少する。ロジウムイオンの還元に伴って微粒子が形成されるために散乱によって見かけの吸収量が増加し、測定される全波長領域でベースラインが上昇している。

Fig.2 はロジウムイオンの CT バンドに起因する吸収ピーク(~245 nm)と波長 550 nm での吸収ピークの比を照射時間に対して示した。還元が進行すると、245 nm での吸収が減少し、550 nm での吸収が増加するのでピーク比は大きくなる。さらに還元の完了に近づくとスペクトル形状が変化しなくなるためにピーク比が飽和する。なおこれら吸収スペクトルピーク比については、誘導結合プラズマ発光分光装置（ICP-AES）を用いたレーザー照射時間に対する水溶液中ロジウムイオン

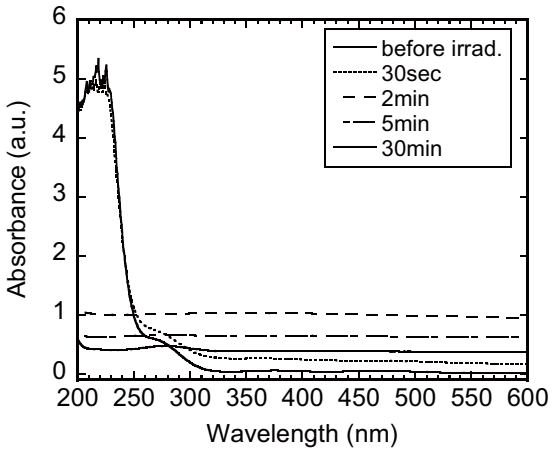


Fig.1. UV-vis spectra of 0.5 mM Rh aqueous solution before and after ArF laser irradiation. The time evolution of absorption spectra was examined during the photoreduction.

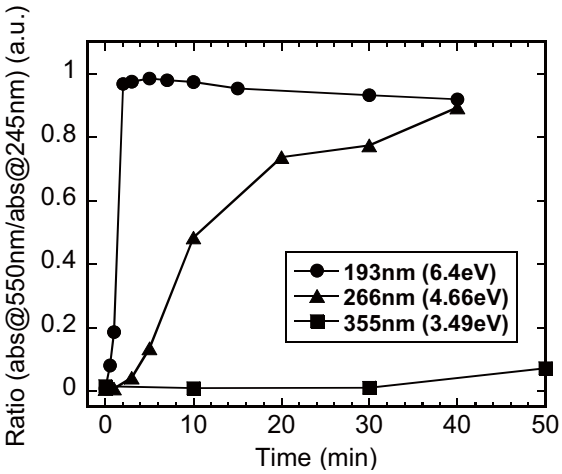


Fig.2. Time evolution of absorption ratio of peak at 550 nm to peak at 245 nm during laser irradiation of ●: ArF laser; ▲: Nd:YAG 4ω; ■: Nd:YAG 3ω.

濃度変化測定により、還元率として説明できることを確認した。CT 遷移帯は 245 nm 付近にピークを持つので 355 nm 励起では還元進行が緩慢である。一方 266 nm 励起は CT バンドに近いだけでなく光子エネルギーが高いために還元が速く進行する。また 193 nm 励起では、さらに短時間で還元が進行している。193 nm 励起ではエタノールの光分解も加わるために還元が促進されると考えられる。これらの結果から還元過程が光子エネルギーに大きく依存することが確認できた。

Fig.3 は ArF エキシマレーザー光の照射条件下で、ロジウムイオン水溶液を用いてレーザー照射強度を変えた場合、レーザー照射強度は同じでロジウムイオン水溶液を水/エタノール（＝1/1）混合溶液に替えた場合の還元進行度を調べた結果である。193 nm レーザー光照射では、CT バンドの直接励起および水の光分解により還元が進行する。水溶液を用いた場合の還元進行度は、Fig.2 と比較すると、水/エタノール（＝1/1）混合溶液を用いた 266nm 照射時の還元進行度とほぼ同等であり、入射した光子エネルギーに依存することが確認できた。レーザー光強度が増加すると光子数が増えるので水の分解が顕著となり還元が速くなる。一方、水/エタノール（＝1/1）混合溶液ではエタノールの光分解が容易におきるので、より還元が促進される。これらの結果は、ロジウムイオンについては、レーザー強度を増加させるよりエタノールを添加するのが還元効率の向上には有効であることを示している。

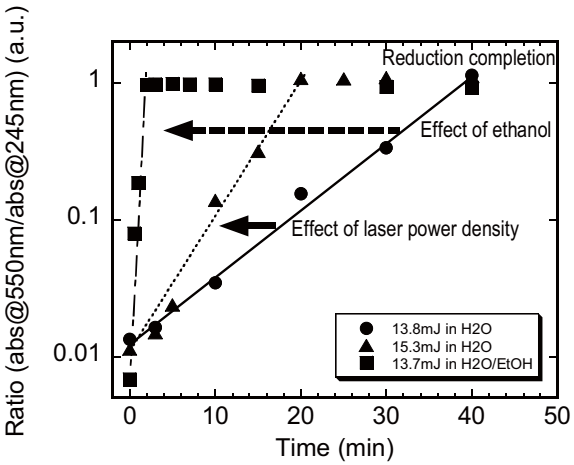


Fig.3. Time evolution of absorption ratio of peak at 550 nm to peak at 245 nm during ArF laser irradiation. The laser powers and solutions are ●: 13.8 mJ, distilled water; ▲: 15.3 mJ, distilled water; ■: 13.8 mJ, distilled water/ethanol mixture.

４．まとめ

本研究では、ロジウムイオンを含む水溶液を対象に還元進行度に対する照射レーザーの波長（光子エネルギー）および照射強度の影響を調べ、励起波長や溶媒に大きく依存することを確認した。今後は、パラジウム、ロジウム、ルテニウムについて各元素単体での還元完了時間を調べて相互分離の可能性を評価する。

参考文献

[1] 佐伯、大場、佐々木、「レーザー光還元による微粒子生成過程を利用した白金族元素の分離・回収法」特願 2009-129298
[2] 佐伯、佐々木、江坂、大場、JAEA-Conf 2010-002(2010) 142-144.

4.20 FBG を使用する配管モニタシステムの設計と実装

Design and Implementation of Piping Monitor System Using FBG

島田幸洋 [1)]、西村昭彦 [1)2)]
独立行政法人日本原子力研究開発機構 敦賀本部レーザー共同研究所
量子ビーム応用研究部門　光量子融合研究グループ
Yukihiro SHIMADA [1)] and Akihiko NISHIMURA [1)2)]
[1)] Applied Laser Technology Institute, Tsuruga Head Office, JAEA
[2)] Quantum Beam Science Directorate, JAEA

Fiber Bragg Grating (FBG) is the periodic refractive-index structure in an optical fiber core, where the light of a specific wavelength is reflected. It can be used as temperature or a distorted sensor by measuring change of the reflective wavelength of FBG. We processed FBG using a Chirped Pulse Amplification Erbium-doped Fiber laser. Heating test under operational temperature of Fast Breeder Reactors is now planed. The heat-resistant FBG sensor developed using ultra-short pulse laser processing will contribute to the surveillance of power plants for seismic safety.

Keywords: Fiber Bragg Grating, Pulse Laser Processing, High Temperature Piping, Seismic Safety

1. はじめに

発電用原子炉施設等の大型プラントにおいて、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とすることが求められている。一方、土木建築の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の手法が既に実用化されている。このような背景から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[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。透過または反射する光のスペクトル特性は $\lambda = 2nL$ 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、反射光の中心波長の変化を測定することで遠隔モニタリングを行う事が可能である。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℃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。FBR における Na 冷却配管や HTTR 等の高温条件下での使用は不可能である。

一方、近年の超短パルスレーザーの発展により石英等の高脆化材料への精密加工技術が発達し、FBG の直接加工が可能となった。その結果、従来法にて製作したセンサと比較してより高温での使用が可能となり、長周期型の FG センサでは 500℃までの使用が可能となった[2]。しかし従来

法と同等の計測精度を得るためには短周期型の FBG センサが望まれる[3]。我々はフェムト秒超短パルスレーザーを用いた point by point 法加工にて高温耐性のある短周期型 FBG センサの製作とその特性に合わせた計測システムの開発を行っている[4]。今回は加工方法を改善し、歪みセンサとしての性能向上を図った実験結果について報告する。更に動的な振動計測に対応する、波長可変光源の製作についても報告する。

２． フェムト秒短パルスレーザーによる FBG センサの加工製作

２．１ 加工装置

今回 FBG センサの加工製作に使用したレーザーは発振波長が 1560nm の Er ファイバーレーザーの 2 倍波を CPA 増幅したものである。位相差顕微鏡に導入し、対物レンズを通して試料に照射する。加工点での波長は 780nm、時間幅は約 150fsec、繰り返しは 10Hz、パルスエネルギーは約 2μJ である。レーザー装置の模式図を Fig.1 に示す。加工する光ファイバー試料は振動を避けるため止めずに一定速度でハーモニックドライブ駆動ステージにて移動し、1 点あたり 1 回の照射で加工を行うため目的とするブラッグ波長に合わせるべく移動速度を変化させている。オッシレーター部を Ti:Sa レーザーから Er ファイバーレーザーへ換装することで､繰り返し間隔が安定化し、加工精度が向上した。コアに加工した FBG 構造の位相差顕微鏡像を Fig.2 に示す。使用した加工試料はコア径 8μm の通信用シングルモードファイバーである｡光ファイバーの形状は円筒状であるため、横から加工用のレーザー光を照射した場合、光の伝播方向と動径方向では焦点の位置が異なり加工形状が真球とはならない。この現象を回避するために光ファイバーの周囲を屈折率整合液（n=1.53、1-ブロモナフタレン）で満たし、円筒形状を光学的に補正した[5]。

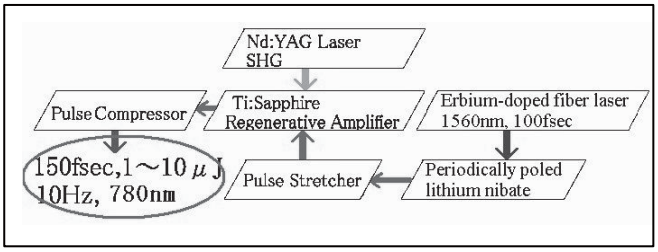


Fig. 1 Schematic diagram of CPA laser for FBG structure processing.

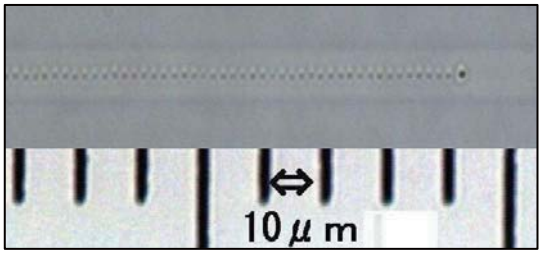


Fig. 2 Phase contrast microscope image of processed optical fiber.

２．２ 製作した FBG の耐熱試験

製作した FBG の反射スペクトルを Fig.3 に示す。加工間隔は 1590nm であり、3 次のブラッグ波長に相当する。点数は 50 点、長さは約 80μm の加工の結果、線幅 4nm の反射スペクトルを確認した。この FBG 部位に対して 600℃、1 時間の加熱前後の反射スペクトルを比較した結果、大きな劣化は見られなかったことから、今回加工製作した FBG 構造は高温でも保存されることを確認した[5]。しかし大気環境下での加熱後の光ファイバー試料は脆化が進行し、実用に耐えうる強度を保持できないため、実用化には外皮の保護等の対

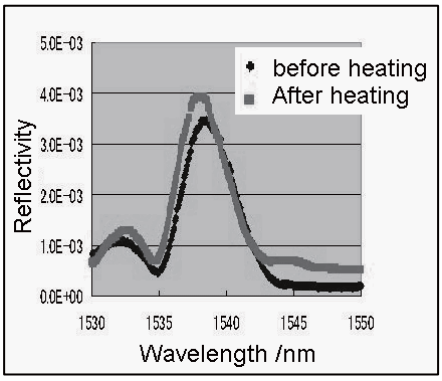


Fig. 3 Comparison before and after heating of FBG spectrum.

策が必須である。

２．３ FBG の反射スペクトルと加工条件

FBG を歪、温度センサとして用いる際の性能は反射波長スペクトルの形状に強く依存し、線幅が狭いほど測定分解能は向上する。加工点数を変化させた結果を Fig. 4 に示す。加工間隔は 1639nm、点数は 600 点、総加工長は 980μm である。その結果、線幅は 1.2nm と向上したものの、同時にサテライトピークが顕著に現れている。これは FBG センサとしての誤差の原因となるが、ピーク波長検出のアルゴリズムの改良によって誤差を低減させる事が可能である[6]。

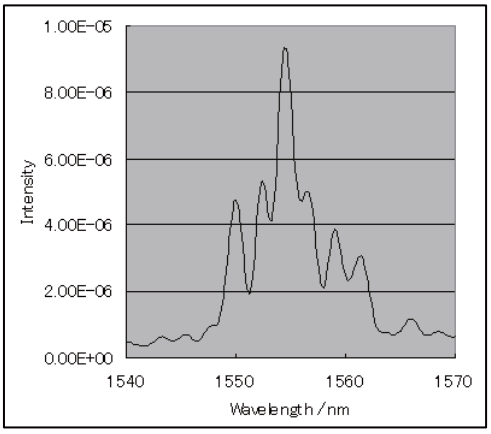


Fig. 4 Reflected spectrum of FBG structure.

３． FBG 検出のための Er ファイバーレーザーの製作

通常、FBG センサを用いて歪や温度計測をする際はブラッグ波長に対応した白色光源と分光器を用いて FBG センサからの反射スペクトルの変化を測定する。しかし測定精度向上のためには高精度の分光器が必須であり、温度変化を避けられないプラントでの現場測定には適してはいない。そこで我々は FBG センサの計測に最適化した、LD 励起 Er ファイバーレーザーの製作を行った。本装置の概略図を Fig.5 に示す。本装置の利点は以下の通りである。

1) 励起のための LD 光源は信頼性の高い一般的な通信用の素子が使用可能であるから、小型でロバスト、安価なシステムの構築が可能。

2) 光の検出部はフォトダイオード等の強度検出器が使用できるので高速測定が可能。地震動などの動的な歪測定にも対応する。

3) 通常の FBG 計測では多点計測を実現するためには異なる波長の FBG センサを使用することが必須であり、多点同時計測には限界が生じる。この方法では単一波長の FBG センサを直列に繋ぎ合わせて到達時間で弁別を行うため計測点数の上限値が高くなる[7]。

製作した波長可変光源の出力スペクトルを Fig.6 に示す。1530nm から 1560nm までの領域で線幅が 0.1nm 以内の安定した光出力を確認した。反射率や線幅などを最適設計した FBG と計測系を組み合わせることで、より高度なオンライン計測システムが構築できる。

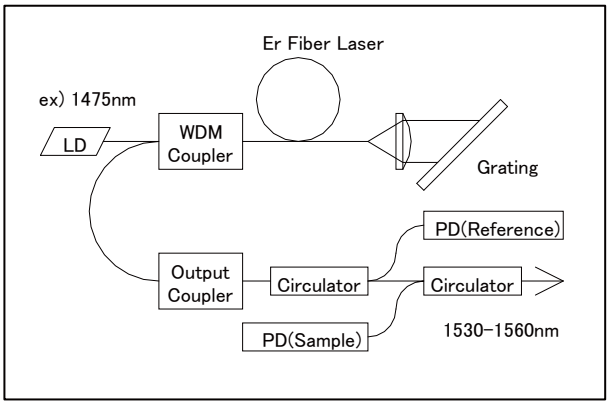


Fig. 5 Schematic diagram of Erbium fiber laser for FBG mesurement.

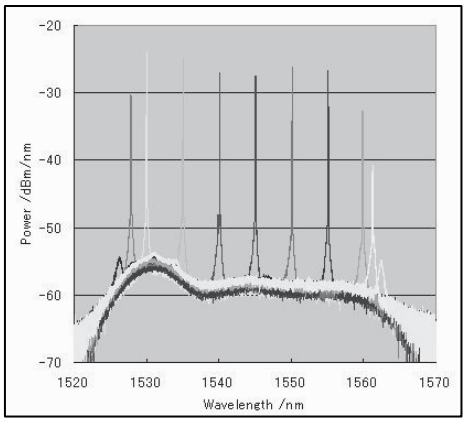


Fig. 6 Wavelength characteristic of Erbium laser.

４． FBG センサの実装検討

実際のプラントにて FBG センサシステムを運用するためには配管への実装方法を検討する必要がある。Fig.7 は配管の加圧試験装置の一部である。鋼製の配管に対して荷重し、多点歪センサにて変形の測定を行うことが可能である。今後は製作した FBG センサの配管への設置及び既存の歪センサとの計測値の整合検査を行う予定である。

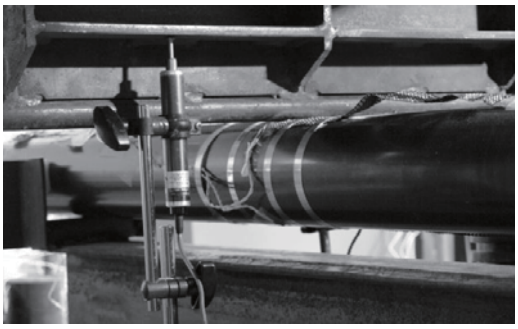


Fig. 7 Pressurizing examination machine of piping

５． まとめ

フェムト秒パルスレーザーを用いた point-by-point 法による FBG センサ加工製作を行った。高温試験の前後で波長特性が大きく変化しないことからこの FBG 構造が耐熱性有る事を確認した。また、耐熱 FBG センサと波長可変光源を組み合わせた計測手法は近年重要性が議論されている原子力発電プラント等の耐震保全活動[8]において、高温機器を常時モニタリング、健全性を評価する強力な方法となる。

謝辞

FBG センサの実装検討においては株式会社熊谷組様の助言をいただき、装置をお借りいたしました。常陽への実装検討に関しては原子力機構大洗研究開発センター　伊藤主税博士、青山卓史博士、川原啓孝博士より貴重な議論をしていただきました。また、FBG センサの加工、検出実験においては福井大学大学院工学研究科　小林喬郎教授、原子力機構次世代原子力システム研究開発部門　猿田晃一博士、月森和之博士には本研究の全体において貴重な助言と協力をいただきました。謹んで感謝いたします。

参考文献

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

[2] Y.Kondo, K.Nouchi, T.Mitsuyu, M.Watanabe, P.G.Kazansky and K.Hirao, OPTICS LETTERS 24,646-649 (1999).

[3] A.Martinez, M.Dubov, I.Khrushchev, I.Bennion, Electron. Lett. 40, 1170-1172 (2004).

[4] 島田、増住、西村、土井、月森、″耐熱 FBG による高温構造物の振動変形モニタリング技術の開発″、原子力学会 2008 年春の年会予稿集 J25.

[5] Y.Shimada, A.Nishimura, M.Yoshikawa, T.Kobayashi, “Design of monitoring system of high temperature piping system by heat resistant fiber Bragg grating”, J of Laser Micro/Nanoengineering, 5,99-102 (2010).

[6] 猿田、月森、島田、西村、″高速炉高温構造物の健全性モニタリングのための耐熱 FBG センサの開発,″ 日本保全学会第６回学術講演会要旨集、2009、pp.133-138.

[7] T.Kobayashi, Y.Enami, H.Ishikawa, ″Highly Accurate Fiber Strain Sensor based on Low Refractive Fiber Gratting and Fiber Fabry-Perot Cavities.″, 18th Int. Optical Fiber Sensors Conf. (OSA, 2006), paperTuE12.

[8] 「中越沖地震の教訓と耐震安全研究」,安全研究フォーラム, 原子力安全委員会, (2008).

4.21 高強度 X 線レーザー照射によるキセノンクラスターの内殻電離ダイナミクス

Innershell Ionization in Xenon Clusters Irradiated with an Intense X-ray Laser Pulse

難波愼一 [A)], 長谷川登, 岸本牧, 錦野将治, 、河内哲哉

A) 広島大学大学院工学研究科
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

Shinichi NAMBA[A)], Noboru HASEGAWA, Maki KISHIMOTO,
Masaharu NISHIKINO, Tetsuya KAWACHI

A) Graduate school of Engineering, Hiroshima University
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

In order to clarify an interaction between xenon (Xe) clusters and a soft x-ray laser (wavelength: 13.9 nm, pulse width: ~7 ps, intensity: 2×10^{10} W/cm^2), we measured the energy distribution of photo- and Auger electrons as well as the ion mass spectrum. Since the photon energy of the soft x-ray laser (89.2 eV) is sufficiently high to photoionize Xe 4*d* inner electrons, inner-shell ionization rather than valence-shell ionization is the dominant ionization process, resulting in the Auger decay. It was found that prominent photo- and Auger electron peaks were not observed, while the continuum energy spectra dominated line peaks. Moreover, the energy distribution obtained implies the production of low temperature plasma.

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

1. はじめに

内殻電子の光電離に伴う光電子やオージェ電子のスペクトル分析は、高分子の構造解析などの物性研究に強力な研究手段を提供する。というのも、より外側に存在する価電子は隣接する原子の影響でエネルギー構造が単一の原子分子と比較して大きく歪められるが、内殻電子はより原子核と強く結びついており、その影響をほとんど受けないためである。通常、このような物性研究は放射光施設等で行われているが、1 パルス中に含まれる光子数は非常に少ない。したがって，X 線と物質の相互作用、特に、非線形光学効果の検証や光電離プラズマの発生には第 3 世代放射光と比較しても格段に高い光強度が必要となる。そのため、このような研究を行うためには短パルス・高強度の X 線レーザーを用いる必要がある。

本研究の目的は、原子力機構にて開発されたプラズマ励起 X 線レーザー(波長: 13.9 nm, パルス幅: ~7 ps, 集光強度: ≦2×10^{10} W/cm^2)をキセノン(Xe)クラスターに照射し、高強度 X 線に晒されたクラスター内での内殻電離過程を明らかにすることにある．Xe の場合、4*d* 内殻電子の光電離断面積は~16 Mb (1 Mb=1×10^{-18} cm^2)と最外殻電子 5*p* の値(~1.5 Mb)よりも一桁以上大きな値を持つ．ここで、多数の原子の集合体であるクラスターに着目したのは、原子とバルクの中間に位置し、その大きさや形状に応じて特異な光学的、磁気的特性を示すことが知られており、その物性を理解することは新機能性材料開発には不可欠だからである。さらに、クラスターは固体と比較

して簡単な系であるため、その物性解明は生体高分子等のより複雑な系における構造解析を行う上で有益な情報をもたらすと考えられている。

これまでの実験では 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内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 Xe^{3+}イオンが支配的に発生することが判明した[1]．さらに、レーザー強度に対しても同様の傾向を示した．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．ここで、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 4*d* 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(normal Auger)が最も大きいことが放射光の実験で判明している[2]．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．

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 DA 過程により Xe^{3+}イオンへ脱励起可能な遷移数が増えたことに起因する特異な現象と考えている．図 1 に内殻電離に付随するエネルギー準位図を示す．本研究では，電子スペクトルを TOF 型電子分光器で計測し，電子のエネルギー分布関数がどうなっているのかを調べたので報告する．

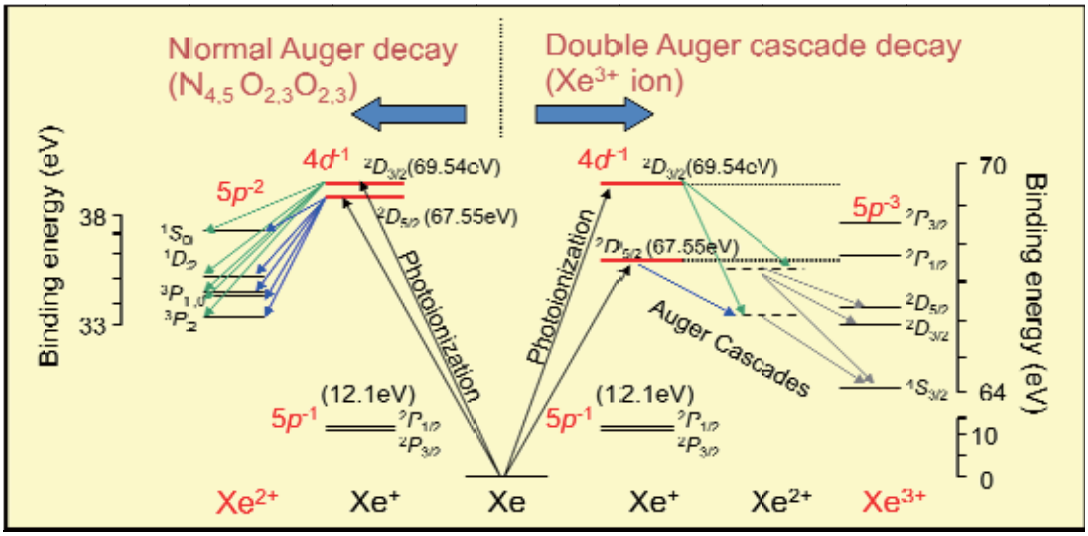


図 1. Xe 4*d* 内殻電離に伴う崩壊過程のエネルギーレベル図.

2. 実験装置

原子力機構にて開発が行われたプラズマ励起軟 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[3]、波長 13.9 nm ($\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-4}$)、パルス幅 ~7 ps、繰り返し 0.1 Hz, エネルギー >100 nJ である．集光は焦点距離 1 m の Mo/Si 多層膜球面鏡を用いて行った．照射強度は 2×10^{10} W/cm^2 以下である．

クラスターは高圧ガスを超音速圧縮膨張ノズル(スロート径 0.2 mmϕ)から真空中に断熱自由膨張させて生成したファンデルワールスクラスターであり，中心部の高密度部分のみをスキマーにより抽出している．レーザーとの相互作用長は約 1 mm である．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 10^3~10^6

atoms/cluster である[3]．クラスタービームの時間・空間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．

一方、イオン TOF 装置に対向する位置には μメタルにより磁気シールドされた電子 TOF を設置し、電子の飛行時間からエネルギー分布の計測を行った．図 2 に実験装置概略図を示す．

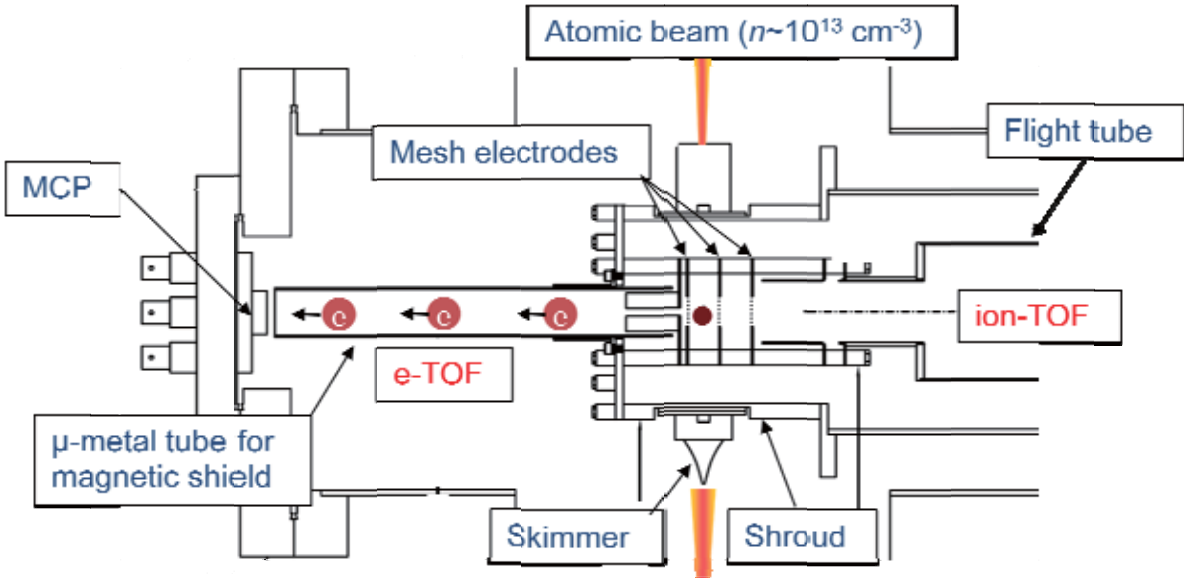


図 2. 実験装置概略図

3. 実験結果

これまでにイオン TOF 計測で得られた Xe^{3+}イオンの効率的生成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[5]．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 Xe $4d^1$ 準位から Xe^{3+}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．クラスター内部でこのような強結合プラズマが発生していることを確認するために、電子エネルギー分布計測を行った．

図 3 に今回電子 TOF 計測で得られたエネルギー分布関数を示す．図 5(a)は電子分光器の分解能を考慮し，光電子・オージェ電子のスペクトルを予想したものである．ただし，スペクトル分布はローレンツ型を仮定した．図(b)~(d)はそれぞれクラスターサイズ 2×10^5，1.5×10^4，600 atoms/cluster の場合のスペクトルである．図より明らかなように，明確な光電子・オージェ電子ピークは観測されず，電子・電子，電子・フォノンとの相互作用によるエネルギー緩和過程が無

視できないことが分かる．また，マクスウェル分布を仮定した時の温度を直線で各図中に示してある．数 eV 程度のプラズマが発生していることが分かり，強結合プラズマが発生していることが確かめられた．以上の結果より，DA 崩壊確率増大メカニズムとしては低温高密度クラスタープラズマ中での IP 低下が最も有力と結論づけた．

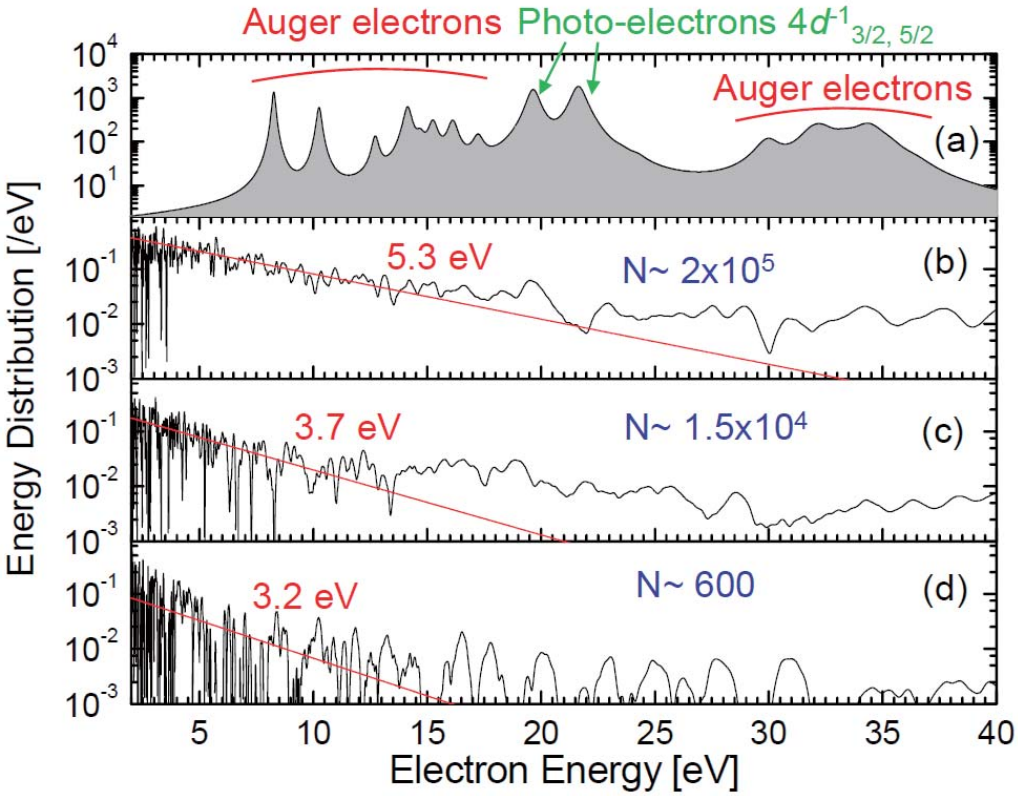


図 3. TOF 計測により得られた電子エネルギー分布関数．放射光で得られたオージェ電子の各スペクトルをローレンツ分布でコンボリュートした結果(a)も示してある．

4. まとめと今後の課題

X 線レーザー・Xe クラスター相互作用における内殻電離過程を解明するために、イオン・電子 TOF 計測を行った．その結果，DA 崩壊確率増大メカニズムとしては，強結合クラスタープラズマの発生，及び，それに伴う IP の低下が原因として考えられる．今後，磁気ボトル型電子分光器を製作し，高分解スペクトルを計測する予定である．

参考文献

[1] S. Namba *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99** 043004 (2007).

[2] T. Luhmann *et al.*, Phys. Rev. A **57**, 282 (1998).

[3] T. Kawachi *et al.*, Phys. Rev. A **66**, 033815 (2002).

[4] O. F. Hagena and W. Obert, J. Chem. Phys. **56**, 1793 (1972).

[5] A.V. Gets and V. P. Krainov, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **39**, 1787 (2006).

4.22 フレネルゾーンプレート集光軟X線レーザーによる Zn0 シンチレーターの空間分解能測定

Evaluation of ZnO Fast Scintillator Spatial Resolution Using the FZP-focused X-ray Laser

田中桃子[1]、中里智治[2]、清水俊彦[2]、山ノ井航平[2]、酒井浩平[2]、猿倉信彦[2]、
錦野将元[1]、大場俊幸[1]，海堀岳史[1]、越智義浩[1]、河内哲也[1]、Dirk Ehrentraut[3]、福田承生[3]、
原子力機構[1]、大阪大学レーザー研[2]、東北大学[3]
Momoko TANAKA[1], Tomoharu NAKAZATO[2], Toshihiko SHIMIZU[2], Kohei YAMANOI[2],
Kohei SAKAI[2], Nobuhiko SARUKURA[2], Masaharu NISHIKINO[1], Toshiyuki OHBA[1],
Takeshi KAIHORI[1], Yoshihiro OCHI[1], Tetsuya KAWACHI[1],
Dirk EHRENTRAUT[3], Tsuguo FUKUDA[3],
Japan Atomic Energy Agency[1], Osaka univ. ILE[2], Tohoku univ.[3]

The spatial resolution of hydrothermal method grown zinc oxide (ZnO) scintillator was evaluated using x-ray laser focused with Fresnel zone plate. The fluorescence image of the ZnO scintillator was measured to be less than 10 μm using CCD camera coupled with a Schbartzchild expander mirror. The availability of large size ZnO crystal up to 3-inch is quite attractive for future lithography and imaging applications

Keywords: EUV scintillator, ZnO, X-ray laser

次世代リソグラフィへの応用が期待される極端紫外(EUV)光源の進歩により[1, 2]、この波長領域における機能的な光学素子の開発にも強い関心が集まっている。その一つが光源診断にも応用可能な EUV シンチレーターである。これまで、我々のグループでは、発光寿命・波長、結晶の品質の点で優れたシンチレーター材料になりうる酸化亜鉛(ZnO)[3]に注目し、有力な EUV シンチレーター材料であることを明らかにし、高速化にも成功するなど成果を挙げてきた[4-7]。本研究では、この ZnO 結晶を画像素子として応用することを目指し、軟X線レーザーを用いて空間分解能の評価を行った。

ZnO 単結晶は、東北大学で白金容器を用いた水熱合成法により作成され、東京電波株式会社により 10 mm × 10 mm × 0.5 mm にカットし（0001）面で研磨されたものを使用した。空間分解能評価は、原子力機構のニッケル様銀軟X線レーザー[8]を用いて行った。このレーザーは波長が 13.9nm であり、高反射率の多層膜ミラーが作成可能であるために次世代リソグラフィへの応用が期待される波長範囲に含まれることから、EUV 光学素子の評価を行うのに適した光源である。Fig.1 に示したように、軟X線レーザーをフレネルゾーンプレート(FZP)で集光して真空中に設置した ZnO 結晶に照射し、その発光パターンを石英窓を通して、可視光の拡大光学系により観測した。FZP は Applied Nanotools 社製の直径 500μm、焦点距離 10mm、センターブロック付きのものを使用した。また、発光を計測するための可視光の観測系は、シュバルツシルトミラーとカメラ

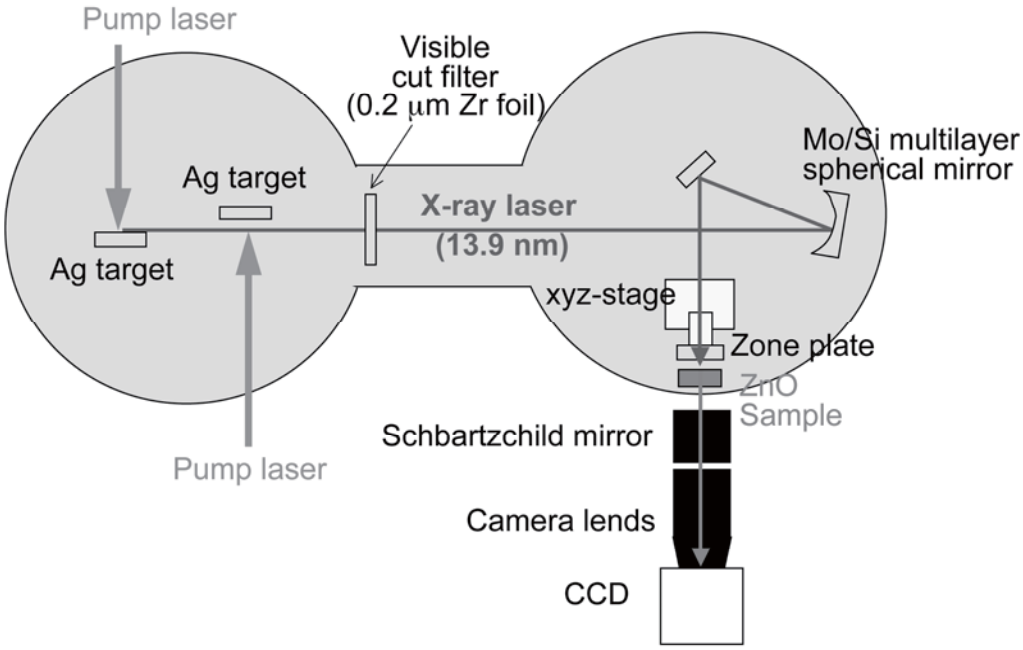


Fig. 1.　Experimental set-up.

用レンズを組み合わせて構築し CCD で撮影した。観測系は、オフラインでテストパターンを用いて評価し、試料上で 2μm の空間分解能が得られることを確認した。

Fig.2 に、焦点付近を中心に FZP をずらしていった時の発光のスポット径をプロットしたものを示す。発光パターンはすべてシングルショットで撮影した。図より、発光のスポット径として 10μm 以下まで確認することができた。FZP による理論的な集光径は 1μm 以下であり、得られた発光パターンは ZnO 結晶の空間分解能を反映していると考えられる。この値は、現在市販されて

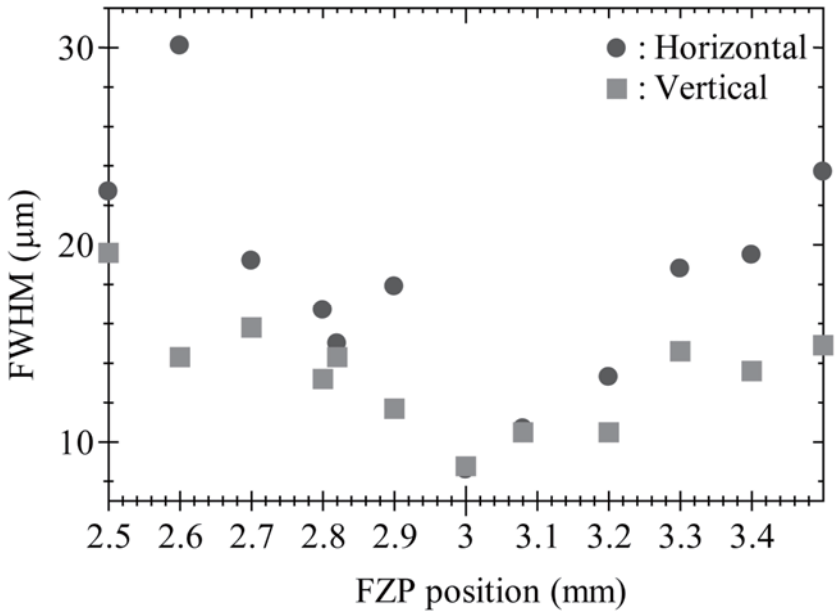


Fig. 2. The fluorescence spot size of the ZnO crystal around focusing position of FZP.

いる軟X線用 CCD の画素サイズ 13μm と比べて小さく、また ZnO が直径 3 インチ程度まで単結晶の作成が実現していることから[3]、ZnO 単結晶が EUV 領域での画像素子として有望であることを示している。今後はより広範な応用範囲を探るために、可視光や放射光光源など他の波長領域との比較を行う予定である。

参考文献

[1] Y. Shimada et al., Appl. Phys. Lett., **86** (2005) 51501.
[2] S. Fujioka et al., Phys. Rev. Lett., **95** (2005) 235004.
[3] D. Ehrentraut, Prog. Cryst. Growth Caract. Mater. **52** (2006) 280.
[4] M. Tanaka et al., Appl. Phys. Lett., **91** (2007) 231117.
[5] Y. Furukawa et al., J. Opt. Soc. Am. B, **25** (2008) B118.
[6] T. Nakazato et al., J. Crystal Growth, **311** (2009) 875.
[7] T. Shimizu et al., Rev. Sci. Instrum., **81** (2010) 033102.
[8] Y. Ochi et al., Jpn. J. Appl. Phys., **48** (2009) 120212.

付録．出席者名簿

Appendix　Participants　List

This is a blank page.

赤木　浩	（独）日本原子力研究開発機構
赤羽　温	（独）日本原子力研究開発機構
浅井　利紀	（独）日本原子力研究開発機構
飯塚　隆行	（独）日本原子力研究開発機構
生田　朋也	（独）日本原子力研究開発機構
石井　徹也	株式会社 フジクラ
石野　雅彦	（独）日本原子力研究開発機構
板倉　隆二	（独）日本原子力研究開発機構
伊藤　幸代	（独）日本原子力研究開発機構
伊東　富由美	（独）日本原子力研究開発機構
井上　茜	（独）日本原子力研究開発機構
井上　龍夫	（株）コンポン研究所
今園　孝志	（独）日本原子力研究開発機構
大石　祐嗣	（財）電力中央研究所
大垣　英明	京都大学　エネルギー理工学研究所
大場　俊幸	（独）日本原子力研究開発機構
大場　弘則	（独）日本原子力研究開発機構
岡田　漱平	（独）日本原子力研究開発機構
岡田　大	（独）日本原子力研究開発機構
小川　奏	（独）日本原子力研究開発機構
小倉　浩一	（独）日本原子力研究開発機構
小椋　幸男	（独）日本原子力研究開発機構
越智　義浩	（独）日本原子力研究開発機構
乙部　智仁	（独）日本原子力研究開発機構
甲斐　健師	（独）日本原子力研究開発機構
笠嶋　辰也	（独）日本原子力研究開発機構
梶野　祥平	大阪大学大学院工学研究科
梶村　好宏	宇宙航空研究開発機構
加道　雅孝	（独）日本原子力研究開発機構
金沢　修平	（独）日本原子力研究開発機構
神谷　信雄	（株）豊田中央研究所
川瀬　啓悟	（独）日本原子力研究開発機構
河内　哲哉	（独）日本原子力研究開発機構
河西　俊一	（独）日本原子力研究開発機構
神門　正城	（独）日本原子力研究開発機構
菊池　信義	日本アドバンストテクノロジー（株）
岸村　静	株式会社 フジクラ
岸本　牧	（独）日本原子力研究開発機構
桐山　博光	（独）日本原子力研究開発機構
熊川　銀河	広島大学
熊田　高之	（独）日本原子力研究開発機構
黒崎　譲	（独）日本原子力研究開発機構
小池　雅人	（独）日本原子力研究開発機構
小菅　淳	（独）日本原子力研究開発機構
小瀧　秀行	（独）日本原子力研究開発機構
小林　純	（独）日本原子力研究開発機構
近藤　公伯	（独）日本原子力研究開発機構
匂坂　明人	（独）原子力研究開発機構
笹井　浩行	株式会社島津製作所
佐藤　克俊	大阪大学大学院医学系研究科
佐野　一雄	島津エミット株式会社
佐野　雄二	（株）東芝　電力システム社
ジェームズ　コーガ	（独）日本原子力研究開発機構
静間　俊行	（独）日本原子力研究開発機構
柴田　浩昌	大阪市立大学
島田　幸洋	（独）日本原子力研究開発機構
秦　瑀	京都大学
末元　徹	東京大学 物性科学研究所
杉山　僚	（独）日本原子力研究開発機構
鈴木　将之	（独）日本原子力研究開発機構
鈴木　庸氏	原子力機構　敦賀本部 レーザー共同研究所
炭谷　利佳	（独）日本原子力研究開発機構
隅山　奈津子	（独）日本原子力研究開発機構
セルゲイ　ブラノフ	（独）日本原子力研究開発機構
曽我　篤	同志社大学　Ｄ－ｅｇｇ
大東　出	（独）日本原子力研究開発機構
高橋　俊晴	京都大学 原子炉実験所
立野　亮	（独）日本原子力研究開発機構
田中　桃子	（独）日本原子力研究開発機構
谷本　壮	（独）日本原子力研究開発機構
田村　浩司	（独）日本原子力研究開発機構

保　智己	（独）日本原子力研究開発機構
Zhe Zhang	大阪大学レーザーエネルギー学研究センター
土田　昇	（独）日本原子力研究開発機構
坪内　雅明	（独）日本原子力研究開発機構
永島　圭介	（独）日本原子力研究開発機構
中嶋　隆	京都大学　エネルギー理工学研究所
中尻　英幸	中沼アートスクリーン（株）
中野　正文	日本アドバンストテクノロジー(株)
中村　龍史	（独）日本原子力研究開発機構
菜嶋　茂喜	大阪市立大学
並河　一道	東京理科大学
難波　愼一	広島大学　大学院工学研究院
南波　秀樹	（独）日本原子力研究開発機構
西内　満美子	（独）日本原子力研究開発機構
錦野 将元	（独）日本原子力研究開発機構
西田　明憲	大阪大学エネルギー学研究センター
西村　昭彦	（独）日本原子力研究開発機構
西本　俊行	（株）日本レーザー
羽島　良一	（独）日本原子力研究開発機構
橋本　雅史	（独）日本原子力研究開発機構
長谷川　登	（独）日本原子力研究開発機構
早川　岳人	（独）日本原子力研究開発機構
林　由紀雄	（独）日本原子力研究開発機構
原田　善寿	(株)島津製作所
原山　清香	（独）日本原子力研究開発機構
樋口　英明	（独）日本原子力研究開発機構
Pirozhkov Alexander	（独）日本原子力研究開発機構
藤井　靖彦	東京工業大学
藤原　守	大阪大学　核物理研究センター
ポール　ボルトン	（独）日本原子力研究開発機構
細貝　知直	大阪大学　光科学センター
本田　道春	けいはんな新産業創出交流センター
益田　伸一	大阪大学　光科学センター
松岡　歩美	（独）日本原子力研究開発機構
松岡　雷士	（独）日本原子力研究開発機構
松本　雅彦	（独）日本原子力研究開発機構
水田　好雄	大阪大学工学研究科
村上　洋	（独）日本原子力研究開発機構
守田　利昌	（独）日本原子力研究開発機構
森林　健悟	（独）日本原子力研究開発機構
森　道昭	（独）日本原子力研究開発機構
安田　恵子	奈良女子大学　理学部
山内　俊彦	（独）日本原子力研究開発機構
山極　満	（独）日本原子力研究開発機構
山口　美保	（独）日本原子力研究開発機構
山﨑　淳	名古屋大学
山田　恭平	大阪市立大学
山本　稔	（独）日本原子力研究開発機構
余語　覚文	（独）日本原子力研究開発機構
横山　淳	（独）日本原子力研究開発機構
横山　啓一	（独）日本原子力研究開発機構
吉田　和弘	中沼アートスクリーン（株）
渡部　俊太郎	東京理科大学　総合研究機構

他３名

（五十音順）

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^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	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m^2
比体積	立方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
量濃度[a]，濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率[b]	（数字の）　1	1
比透磁率[b]	（数字の）　1	1

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン[b]	rad	1 [b]	m/m
立体角	ステラジアン[b]	sr[c]	1 [b]	m^2/m^2
周波数	ヘルツ[d]	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		$m\ kg\ s^{-2}$
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	$m^2\ kg\ s^{-3}$
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^3\ A^2$
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	$kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度[e]	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr[c]	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	$m^{-2}\ cd$
放射性核種の放射能[f]	ベクレル[d]	Bq		s^{-1}
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト[g]	Sv	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		$s^{-1}\ mol$

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。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である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	$m^{-1}\ kg\ s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg\ s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m\ m^{-1}\ s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m\ m^{-1}\ s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度，放射照度	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	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}$
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2\ s^{-2}\ K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	$m\ kg\ s^{-3}\ K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3}\ sA$
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ sA$
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ sA$
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2\ kg\ s^{-2}\ mol^{-1}$
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}\ mol^{-1}$
照射線量（X 線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1}\ sA$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2\ s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=m^2\ kg\ s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2\ sr)$	$m^2\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=kg\ s^{-3}$
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	$m^{-3}\ s^{-1}\ mol$

表５．SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨタ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^{6}	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

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=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	$1ha=1hm^2=10^4m^2$
リットル	L, l	$1L=11=1dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	$1t=10^3$ kg

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、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 単位で表される数値
電子ボルト	eV	$1eV=1.602\ 176\ 53(14)\times10^{-19}J$
ダルトン	Da	$1Da=1.660\ 538\ 86(28)\times10^{-27}kg$
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	$1ua=1.495\ 978\ 706\ 91(6)\times10^{11}m$

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	$1\ bar=0.1MPa=100kPa=10^5Pa$
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	$1\ Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m$
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	$1\ b=100fm^2=(10^{-12}cm)2=10^{-28}m^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デジベル	dB	

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	$1\ erg=10^{-7}\ J$
ダイン	dyn	$1\ dyn=10^{-5}N$
ポアズ	P	$1\ P=1\ dyn\ s\ cm^{-2}=0.1Pa\ s$
ストークス	St	$1\ St\ =1cm^2\ s^{-1}=10^{-4}m^2\ s^{-1}$
スチルブ	sb	$1\ sb\ =1cd\ cm^{-2}=10^4cd\ m^{-2}$
フォト	ph	$1\ ph=1cd\ sr\ cm^{-2}\ 10^4lx$
ガル	Gal	$1\ Gal\ =1cm\ s^{-2}=10^{-2}ms^{-2}$
マクスウェル	Mx	$1\ Mx = 1G\ cm^2=10^{-8}Wb$
ガウス	G	$1\ G\ =1Mx\ cm^{-2}\ =10^{-4}T$
エルステッド[c]	Oe	$1\ Oe \triangleq (10^3/4\pi)A\ m^{-1}$

(c) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表10．SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R = 2.58\times10^{-4}C/kg$
ラド	rad	$1\ rad=1cGy=10^{-2}Gy$
レム	rem	$1\ rem=1\ cSv=10^{-2}Sv$
ガンマ	γ	1 γ =1 nT=10-9T
フェルミ		1フェルミ=1 fm=10-15m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー）4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	μ	$1\ \mu\ =1\mu m=10^{-6}m$

（第8版，2006年改訂）

この印刷物は再生紙を使用しています