



JAEA-Conf

2013-001

JAEA-Conf

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

第13回光量子科学研究シンポジウム 論文集

2012年11月15日～16日、京都府木津川市

Proceedings of the 13th Symposium on Advanced Photon Research

November 15- 16, 2012, 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

September 2013

Japan Atomic Energy Agency

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<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

日本原子力研究開発機構
量子ビーム応用研究部門 第13回光量子科学研究シンポジウム
論文集

2012年11月15日～16日、京都府木津川市

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

(2013年4月4日受理)

平成24年11月15日～16日の2日間にわたり「第13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。

Proceedings of the 13th Symposium on Advanced Photon Research
November 15- 16, 2012, 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, April 4, 2013)

The 13th Symposium on Advanced Photon Research was held at Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency (JAEA-KPSI) in Kizugawa-shi, Kyoto on November 15 - 16, 2012.

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. シンポジウムプログラム	2
2.1 口頭発表一覧	2
2.2 ポスター発表一覧	5
3. プロシーディングス（口頭発表分）	
3.1 超高速電子イメージングに向けた多段レーザー航跡場加速	10
水田 好雄、細貝 知直（大阪大学）他	
3.2 Development and Applications of a New Soft X-ray Emission Spectrometer for Electron Probe Microanalysis and/or Nanoanalysis	13
高橋 秀之（日本電子）他	
3.3 軟X線レーザー干渉計と反射率計を用いたフェムト秒レーザーアブレーション ダイナミクスの計測	16
錦野将元（原子力機構）他	
3.4 損傷した福島第一発電所の調査のための検査システムの開発	20
西村 昭彦（原子力機構）他	
3.5 モンテカルロシミュレーションとゲル線量計による粒子線線量分布評価	24
石川 顕一（理化学研究所、東京大学）他	
3.6 重粒子線照射による二次電子の運動とプラズマ振動生成	28
森林 健悟（原子力機構）	
3.7 レーザー逆コンプトンガンマ線による宇宙核物理研究	32
嶋 達志（大阪大学）	
3.8 積分共鳴法及び光核分裂法による核共鳴蛍光非破壊測定のパフォーマンス向上	36
Christopher T. ANGELL（原子力機構）他	
3.9 Latent Tracks in Polymeric Etched Track Detectors	40
山内 知也（神戸大学）	

4. プロシーディングス（ポスター発表）

4.1 イオンビーム細胞照射におけるピーク強度依存性の解明に関する研究.....	44
野田 章（京都大学）他	
4.2 プラズマチャネルの周波数アップシフトへの影響.....	46
小瀧 秀行（原子力機構）他	
4.3 テラワットレーザー励起により金属箔ターゲットの後方に放射された高強度 THz 波放射	49
菜嶋 茂喜（大阪市立大学）	
4.4 レーザー航跡場加速のためのスプラッシュプラズマチャネル	52
水田 好雄（大阪大学）他	
4.5 レーザー航跡場加速における電子ビーム制御に関する研究	56
中原 弘貴（大阪大学）他	
4.6 Quantitative Ka Line Spectroscopy for Energy Transport in Ultra-intense Laser Plasma Interaction	60
Z. Zhang（大阪大学）他	
4.7 クーロン爆発と RPDA を効果的に用いたレーザーイオン加速	64
守田 利昌（原子力機構）他	
4.8 プラズマと放電の不均一性のパーコレーションモデル	67
佐々木 明（原子力機構）	
4.9 軟X線レーザーパルス照射によって形成される表面構造の観察.....	70
石野 雅彦（原子力機構）他	
4.10 軟X線シンチレーターとしての ZnO 結晶の空間分解能評価.....	73
中里 智治（大阪大学）他	
4.11 広帯域軟X線発光分光システムの開発	77
寺内 正己（東北大学）他	
4.12 Characterization of Cluster-gas Targets for Laser-driven Ion Acceleration.....	81
神野 智史（原子力機構）他	
4.13 時間分解反射率のピコ秒周期振動から探る石英のフェムト秒レーザーアブレー ションの研究.....	85
熊田 高之（原子力機構）他	

4.14 4 パルス分子整列による同位体選択的イオン化.....	88
赤木 浩（原子力機構）他	
4.15 Narrow-band Laser Amplifier System for Tunable UV Light Generation.....	90
松岡 雷士（原子力機構）他	
4.16 Theoretical Study on Isotope-Selective Rotational Excitation of Diatomic Molecules in an Optical Frequency Comb	93
市原 晃（原子力機構）他	
4.17 水中の固体を対象とした LIBS 技術の開発.....	97
利光 正章（原子力機構）他	
4.18 非断熱遷移過程を含む異性化反応の量子最適制御.....	101
黒崎 譲（原子力機構）	
4.19 酸化チタン微粒子を使った高レベル放射性廃棄物からの高融点金属および白金 族金属の選択的分離.....	103
佐伯 盛久（原子力機構）他	
4.20 液体フローを用いたレーザー誘起ブレイクダウン分光による溶存元素の分析.....	107
大場 弘則（原子力機構）他	
4.21 低温冷却型 Yb:YLF チャープパルス再生増幅レーザーの開発	111
赤羽 温（原子力機構）他	
4.22 福島原子力発電所事故のための内部検査技術開発.....	114
富吉 健太郎（原子力機構）他	
4.23 高経年化プラント配管内壁の検査技術の開発.....	117
伊東 富由美（原子力機構）他	
4.24 多機能型光ファイバ스코ープの医療応用	121
関 健史（原子力機構）他	
4.25 1 インチ伝熱管内壁の減肉損傷補修のためのレーザークラディングシステム の開発.....	125
寺田 隆哉（原子力機構）	
4.26 原子力発電所の機器の耐震保全のための耐熱光ファイバブラッグ グレーティングセンサーの実装検討	127
島田 幸洋（原子力機構）他	

4.27 原子力機構 敦賀本部 レーザー共同研究所の最近の活動	131
土田 昇（原子力機構）	
4.28 ガンマ線モノクロメーターを用いた同位体分析装置の提案	135
松葉 俊哉（原子力機構） 他	
4.29 使用済核燃料の非破壊分析における統計誤差	139
静間 俊行（原子力機構） 他	
4.30 高時空間品質レーザーシステムの開発	142
桐山 博光（原子力機構）	
4.31 高平均出力動作のための 298K から 393K における Yb 系セラミック材料の誘導 放出断面積の温度依存性評価	146
泉野 亨輔（同志社大学） 他	
4.32 軟X線顕微鏡を用いた細胞構造の可視化技術の高度化	148
岸本 牧（原子力機構） 他	
4.33 New Regime of High-order Harmonic Generation by Relativistic-irradiance Lasers ($I > 10^{18}$ W/cm ²) in Gas Jet Targets	151
A. Pirozhkov（原子力機構） 他	
付録 集合写真	154

Contents

1 . Introduction	1
2 . Program.....	2
2.1 Oral presentation.....	2
2.2 Poster presentation.....	5
3 . Proceedings (Oral presentations)	
3.1 Repeatable Electron Beam Generation Driven by Staged LWFA:Towards High-Quality Electron Source for Ultra-Fast Imaging.....	10
Y. Mizuta et al Osaka Univ.	
3.2 Development and Applications of a New Soft X-ray Emission Spectrometer for Electron Probe Microanalysis and/or Nanoanalysis	13
H. Takahashi et al, JEOL Ltd.	
3.3 Measurement of Femtosecond Laser Ablation by Soft X-ray Laser Interferometry and Reflective Imaging.....	16
M. Nishikino et al, QuBS. JAEA	
3.4 Development of the Probing System for Inspection of the Damaged Fukushima Daiichi BWRs	20
A. Nishimura et al, QuBS. JAEA	
3.5 Dose Evaluation for Particle Therapy by Monte Carlo Simulation and Gel Dosimetry	24
K. L. Ishikawa et al, RIKEN and The Univ. of Tokyo	
3.6 The Movement of Secondary Electrons and Plasma Oscillation Production Due to the Irradiation of a Heavy Particle	28
K. Moribayashi, QuBS. JAEA	
3.7 Nuclear Astrophysics with Laser Compton-backscattered γ -rays.....	32
T. Shima, Osaka Univ.	

3.8 Significantly Improving Nuclear Resonance Fluorescence Non-Destructive Assay by Using the Integral Resonance Transmission Method and Photofission	36
Christopher T. ANGELL et al, QuBS JAEA	
3.9 Latent Tracks in Polymeric Etched Track Detectors	40
T. Yamauchi, Kobe Univ.	
4. Proceedings (Posters)	
4.1 Study on Peak Intensity Dependence of Proton Beam Bio-medical Irradiation.....	44
A, Noda Kyoto Univ	
4.2 Effect of the Plasma Channel on Frequency Up-Shift of Intense Laser Pulses.....	46
H. Kotaki QuBS JAEA	
4.3 High-power Terahertz Radiation from the Back of Metal Foil Target.....	49
S. Nashima Osaka City Univ	
4.4 Splash Plasma Channels for Wave Guided Laser Wakefield Acceleration.....	52
Y. Mizuta Osaka Univ	
4.5 Steering of Electron Beams from Laser Wakefield Acceleration via Transient Plasma Micro-Optics	56
H. Nakahara Osaka Univ	
4.6 Quantitative K α Line Spectroscopy for Energy Transport in Ultra-intense Laser Plasma Interaction	60
Z. Zhang Osaka Univ	
4.7 Efficient Proton Acceleration Using Coulomb Explosion and RPDA of a Target	64
T. Morita QuBS JAEA	
4.8 Percolation Model of the Non-uniformity of Plasma and Discharge.....	67
A. Sasaki QuBS JAEA	
4.9 Observations of Surface Modifications Induced by Soft X-ray Laser Pulse Irradiations	70
M. Ishino QuBS JAEA	
4.10 Spatial Resolution Measurement of ZnO Crystal as a Soft X-ray Scintillator	73
T. Nakazato Osaka Univ	

4.11 An Extension of Detectable Energy-range of SXES Spectrometer for Electron Microscopes.	77
M. Terauchi Tohoku Univ	
4.12 Characterization of Cluster-gas Targets for Laser-driven Ion Acceleration.....	81
S. Jinno QuBS JAEA	
4.13 Dynamics of Femtosecond Laser Ablation of Fused Silica Studied by Picoseconds Oscillation of Time-resolved Reflectivity	85
T. Kumada QuBS JAEA	
4.14 Isotope-selective Ionization Using Four-pulse Alignment.....	88
H. Akagi QuBS JAEA	
4.15 Narrow-band Laser Amplifier System for Tunable UV Light Generation.....	90
L. Matsuoka QuBS JAEA	
4.16 Theoretical Study on Isotope-Selective Rotational Excitation of Diatomic Molecules in an Optical Frequency Comb	93
A. Ichihara QuBS JAEA	
4.17 Development of Remote Laser-induced Breakdown Spectroscopy for Samples Submerged in Water.....	97
M. Toshimitsu QuBS JAEA	
4.18 Optimal Quantum Control for Isomerization Including Nonadiabatic Processes	101
Y. Kurosaki QuBS JAEA	
4.19 Selective Separation of Refractory and Platinum-group Metals from HLRW by TiO ₂ Nanoparticles	103
M. Saeki QuBS JAEA	
4.20 Analysis of Elements in Aqueous Solution Using Laser-induced Breakdown Spectroscopy with Two Types of Liquid Flows	107
H. Ohba QuBS JAEA	
4.21 Development of Cryogenically-cooled Yb:YLF Chirped-pulse Regenerative Amplification Laser	111
Y. Akahane QuBS JAEA	

4.22 Development of Internal Inspection Technology for the Seriously Damaged Fukushima BWRs.....	114
K. Tomiyoshi QuBS JAEA	
4.23 Development of Inspection Technology for Inner Wall Pipe of Aging Nuclear Power Plant.....	117
F. Ito QuBS JAEA	
4.24 Medical Application of the Multi-functional Fiberscope System	121
T. Seki Tsuruga JAEA	
4.25 Development of Laser Cladding System to Repair Wall Thinning of 1-inch Heat Exchanger Tube.....	125
T. Terada Tsuruga JAEA	
4.26 Implementation of Heat Resistant Fiber Bragg Grating Sensors for Seismic Safety in Nuclear Power Plant Facilities.....	127
Y. Shimada Tsuruga JAEA	
4.27 Recent Activities of Applied Laser Technology Institute at Tsuruga Head Office of JAEA.....	131
N. Tsuchida Tsuruga JAEA	
4.28 Proposal of Measurement System for Isotope Analysis Using γ -ray Monochromators	135
S. Matsuba QuBS JAEA	
4.29 Statistical Precision of ERL-based NDA for Spent Fuel.....	139
T. Shizuma QuBS JAEA	
4.30 Development of The High Spatiotemporal Quality Laser System.....	142
H. Kiriya QuBS JAEA	
4.31 Evaluation of Temperature Dependence of the Emission Cross-section of Yb-doped Ceramic Materials from 298K to 393K for High Average Power Operation.....	146
K. Izuno Doshisha Univ	
4.32 Sophistication of Imaging Technology of Cellular Organelles with Soft X-ray Microscope	148
M. Kishimoto QuBS JAEA	

4.33 New Regime of High-order Harmonic Generation by Relativistic-irradiance	
Lasers ($I > 10^{18}$ W/cm ²) in Gas Jet Targets	151
A. Pirozhkov QuBS JAEA	

Appendix

Group photo.....	154
------------------	-----

This is a blank page.

1. はじめに Introduction

平成 24 年 11 月 15 日～16 日の 2 日間にわたり、「第 13 回光量子科学研究シンポジウム」(The 13th 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。

今年で 13 回目となる本シンポジウムでは、「量子ビームとシミュレーション技術の融合」をテーマに、研究領域として、ビーム源・シミュレーション・計測技術を予定しており、また各研究グループにおける研究の進捗を報告するとともに、今後の光量子科学研究について議論を行った。さらに、本シンポジウムでは講演の他に、外部機関と共同で実施いたしました研究成果や施設利用制度による成果につきましてもポスター発表を行い、全体を通じて活発な議論が行われた。

2 日間での講演件は 82 件（内訳：招待講演 8 件、その他の口頭発表 9 件、ポスター発表 65 件）であり、機構外からの参加者 35 名を含む 104 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 24 年 11 月 15 日（木） ～ 16 日（金）

会場：日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所 多目的ホール棟

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. シンポジウム プログラム

2. 1 口頭発表一覧

【1st day】15th Nov. 13:00- THURSDAY, Tamokuteki-Hall (KPSI)

			Chair: K. Kondo (QuBS, JAEA)
13:00— 13:10 (10)	Opening and Greetings of APR Symposium, Kakurai Director General in QuBS		
13:10— 13:50 (35+5)	RIKEN SPring-8 Center	矢橋 牧名 M. Yabashi	Evolution of SACLA: SPring-8 Compact Angstrom free electron LASer
13:50— 14:10 (15+5)	阪大工 Osaka Univ.	細貝 知直 T. Hosokai	Repeatable electron beam generation driven by staged laser wakefield acceleration; Towards high-quality electron source for ultra-fast imaging.
14:10— 14:30 (15+5)	QuBS JAEA	T. Pikuz	Characterizing the soft x-ray laser beams by submicron-resolution LiF detector
14:30— 14:50 (15+5)	QuBS JAEA	森 道昭 M. Mori	Development of high-repetition-rate high-power laser for the ultra brilliance laser-compton Gamma-ray source
14:50— 15:10 (20)	Coffee Break & Group Photo		
			Chair: M. Kado (QuBS, JAEA)
15:10— 15:50 (35+5)	日本電子株式会社 JEOL Ltd.,	高橋 秀之 H. Takahashi	Development and Applications of a New Soft X-ray Emission Spectrometer for Electron Probe Microanalysis and/or Nanoanalysis
15:50— 16:10 (15+5)	QuBS JAEA	錦野 将元 M. Nishikino	Measurement of femtosecond laser ablation by soft x-ray laser interferometry and reflective imaging
16:10— 16:30 (15+5)	QuBS JAEA	小倉 浩一 K. Ogura	Proton acceleration to 40 MeV using a high intensity, high contrast optical parametric chirped-pulse amplification/Ti:sapphire hybrid laser system
16:30— 16:45 (15)	Coffee Break		

			Chair: A. Sugiyama (QuBS, JAEA)
16:45— 17:05 (15+5)	京大 Kyoto Univ.	作花 哲夫 T. Sakka	Optical emission spectroscopy of laser ablation plasma in water and application to underwater LIBS
17:05— 17:25 (15+5)	QuBS JAEA	西村 昭彦 A. Nishimura	Development of the probing system for inspection of the damaged Fukushima Daiichi BWRs
17:25— 17:25	Announce		
17:30— 19:30	BANQUET (Cafeteria in KPSI) 3000JPYen.		

【2nd day】16th Nov. 09:30-18:00 FRIDAY, Tamokuteki-Hall

			Chair: J. Koga (QuBS, JAEA)
09:15— 09:20 (5)	Opening		
09:20-10:00 (35+5)	東大工、理研 The Univ. of Tokyo, RIKEN	石川 顕一 K. Ishikawa	Dose evaluation for particle therapy by Monte Carlo simulation and gel dosimetry
10:00— 10:20 (15+5)	QuBS JAEA	河野 秀俊 H. Kono	Phase retrieval from sparse diffraction data
10:20— 10:40 (15+5)	QuBS JAEA	森林 健悟 K. Moribayashi	The movement of secondary electrons due to the irradiation of heavy ions: The effect of the composite electric field produced from molecular ions and polarization of molecules
10:40— 10:55 (15)	Coffee Break		
10:55— 11:35 (35+5)	阪大 RCNP Osaka Univ. RCNP	嶋 達志 T. Shima	Nuclear astrophysics with laser Compton-backscattered γ -rays
11:35— 11:55 (15+5)	QuBS JAEA	Christopher Angell	Significantly Improving Nuclear Resonance Fluorescence Non-Destructive Assay by Using the Average Technique and Photofission
12:00— 13:00 (60)	Lunch (Cafeteria)		
13:00— 14:30 (90)	Poster session 66 Chu & Shou Hall (Tamokuteki Hall)		

			Chair: T. Kumada (QuBS, JAEA)
14:30– 15:10 (35+5)	名古屋大理 Nagoya Univ.	菱川 明栄 A. Hishikawa	Atoms in intense EUV/X-ray FEL fields studied by single-shot photoelectron spectroscopy
15:10– 15:30 (15+5)	QuBS JAEA	坪内 雅明 M. Tsubouchi	Intense Terahertz Laser Pulses and Its Applications
15:30– 15:50 (15+5)	神戸大	山内 知也 T. Yamauchi	Latent tracks in polymeric etched track detectors
15:50-16:00	closing (Bolton DDG)		
16:00-17:00	Lab. Tour (C-building) 希望者		

2. 2 ポスター発表一覧

Poster Session (13:00-14:30, 16 Nov. 2012) Tamokuteki Hall (KPSI)

-No.	題目	氏名		所属
P-M01	Numerical studies on intense laser-generated relativistic high-energy electrons via a thin cone target		Mu Jie	Shanghai Jiao Tong Univ.
P-M02	Ultrafast XUV emission from laser wakefields in underdense plasma		Yue Liu	Shanghai Jiao Tong Univ.
P-00	Study on Peak Intensity Dependence of Proton Beam Bio-medical Irradiation	野田 章	A, Noda	Kyoto Univ.
P-01	40 MeV Proton Beam Generation with Ultra-High Intensity High-Contrast Ti:Sap Laser System	西内 満美子	M. Nishiuchi	QuBS JAEA
P-02	Detecting photon-photon scattering in vacuum using multiple relativistic mirrors		J. K. Koga	QuBS JAEA
P-03	Effect of frequency up-shift of intense laser pulses to plasma channel	小瀧 秀行	H. Kotaki	QuBS JAEA
P-04	Xe K-shell X-ray production using conical nozzle	林 由紀雄	Y. Hayashi	QuBS JAEA
P-05	High-power terahertz radiation from the back of metal foil target	菜嶋 茂喜	S. Nashima	Osaka City Univ.
P-06	Splash plasma channels for wave guided laser wakefield acceleration	水田 好雄	Y. Mizuta	Osaka Univ.
P-07	Steering of Electron Beams from Laser Wakefield Acceleration via Transient Plasma Micro-Optics	中原 弘貴	H. Nakahara	Osaka Univ.
P-08	Development of high-quality ultrashort electron source based on staged laser wakefield accelerator	中新 信彦	N. Nakanii	Osaka Univ.
P-09	K α line spectroscopy for energy transport in ultra-intense laser plasma interaction		Z. Zhang	Osaka Univ.
P-10	Efficient proton acceleration using Coulomb explosion and RPDA of a target	守田 利昌	T. Morirta	QuBS JAEA

P-11	Percolation model of the non-uniformity of plasmas and effect to material property	佐々木 明	A. Sasaki	QuBS JAEA
P-12	Direct observation of the femto-second laser ablation dynamics by using the soft x-ray laser probe	長谷川 登	N. Hasegawa	QuBS JAEA
P-13	Observations of surface modifications induced by soft x-ray laser pulse irradiations	石野 雅彦	M. Ishino	QuBS JAEA
P-14	Spatial Resolution Measurement of ZnO Crystal as a Soft X-ray Scintillator	猿倉 信彦	N. Sarukura	Osaka Univ.
P-15	Electron spectra of Xe atom irradiated with a soft x-ray laser pulse	難波 慎一	S. Namba	Hiroshima Univ.
P-16	Automatic detection of similarities between X-ray coherent diffraction patterns for single bio-molecule imaging with the X-ray free electron laser	徳久 淳	A. Tokuhisa	SPring-8
P-17	Spectroscopic study by the evaluation beamline for soft x-ray optical elements	今園 孝志	T. Imazono	QuBS JAEA
P-18	Development of Ni/C multilayer with uniform reflectivity at a constant incidence angle in the soft x-ray range of 1-3 keV	今園 孝志	T. Imazono	QuBS JAEA
P-19	A compact apparatus for polarization measurement and control of plasma soft x-ray laser	今園 孝志	T. Imazono	QuBS JAEA
P-20	An extension of detectable energy-range of SXES spectrometer for electron microscopes	寺内 正己	M. Terauchi	Tohoku Univ.
P-21	Identification of 50 MeV/u ions using backscattered particles in laser-driven ion acceleration with cluster-gas targets	福田 祐仁	Y. Fukuda	QuBS JAEA
P-22	Characterization of cluster-gas targets for laser-driven ion acceleration	神野 智史	S. Jinno	QuBS JAEA
P-23	Development of 10-TW High-contrast Laser System for Laser-driven Ion Acceleration	余語 覚文	A. Yogo	QuBS JAEA
P-24	Response characterization of ZnS(Ag) fluorescent screen	金崎 真聡	M. Kanasaki	QuBS JAEA, Kobe Univ.

P-25	Higher order nonlocal effects of the relativistic ponderomotive force in high power lasers	岩田 夏弥	N. Iwata	Kyoto Univ.
P-26	Dynamics of femtosecond laser ablation of fused silica by oscillating reflectivity	熊田 高之	T. Kumada	QuBS JAEA
P-27	Isotope-selective ionization using four-pulse alignment	赤木 浩	H. Akagi	QuBS JAEA
P-28	Development of time-resolved photoelectron spectrometer with high harmonic generation	板倉 隆二	R. Itakura	QuBS JAEA
P-29	Filamentation Generated in liquid by Bessel and Gaussian beams		Y Qin	Kyoto Univ.
P-30	First-principle real-time calculations for dynamical Franz-Keldysh effect	乙部 智仁	T. Otobe	QuBS JAEA
P-31	Ion effects on liquid structure of water monitored by terahertz time-domain spectroscopy	近藤 正人	M. Kondoh	QuBS JAEA
P-32	Displacement of rotational state distribution by a train of femtoseconds laser pulses	横山 啓一	K. Yokoyama	QuBS JAEA
P-33	Construction of a momentum-imaging spectrometer for jet-cooled alkali halide molecule	橋本 雅史	M. Hashimoto	QuBS JAEA
P-34	Narrow-band laser amplifier system for tunable UV light generation	松岡 雷士	L. Matsuoka	QuBS JAEA
P-35	High power γ -ray source from laser-plasma interactions	中村 龍史	T. Nakamura	KPSI JAEA
P-36	Development of a new device with contact grating for terahertz wave generation	吉田 芙美子	F. Yoshida	QuBS JAEA
P-37	Theoretical study on isotope-selective rotational excitation of diatomic molecules in an optical frequency comb	市原 晃	A. Ichihara	QuBS JAEA
P-38	Development of remote laser-induced breakdown spectroscopy for samples submerged in water	利光 正章	M. Toshimitsu	QuBS JAEA

P-39	Quantum optimal control for isomerization including nonadiabatic processes	黒崎 譲	Y. Kurosaki	QuBS JAEA
P-40	Selective separation of refractory and platinum-group metals from HLRW by TiO ₂ nanoparticles	佐伯 盛久	M. Saeki	QuBS JAEA
P-41	Analysis of elements in aqueous solution using laser-induced breakdown spectroscopy with two types of liquid flows	大場 弘則	H. Ohba	QuBS JAEA
P-42	Development of cesium isotope separation by laser induced reaction	田村 浩司	K. Tamura	QuBS JAEA
P-43	Development of cryogenically-cooled Yb:YLF chirped-pulse regenerative amplification laser	赤羽 温	Y. Akahane	QuBS JAEA
P-44	Development of Internal inspection technology for the seriously damaged Fukushima BWRs	富吉 健太郎	K. Tomiyoshi	QuBS JAEA
P-45	Development of inspection technology for inner wall pipe of aging nuclear power plant	伊東 富由美	F. Ito	QuBS JAEA
P-46	Sensing technology using optical fibers for the nuclear energy field	伊藤 主税	C. Ito	Oarai JAEA
P-47	Medical application of the multi-functional fiberscope system	関 健史	T. Seki	Tsuruga JAEA
P-48	Development of laser cladding system to repair wall thinning of 1-inch heat exchanger tube	寺田 隆哉	T. Terada	Tsuruga JAEA
P-49	Implementation of Heat Resistant Fiber Bragg Grating Sensors for Seismic Safety in Nuclear Power Plant Facilities	島田 幸洋	Y. Shimada	Tsuruga JAEA
P-50	Recent Activities of Applied Laser Technology Institute at Tsuruga Head Office of JAEA	土田 昇	N. Tsuchida	Tsuruga JAEA
P-51	Proposal of a measurement system for isotope analysis using gamma-ray monochromators	松葉 俊哉	S. Matsuba	QuBS JAEA
P-52	Statistical precision of NRF-based nondestructive assay for spent fuel	静間 俊行	T. Shizuma	QuBS JAEA

P-53	Development of high damage threshold anti-reflection coating for hundred picoseconds pulse	越智 義浩	Y. Ochi	QuBS JAEA
P-54	Development of high repetitive and short pulse Yb doped thin disk laser amplifier	岡田 大	H. Okada	QuBS JAEA
P-55	Development of the high spatiotemporal quality laser system	桐山 博光	H. Kiriyaama	QuBS JAEA
P-56	Mode-locked Nd ³⁺ -doped mixed scandium garnets ceramic laser	小菅 淳	A. Kosuge	QuBS JAEA
P-57	Estimation of refractive index and thickness of thin films measuring reflectance and transparency	田中 桃子	M. Tanaka	QuBS JAEA
P-58	Evaluation of Temperature dependence of the emission cross-section of Yb-doped ceramic materials from 298K to 393K for high average power operation	泉野 亨輔	K. Izuno	Doshisha Univ.
P-59	Development of a hybrid microscope and in-situ observation of cellular organelles	加道 雅孝	M. Kado	QuBS JAEA
P-60	A FRET method for studying localization of DNA lesions induced by radiations	赤松 憲	K. Akamatsu	QuBS JAEA
P-61	Sophistication of imaging technology of cellular organelles with a soft x-ray microscope	岸本 牧	M. Kishimoto	QuBS JAEA
P-62	Anomalous slowing down of dynamics of nano-confined water	村上 洋	H, Murakami	QuBS JAEA
P-63	New regime of high-order harmonic generation by relativistic-irradiance lasers ($I > 10^{18} \text{ Wcm}^2$)		A. Pirozhkov	QuBS JAEA

3. プロシーディングス（口頭発表分）

3.1 超高速電子イメージングに向けた多段レーザー航跡場加速

Repeatable Electron Beam Generation Driven by Staged LWFA; Towards High-Quality Electron Source for Ultra-Fast Imaging

水田 好雄¹、細貝 知直^{2,3}、益田 伸一^{2,3}、中新 信彦^{2,3}＊、アレクセイ ジドコフ^{2,3}、
中原 弘貴¹、幸原 朋広¹、岩佐 健太¹、佐野 智一⁴、荒河 一渡⁵、児玉 了祐^{1,2,6}

¹大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻

²大阪大学 光科学センター

³科学技術振興機構(JST) CREST

⁴大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻

⁵島根大学総合理工学部

⁶大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

＊日本学術振興会 特別研究員

Yoshio MIZUTA¹, Tomonao HOSOKAI^{2,3}, Shin-ichi MASUDA^{2,3}, Nobuhiko NAKANII^{2,3}＊,
Alexei ZHIDKOV^{2,3}, Hiroki NAKAHARA¹, Tomohiro KOHARA¹,
Kenta IWASA, Tomokazu SANO⁴, Kazuto ARAKAWA⁵ and Ryosuke KODAMA^{1,2,6}

¹ Division of Electrical, Electronic and Information Engineering, Graduate School of Engineering,
Osaka University,

² Photon Pioneers Center, Osaka University,

³ Japan Science and Technology Agency, CREST,

⁴ Division of Materials and Manufacturing Science, Graduate School of Engineering, Osaka University,

⁵ Interdisciplinary Faculty of Science and Engineering, Shimane University,

⁶ Institute of Laser Engineering, Osaka University

＊Japan Society for the Promotion of Sciences (JSPS) Research Fellow (PD)

The research activity on the electron source development based on staged Laser Wake Field Acceleration (LWFA) aiming at ultra-short electron source for dynamic electron imaging is introduced. The key issues related to the staging LWFA including the injector and a new method for ultra-short electron bunch transport named as CeBT (chirped- electron Bunch transport) are discussed.

Keywords: Staged Laser Wake-field Acceleration, Stable Injector, Ultra-fast Imaging

1. はじめに

物質中の高速過渡現象を詳細に調べる動的物性研究は近年急速に展開し、計測に要求される時間領域はピコ秒からフェムト秒、さらにはアト秒へと移行しつつある。これに伴い、超高速時間

分解能を持つ電子イメージング（電子線回折や電子顕微鏡）の研究開発が精力的に進められている。電子イメージング装置が、従来の原子スケールの空間分解能に加え超高速の時間分解能を持つことによって物質中の原子分子の構造を「時間を止めて」スナップショット撮影することが可能になる。さらに、スナップショットイメージを連続取得することができるようになれば、物質中の原子分子の格子ダイナミクスを動画として直接観察することも可能になると期待される。一般に、時間分解電子イメージング装置の性能は電子源（プローブとなる電子バンチのパラメータ）に大きく依存している。これまでに極短電子バンチの電子源として、フェムト秒レーザーを用いた針状陰極[1]、高周波光陰極電子銃[2]、レーザープラズマ源[3] 等の研究が行われている。電子イメージングで十分なコントラストを確保した像を取得するためには一画像あたり電荷量は1～1000pC（実空間イメージの場合）が必要とされるため、現状のこれらの電子源では一枚のイメージ取得のためには 10^{3-6} ショットの重ね撮りをする必要がある。しかしながら、破壊現象などの不可逆現象はシングルショットで撮影することが求められており、そのためには電子バンチの大電荷量化が必要不可欠となる。加えて、観測する物性現象によっては、～100fs 以下の時間分解能も求められており、フェムト秒オーダーの極短パルス性とナノクーロンレベルの大電荷性を併せ持つ電子源の開発が強く求められている。

我々は、極短パルス性と大電荷性の要求を同時に満足するものとして多段レーザー航跡場加速をベースにした電子源を提案し、平成21年10月よりCREST事業のサポートを得て研究開発を開始した。これまでに高強度超短レーザーパルスの波形制御と標的ガスジェットへの外部磁場印加によってプラズマの密度分布を変調し、極短パルス性、準単色性、低エミッタンス性、大電荷量を併せ持つ数～100MeVの電子ビームを極めて安定に発生させることに成功している[4]。本稿では高時間電子イメージングに向けた多段レーザー航跡場加速による電子源について述べる。

2. 多段レーザー航跡場加速による電子源

Fig. 1 に大阪大学光科学センターに現在構築中の多段レーザー航跡場加速を用いた電子イメージング実験の装置概要(a)と写真(b)を示す。

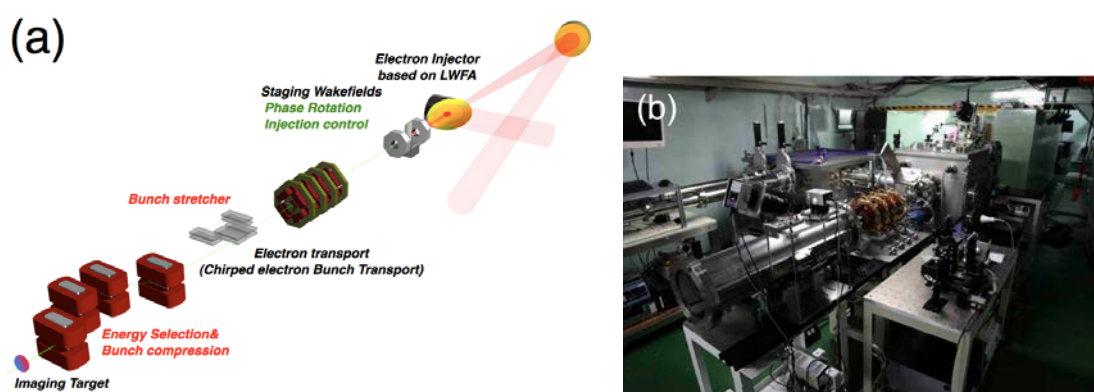


Fig.1 Experimental Setup for ultra-fast imaging using staged LWFA. Conceptual design (a), and a picture (b).

電子ビーム発生部(1) 位相回転部(2) 電子ビーム輸送部(3)、標的から成る。電子ビーム発生部(1)では前節で述べた通り、レーザー航跡場加速により、極短、大電荷、低エミッタンスの電子を発生させる。駆動レーザーには、40TW-25fsチタンサファイアレーザー装置を用いる。ガスジェット標的中のレーザー航跡場で加速され生成される電子バンチは、ピークエネルギー<

10MeV (エネルギースペクトルの広がり $\Delta E/E \sim 1 \sim 10\%$ 程度)、総電荷量 $< 1\text{nC}$ 、エミッタンス $< 0.01 \pi \text{ m mm rad}$ を持つ。続いて、電子バンチは電子ビーム発生部(1)の下流に設けたもう一つのレーザー航跡場(2)を通過することによって、位相回転を受けエネルギースペクトルのさらなる狭帯域化が図られる。電子ビーム輸送部(3)は永久磁石と電磁石からなる電子ビーム輸送系である。プラズマ(位相回転部(2))から放出された時点での電子バンチ長はプラズマ波長程度(数~数十フェムト秒)である。電子バンチはCeBTと名付けられた方法(電子バンチ伸長器によってエネルギーの空間チャープを反転され、続いて、電子バンチ圧縮機を用いて観測標的において電子バンチ長が最短となるように)で輸送される[5]。加えて、電子バンチ伸長器と電子バンチ圧縮機の内側の適当な位置にはエネルギー選別のためのスリットが設けられエネルギースペクトルのさらなる単色化が追求される。電子バンチの単色性、大電荷はトレードオフの関係にあるが、電子ビーム発生部(1) 位相回転部(2) 電子ビーム輸送部(3)における各種の制御パラメータを最適化して観測標的において最短、単色、大電荷の電子バンチを得ることが重要となる。Table 1にレーザーバーチャルカソードの目標とする電子バンチパラメータを示す。

Table 1 Required parameters of the electron bunch for the imaging.

Energy	1~10 MeV
Bunch duration @ Target	$< 100 \text{ fs}$
Emittance	$< 0.01 \pi \text{ m mm rad}$
Energy Spread ($\Delta E/E$)	$10^{-4} \sim -6$
Charge	100 pC ~ 1 nC

3. 電子バンチの発生

Fig. 2に電子ビーム発生部から得られた電子バンチの空間プロファイル(連続8ショット、照射エネルギー300mJ、600mJ)を示す。レーザーパルス波形の制御とガス標的部分への磁場を印加によって極めて安定に指向性の良いビーム(横方向幾何学的エミッタンス $0.01 \pi \text{ m mm rad}$)が発生する。発生する電子ビームの総電荷量は1nC/pulse程度に達している。

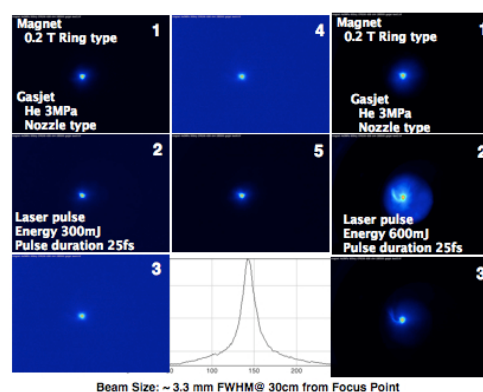


Fig.2 Electron beam profiles from the injector part.

4. まとめ

超高速電子イメージングの実現を目指して、大阪大学光科学センターに多段レーザー航跡場加速を用いた電子イメージング装置を構築し、電子ビーム発生の実験を開始した。電子ビーム発生部より極めて良い位置安定性で極めて高い指向性の電子ビームの発生を確認した。レーザー駆動のプラズマからの電子ビームが極めて高い安定性を持つことで、従来加速器で使用される電子ビームオプティクスを使用することが可能になった。これから、位相回転部、電子ビーム輸送部、標的までのビームライン構築を急ぎ、できるだけ早期に多段レーザー航跡場加速を用いた電子イメージング実験を開始する。

参考文献

- [1] W.E.King, *et al.*, J. App. Phys., **97**,111101(2005)
- [2] H.S. Park, *et al.*, Nano Letters, **7**,2545(2007), Y.Muro'oka, *et.,al*, App. Phys. Lett., **98**,251903(2011)
- [3] S.Tokita, *et.,al*, Phys. Rev. Lett., **105**, 215004 (2010)
- [4] T. Hosokai, *et.,al*, Phys. Rev. Lett. **97**, 075004 (2006), T. Hosokai, *et.,al*, Appl. Phys. Lett. **96**, 121501 (2010)
- [5] 中新信彦、細貝知直、他 特願 2011-247257

3.2 Development and Applications of a New Soft X-ray Emission Spectrometer for Electron Probe Microanalysis and/or Nanoanalysis

Hideyuki TAKAHASHI¹, Nobuo. HANDA¹, Takanori MURANO¹, Masato KOIKE², Tetuya KAWACHI², Takashi IMAZONO², Noboru HASEGAWA², Masami TERAUCHI³, Masaru KOEDA⁴, Tetuya NAGANO⁴, Hiroyuki SASAI⁴, Yuki OUE⁴, Zeno YONEZAWA⁴ and Satoshi KURAMOTO⁴

1 JEOL Ltd., 1-2 Musashino, 3-chome, Akishima, Tokyo 196-8558, Japan.

2 Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 1-7 Umemidai, 8-chome, Kizugawa, Kyoto, 619-0215, Japan.

3 Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, 1-1 Katahira, 2-chome, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan.

4 Device Department, Shimadzu Corp., 1, Nishinokyo-Kuwabaracho, Nakagyo-ku, Kyoto 604-8511, Japan.

A new wavelength dispersive soft X-ray emission spectrometer (WD-SXES) consists of newly developed four diffraction gratings. i.e., JS50XL, JS300, JS2000, and JS4000, X-ray sagittally focusing mirrors, and a charge-coupled-device detector have been installed to electron microscopes to cover wide energy range from 50 to 4000 eV. For various actual samples such as battery materials, steel and alloys, and electronic semiconductor devices, this spectrometer have been applied to chemical state analysis and trace element analysis with very high energy resolution and high sensitivity.

Keywords: Soft X-ray Emission Spectrometer, Electron Microscope, Electron Probe Microanalyzer, Diffraction Grating

A very unique high performance soft X-ray emission spectrometer (SXES) has successfully been developed which can be attached not only to transmission electron microscopes (TEMs), but also to scanning electron microscopes (SEMs) as well as electron probe microanalyzers (EPMA).¹⁻⁴⁾ To extend the analyzed energy ranges, a newly designed laminar-type varied-line-spacing (VLS) grating JS50XL, for a lower energy range, 50-200 eV, and a multilayered VLS grating JS4000^{5),6)} for a higher energy range, 2000-4000 eV, have been recently developed and installed to this spectrometer. In order to cover the wide energy range from 50 to 4000 eV, including two gratings described above, a total of four kinds of VLS gratings have been designed and developed to adapt to the various electron microscopes until now. The name and energy range of these gratings are as follows: JS50XL 50-200eV; JS300 155-300 eV; JS2000 300-2000 eV; JS4000 2000-4000 eV.

Figure 1 shows the schematics of the designed flat-field spectrographs by use of these four kinds of gratings attached to electron microscopes. Figure 2 shows outline of the soft X-ray emission spectrometer attached to an EPMA: (a) the appearance; (b) lithium ion batteries (anodes) under three charging conditions, 0% charged, 30% charged and fully charged; (c) Li-K and C-K emission bands from three lithium ion batteries shown in Fig. 2(b) measured by JS50XL, which provide the important information for electron charging process; (d) emission spectra from CdSe, ZnTe, and InP in the 1-4 keV range obtained by use of

JS4000. By using JS4000 grating, recent advanced materials such as CdSe, ZnTe, and InP could be analyzed with high energy resolution.

Application software has also been developed for a commercial use of SXES in several fields such as battery materials, steel and alloys, and electronic devices. More applications for practical materials are strongly expected.

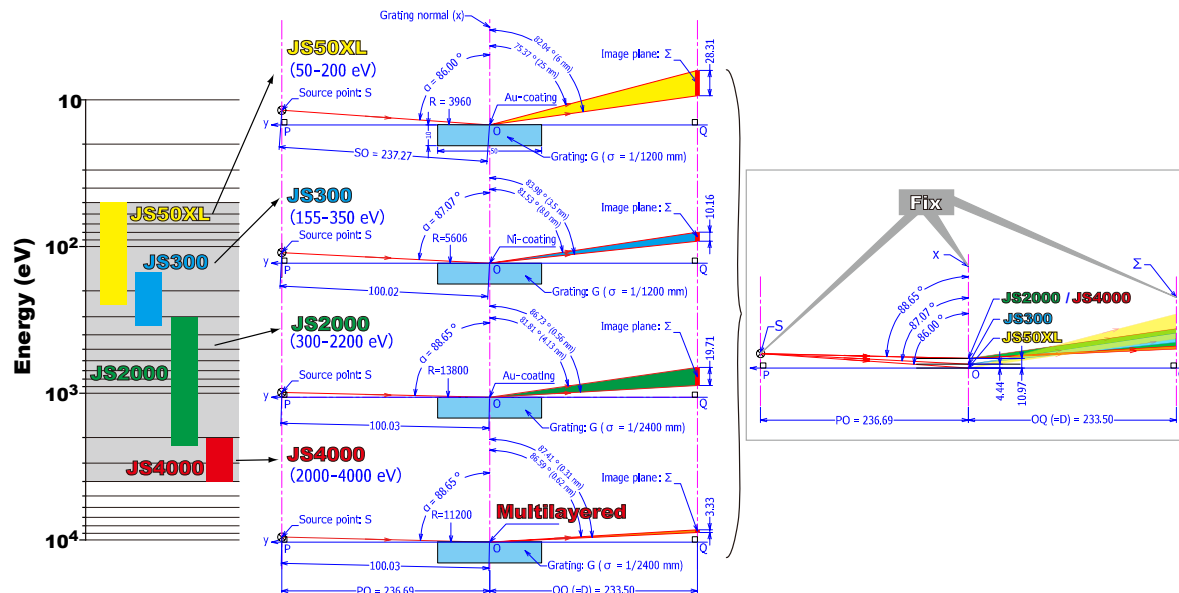


Fig. 1 Schematic diagrams of the designed flat-field spectrographs of these four kinds of gratings: JS50XL, JS300, JS2000, and JS4000.

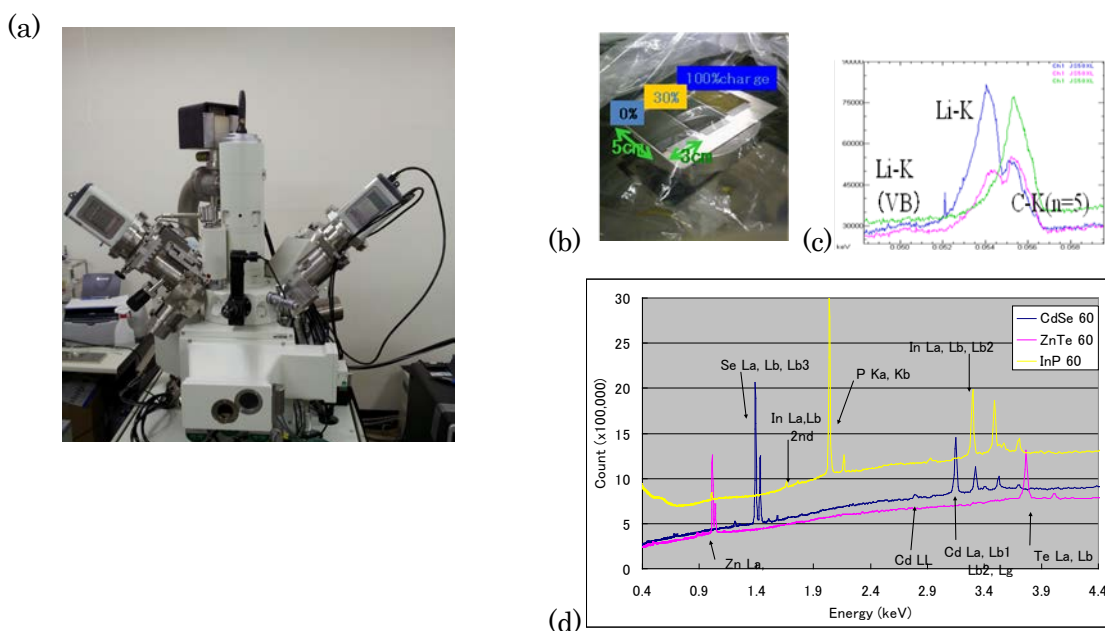


Fig. 2 Outline of the soft X-ray emission spectrometer attached to an EPMA (a), Li ion batteries analyzed under three charging conditions, 0% charged, 30% charged, and fully charged (b), Li-K and C-K (n=5) spectra among three kinds of charging (c), and three spectra of CdSe, ZnTe, and InP obtained by use of JS4000 (d).

Acknowledgement

This development has been conducted as one of the projects of Collaborative Development of Innovative Seeds (Practicability verification stage) by Japan Science and Technology Agency.

References

- 1) M.Terauchi, M.Koike, K.Fukushima and J.Kimura: 16th Intl. Conf. Microscopy , 892 (2006).
- 2) M.Terauchi, M.Koike, K.Fukushima and A.Kimura *J. Electron Microscopy*, **59**, 251 (2010).
- 3) M.Terauchi, H.Takahasi, H.Nobuo, T.Murano, M.Koike, T.Kawachi, T.Imazono, M.Koeda, T.Nagano, H.Sasai, Y.Oue, Z.Yonezawa, S.Kuramoto, *J. Electron Microscopy*, **61**, 1 (2012).
- 4) T.Imazono, M.Koike, T.Kawachi, N.Hasegawa, M.Koeda, T.Nagano, H.Sasai, Y.Oue, Z.Yonezawa, S.Kuramoto, M.Terauchi, H.Takahashi, N.Handa, T.Murano and K.Sano, *Appl. Opt.* **51**, 2351 (2012).
- 5) T.Imazono, M.Koike, M.Koeda, T.Nagano, H.Sasai, Y.Oue, Z.Yonezawa, S.Kuramoto, M.Terauchi, H.Takahashi, N.Handa and T.Murano, *AIP. Conf. Proc.* **1437**, 24 (2012).

3.3 軟X線レーザー干渉計と反射率計を用いた

フェムト秒レーザーアブレーションダイナミクスの計測

Measurement of Femtosecond Laser Ablation by Soft X-ray Laser Interferometry and Reflective Imaging

錦野 将元、長谷川 登、石野 雅彦、山極 満、河内 哲哉

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

南 康夫、寺川 康太、武井 亮太、馬場 基芳、末元 徹

東京大学 物性研究所

山本 稔、大西 諒、富田 卓朗

徳島大学 工学部

Masaharu NISHIKINO, Noboru HASEGAWA, Masahiko ISHINO, Mitsuru YAMAGIWA,
Tetsuya KAWACHI

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Yasuo MINAMI, Kouta TERAOKA, Ryota TAKEI, Motoyoshi BABA, Tohru SUEMOTO

The Institute for Solid State Physics, University of Tokyo

Minoru YAMAMOTO, Ryo OHNISHI, Takuro TOMITA

Faculty of Engineering, The University of Tokushima

We have demonstrated a pump and probe imaging of the metal surface morphology during the femtosecond laser ablation by using the laser-driven plasma induced soft x-ray laser (SXRL) as a probe beam. The SXRL is suitable for probing the surface morphological changes, because it has the suitable wavelength of 13.9 nm, corresponding to the penetration depth less than 5nm and the short pulse duration of 7 ps. The pumping laser used for ablation was a Ti:Sapphire laser system. The dependence for the pump laser fluence of the ablation surface expansion and the surface condition (roughness and density gradient) were observed from the soft x-ray interferogram and reflective image, respectively.

Keywords: X-ray Laser, Femto Second Laser Ablation, Pump and Probe Experiment

1. はじめに

近年、軟X線～硬X線領域におけるコヒーレントX線光源開発が急速に進展し、国内外において加速器ベースのX線自由電子レーザー(~0.1nm)が利用実験への供給を開始する段階となっている。一方、レーザーを励起源としたコヒーレント軟X線源であるレーザープラズマ軟X線レーザーや高次高調波は、それぞれの光源の特徴を生かした高輝度化・高品質化が進められ、物性研究や生命科学研究への応用が進められている。日本原子力研究開発機構・関西光科学研究所では、光学素子としてMo/Si多層膜鏡が利用できること(反射率60%以上)、飽和強度に至る高い出力が得られることから、13.9 nmが発振波長であるNi様Agレーザーのビーム高品質化、および利用研究を重点的に進めてきた。軟X線は可視光よりも高密度プラズマに対する透過力が高いことから、

プラズマ研究用のプローブ光源としての利用が主な用途であったが、近年では、可視光よりも波長が短く、かつ硬X線よりも物質に対する浸入深さが小さいという特徴を活かして、軟X線顕微鏡等の光源[1]としてや、軟X線レーザーによる微細加工に関する研究[2]も開始されている。

フェムト秒レーザー加工の分野では近年、加工閾値近傍の強度でのフェムト秒レーザー照射によって引き起こされる現象に注目が集まっている。例えば、フェムト秒レーザー照射により、照射光の波長を大きく下回る周期を持つナノ周期凹凸構造が発見され、従来のモデルでは説明がつかないことから、その生成メカニズムについて活発な議論が行われている[3]。また、照射フルエンスを変化させると1パルス当たりのアブレーションレートが閾値特性を持って変化し、最もアブレーションレートが低い領域では1パルス当たりのアブレーションレートが1 nmを下回ることも報告されている[4]。しかし、このような現象が何故起こるのかについては明らかになっていないため、フェムト秒レーザーアブレーションメカニズムの理解が急務となっている。これらのフェムト秒レーザー加工に特有の現象は、フェムトからピコ秒領域での不可逆的なナノメートルスケールでの構造変化であるため、その実態を捉えるにはナノメートルの空間分解能、ピコ秒の時間分解能をもったシングルショットでの時間分解イメージング観察が必要である。これまで、可視光をプローブとして用いたアブレーションダイナミクスの観測例は存在するが、波長による空間分解能の制約のため、ナノメートルスケールでのイメージングは不可能であった[5]。そこで、X線をプローブとしたポンププローブ計測によるナノメートルスケールダイナミクスの研究が注目を集めており、X線自由電子レーザー施設で活発に研究が行われている。これらの研究によって、レーザーアブレーションの初期過程においてナノ空洞の形成や、ナノメートルスケールでの周期的な形状変化などの興味深い現象が報告されつつある[6,7]が、アブレーションメカニズムの完全な理解には、まだ遠いというのが現状である。

我々は、軟X線レーザーを用いて、ピコ秒の時間スケールでナノメートルスケールの表面起伏をシングルショット計測可能なポンププローブ軟X線干渉イメージングシステム[8, 9]と反射率イメージングシステム[10]の開発を行った。ここでは、プラチナ膜のアブレーションダイナミクスの計測結果について述べる。

2. ポンプ・プローブ実験

本研究では、プラズマ軟X線レーザー(波長 13.9 nm、パルス時間幅 7 ps)[11]をプローブ光として用いた。ポンプ光にはチタンサファイアレーザー再生増幅器からの光(波長 800 nm、パルス時間幅 70 fs)を用い、軟X線レーザープローブによって軟X線干渉計測と反射率イメージングの両方を用いてアブレーション過程の観測を行った。干渉計測ではアブレーションに伴う試料表面(アブレーションフロント)の膨張を、また、反射率のイメージングでは試料表面における軟X線反射像を得ることができる。そのため、アブレーションに伴う試料表面の凹凸や密度勾配に関する情報を得ることができる。また、ガウス型強度分布を持ったポンプ光を用いることでビームの動径方向にフルエンス依存性を得ることを可能にしている。試料の像をMo/Si多層膜球面鏡によって、X線CCDカメラに約20倍の倍率で転送する。干渉計測の場合には多層膜球面鏡とCCDカメラとの間にダブルロイズ鏡(僅かな角度をつけた2枚のミラー)を設置し、擬似的に二つの点光源からの軟X線を重ね合わせることで干渉縞を得る。試料には石英基板上に蒸着したプラチナ膜(厚さ 100~300 nm)を用い、ポンプ光は試料に対してほぼ垂直に照射する。

まず、白金のフェムト秒レーザーアブレーション過程について時間分解軟X線干渉イメージン

グにより観測を行った結果を Fig. 1 に示す。ポンプ光のピークフルエンスは約 3 J/cm^2 である。Fig. 1 は $t=+10, +20, +60, +140 \text{ ps}$ のアブレーション過程における表面変位を観測した干渉像である。干渉縞の左方向へのシフトが膨らみを表し、縞 1 本分のシフトは約 20 nm の表面変位に相当する。時間が経過するに従って、干渉縞の左方向へのシフトが大きくなっていることがわかる。Fig. 1 (b) は $t=+20 \text{ ps}$ における観測された干渉縞から計算された表面形状である。 $t=+20 \text{ ps}$ における表面の最大高さは約 40 nm であり、この結果から表面膨張の速度は最大約 $2,000 \text{ m/s}$ と見積もられる。高分解能の軟X線干渉計を用いることで、アブレーションの初期過程におけるナノメートルスケールのアブレーションフロントの観測に成功した。これはフェムト秒レーザーアブレーション特有の形状変化を理解する上で重要な情報を与えると考えられる。

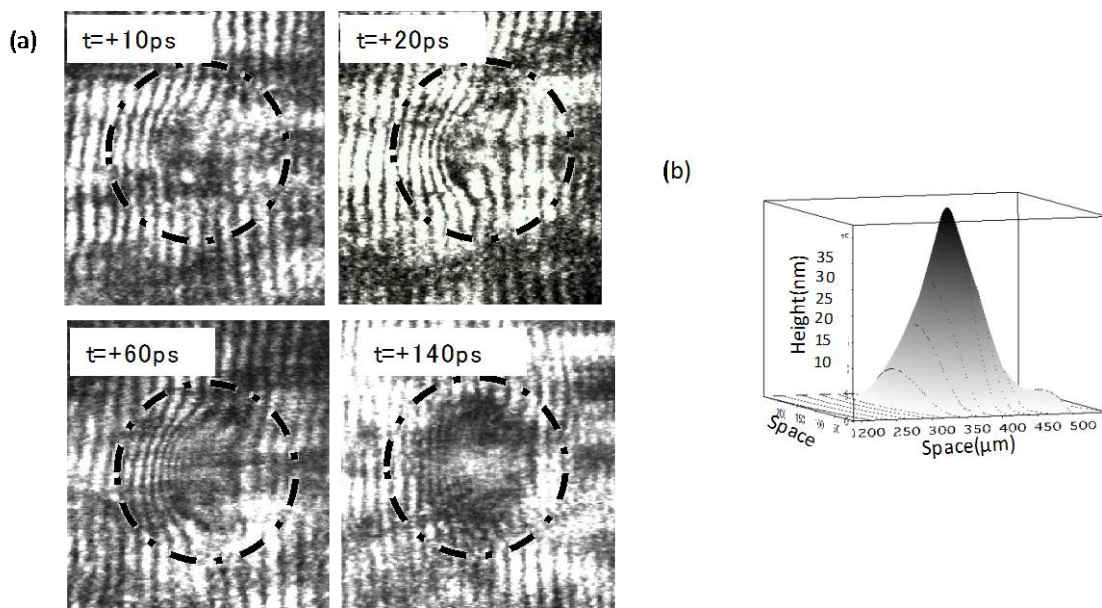


Fig.1 (a) The interference patterns at $t = 10, 20, 60$, and 140 ps . (b) The surface plot at $t = 20 \text{ ps}$.

次に、Fig. 2 に白金における時間分解軟X線イメージングの結果を示す。ポンプ光のピークフルエンスは約 4.1 J/cm^2 である。前述した干渉実験の結果から、これらの時間領域におけるアブレーションフロントの膨張量は 100 nm 未満であり、これは、スポットサイズ径と比較すると小さくなる。このような場合、面内方向の相関は無視でき、照射領域内部の動径方向にフルエンス依存性を得ることができる。 $t = +10 \text{ ps}$ において、円盤状の黒色部が照射部の中央に観測されており、 $t = +10 \text{ ps}$ における黒色部の直径は $t = +160 \text{ ps}$ におけるものの約 75% であった。これは、アブレーションが 10 ps の時点において既に始まっていることを意味している。さらに、円盤状の黒色部は 160 ps において最大となり、この時点での黒色部の直径はアブレーションクレーターの直径に一致する。また、 $t = +10 \text{ ps}$ において黒色部の外部に黒い円環状の反射率低下が観測されており、これは照射後におけるアブレーション痕の端と一致した。

スポット内の位置による反射率の減衰の違いは、観測された反射率変化が強い強度依存性を持っていることを意味している。現在、時間的に早い ($< 7 \text{ ps}$) 反射率低下が観測された領域「強励起領域 ($1.2 \text{ J/cm}^2 \sim 4.1 \text{ J/cm}^2$)」、比較的遅い ($\sim 100 \text{ ps}$) 反射率低下が観測された領域「中励起領域 ($0.5 \text{ J/cm}^2 \sim 1.2 \text{ J/cm}^2$)」、反射率変化が観測されなかった領域「弱励起領域 (0.5 J/cm^2 以下)」

というようなフルエンスを3つの領域に区分してアブレーション現象の理解をすすめている。

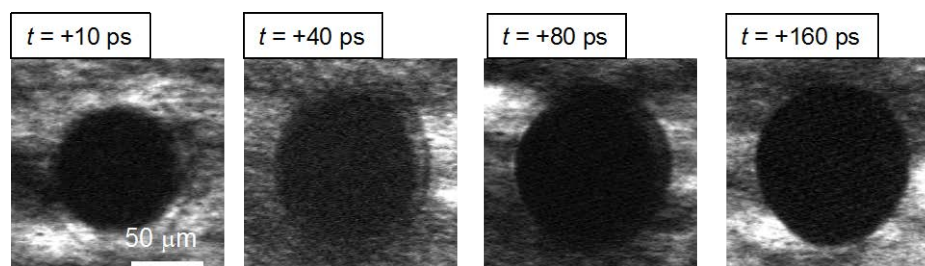


Fig.2 Soft x-ray reflective images at each delay time.

これまでにフェムト秒レーザーアブレーションの物理メカニズムについては理論、実験の双方から活発に研究が進められている。特に、Lewis らによって、モンテカルロ法による分子動学的シミュレーションに基づいた、強度に依存して変化するアブレーション過程のモデルが提案されている[12, 13]。軟X線干渉計測や軟X線反射率計測によって得られたアブレーション現象等を含む計測結果についてもこれらの分子動力学シミュレーションの結果と直接比較を行えるよう詳細な解析を進めていけるよう準備をすすめている。

3. 結論

フェムト秒レーザーポンプ・軟X線レーザープローブの時間分解軟X線イメージングシステムを構築した。軟X線の干渉計と反射率イメージングの両者を用いることで、従来の可視光を用いた時間分解計測等では明らかにすることができなかったフェムト秒レーザーアブレーションの初期過程を捉えることに成功した。干渉計測からはアブレーションフロントの膨張速度を求めることに成功した。また、反射率計測からは、急激な軟X線反射率低下を示す強励起領域、比較的遅い反射率低下を示す中励起領域に加え、アブレーション閾値近傍でリング状の反射率低下が観測された。今後、これらの観測結果の詳細な解析を進め、分子動力学シミュレーションによる結果との比較を進めフェムト秒レーザーアブレーションメカニズムの理解を進めて行く予定である。

参考文献

- [1] C. A. Brewer *et al.*: Opt. Lett. **33** 518 (2008)
- [2] M. Ishino *et al.*, J. Appl. Phys. **109** 013504 (2011)
- [3] T. Tomita *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90** 153115 (2007)
- [4] 藤田雅之, 橋田昌樹: 応用物理 **73** 178 (2004)
- [5] D. von der Linde, and K. Sokolowski-Tinten: Appl. Surf. Sci. **154-155** 1 (2000)
- [6] A. Barty *et al.*: Nat. Photonics **2** 415 (2008)
- [7] A. M. Lindenberg *et al.*: Phys. Rev. Lett. **100** 135502 (2008)
- [8] Y. Ochi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51** 016601 (2012)
- [9] T. Suemoto *et al.*, Opt. Exp. **18**, 14114 (2010)
- [10] T. Tomita *et al.*, Opt. Exp. **20**, 29329 (2012)
- [11] M. Nishikino *et al.*, Appl. Opt. **47**, 1129 (2008)
- [12] J. T. Larsen, and S. M. Lane: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **51** 179 (1994)
- [13] D. Perez and L. J. Lewis: Phys. Rev. B **67** 184102 (2003)

3.4 損傷した福島第一発電所の調査のための検査システムの開発

Development of the Probing System for Inspection of the Damaged Fukushima Daiichi BWRs

西村 昭彦^{1,2} 伊東 富由美¹ 富吉 健太郎¹ 大場 弘則¹ 若井田 育夫³

伊藤 主税⁴ 杉山 僚¹ 寺田 隆哉² 岡 潔^{1,2}

1 量子ビーム応用研究部門

2 敦賀本部レーザー共同研究所

3 原子力基礎工学研究部門

4 大洗研究開発センター・大洗研福島技術開発特別チーム

独立行政法人 日本原子力研究開発機構

Akihiko NISHIMURA^{1,2}, Fuyumi ITO¹, Kentaro TOMIYOSHI¹, Hironori OHBA¹, Ikuo WAKAIDA³,
Chikara ITO⁴, Akira SUGIYAMA¹, Takaya TERADA² and Kiyoshi OKA^{1,2},

1 Quantum Beam Science Directorate

2 Tsuruga Head Office Applied Laser Technology Institute

3 Nuclear Science and Engineering Directorate

4 Oarai Research and Development Center

Japan Atomic Energy Agency

In the middle of these 5 years-middle term plan of JAEA, one of the most important contribution is the development for a probing system to inspect the Fukushima Daiichi BWRs. The newly organized 4 groups have just started to develop technologies for the probing system to inspect the meltdown reactor core by optical fiber endoscope and Laser Induced Breakdown Spectroscopy for the analysis of the molten nuclear fuel debris.

Keywords: Fukushima Daiichi, BWR, Severe Accident, Fuel Debris, Fiber Endoscope, Laser Induced Breakdown Spectroscopy

1. はじめに

2011年3月11日に宮城県牡鹿半島の東南東沖130kmの海底を震源とするM9.0の大地震と津波により、福島第一発電所内は水没した。緊急停止後の冷却に失敗した3基の原子炉が炉心溶融を誘発し水素爆発が生じた。現在、これらの原子炉の格納容器の温度は50度以下に維持されているが、損傷した原子炉内部は高線量の滞留水に満たされ瓦礫の撤去も不十分な状態であり、余震による倒壊の危険性がある[1]。震災前の原子力機構では、研究の中心は、高速炉や核融合炉或いは量子ビーム応用など新エネルギー開発と高度化された放射線源開発等に移行しており、既に運転管理技術として電力会社が主体となる発電事業に関しては、研究テーマ自体の設定も不十分であった。かかる事態を猛省するなかで、平成24年度に原子力機構の中期計画が改定された。新中期計画では、福島原子力発電所がもたらした緊急事態の収束が最重要となっている。このため、技術開発を進めてきた機構内の4グループが部門・拠点を越えて連携し、各々が本来研究で培った技術を新たに統合化することが決定した。

2. 福島第一発電所の損傷炉心の現状

地震による送電線鉄塔の倒壊により外部電源が喪失し、続く遡上高 14-15m の津波により敷地は 5m の深さに水没した。結果的に全電源が失われたことで緊急停止した炉心を冷却できず炉心溶融に至った。Figure 1 に炉心の現状を示す。原子炉圧力容器 (RPV) に供給される冷却水は容器底部の燃料デブリによる貫通孔より流出し、原子炉格納容器 (PCV) に滴下している。PCV と圧力抑制室の接合部分に破口があることが確実にされた。この破口から流失した冷却水は原子炉建屋に流出し、原子炉建屋に隣接するタービン建屋との隔壁との連絡部或いは破損部分からタービン室内部に流入し滞留水となっている。これを取水し、セシウムと塩分を逆浸透膜と蒸発濃縮により除去し、浄化水は注水タンクを経て RPV 内に供給が行われている。この循環量は 1 日あたり 1 号機に 104m³、2 号機に 142m³、3 号機に 139m³ である。

炉心損傷の度合いは 1 号機と 2 及び 3 号機では大きく異なる。1 号機では非常用冷却系がほとんど機能しなかったため、全電源喪失後の初期に核分裂生成物の崩壊熱により燃料集合体が水面上に露出し、水蒸気に晒された状態でジルカロイ燃料被覆管が酸化し水素が発生した。ほとんどの核燃料は溶融し、RPV 下部に溶融した状態で溜まり中性子計測用ガイドホール或いは制御棒駆動機構などの構造的に脆弱な部分より流出し、PCV 底部に流れ落ちた。この過程は、MAAP (Modular Accident Analysis Program) により評価されている。PCV 底部に流れ落ちた燃料デブリは冠水状態であることが、PCV 内部に挿入された水位計、温度計、CCD カメラ、線量計などにより判明している。それによると、滞留水の水位は OP9000 の位置にあり、PCV 内 1 階グレーティングから 0.65m 下、PCV 底部より 2.8m 上にある。線量はグレーティング位置で 8.2Sv/h である。

2 及び 3 号機においては非常時冷却系が断続的ながら駆動した。これは炉内の高圧蒸気と圧力抑制室の水を利用して炉心を冷却する装置であり、これが炉心冷却に部分的な効果をもたらした。そのため、結局は炉心溶融に陥ったものの溶融燃料は大部分が RPV 内に残留することになり、PCV 底部に落下した量は少ないとされている。これらも MAAP による解析が裏付けている。現時点では 2 号機の場合は 57%、3 号機 63% の燃料が損傷を受けていると予想される。PCV 底部の水位も個々の原子炉により異なる。2 号機の場合、ガイドパイプから挿入されたカメラにより内部が観察され、PCV 底部から 0.6m の位置に水位があることが確認された。水温は 48~50℃、線量は PCV 底部から約 4m かつ内壁から 1m のグレーティングの位置で 72.9Sv/h が測定されている。ほとんどの核燃料が PCV 底部に落下した 1 号機の水位が PCV 底部より 2.8m あり、一方で燃料の落下の量が少ない 2 号機では 0.6m であることは、燃料デブリの冷却の観点からは不幸中の幸いである。

3. 燃料デブリの調査のためのプローブ開発

本章では損傷した炉心内部の燃料デブリを観察し、その組成をその場でレーザーブレイクダウン分光 (LIBS) 分析するための新型プローブ開発の概要について報告する。Figure 2 にプローブのヘッド部分の模式図を示す。以下に損傷した福島第一発電所炉心に対応するため、これまでの開発の実績に基づきグループ毎の主たる役割を示す。詳細は別報[2]を参照されたい。

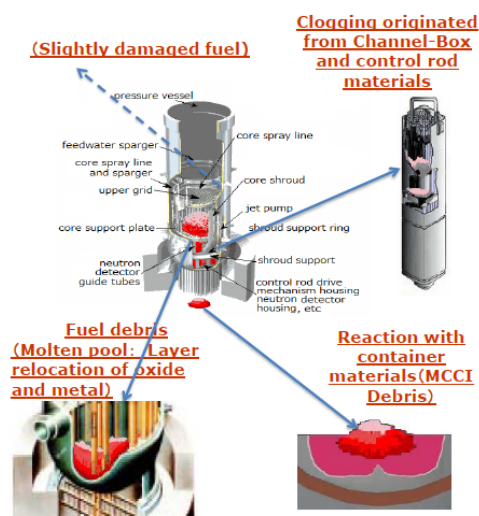


Figure 1 Damaged Fukushima BWRs

第1グループ	スコープ観察と LIBS 分析の組み合わせ
第2グループ	LIBS を基礎とした水中組成分析
第3グループ	核燃料を対象とした定量分析
第4グループ	耐放射線光ファイバの開発

第1グループは、水中観察と LIBS 分析が単一のプローブとして統合が可能であることの実証である。燃料デブリの水中観察を行い、雰囲気気を気中環境とすることができれば、LIBS 分析できることを目標とする。第2グループは LIBS 分析の最先端技術を試行する。燃料デブリが水中環境条件下にある状態において、成分組成の定量的な分析を目標とする。対象はステンレス、ジルカロイ、及びこれらの酸化物である。第3グループはウラン及びプルトニウムなど核燃料を対象として LIBS 技術を適用する。計量管理技術としても評価に耐えうる段階を目標とする。第4グループは、高線量な環境に耐えうる光ファイバ材料の開発と照射実験による確認である。以上の4グループは、主たる役割を堅持しつつ重畳した連携をとることで、プロジェクト全体の進行を円滑に進める。

プロジェクト開始以前にファイバスコープ観察とレーザー溶接の統合については、観察とレーザー伝送を同軸で行える複合型光ファイバを利用して、次世代高速炉伝熱管の検査補修プローブとして実証済みであった[3]。LIBS 分析については水溶液中を対象として、各種元素についてコールド条件下で成功していた。核燃料分光に関しては、ウランに関して真空

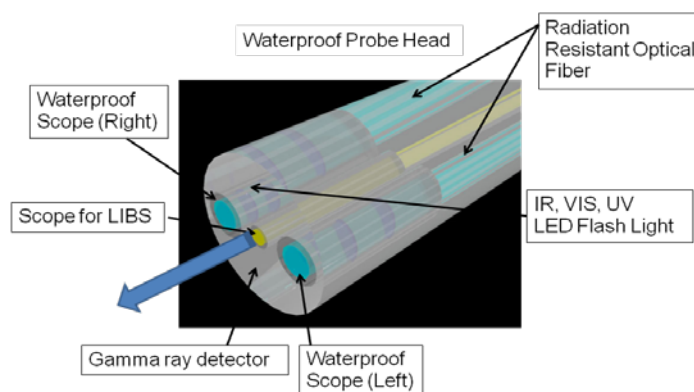


Figure 2 Sensing Head Mount of the New Probing System

中及び希ガス環境下で定量的な測定が成功していた。耐放射線性の光ファイバについては、可視域から近赤外域に関する劣化特性が把握されており、また、常陽炉内観測としてのスコープの開発と映像広角撮影に成功していた。本プロジェクトでは、光ファイバを用いた LIBS が水中で可能か否か、また、光ファイバが放射線劣化の影響をほとんど受けない波長である 700~900nm の範囲内を LIBS に利用できるかが重要である。加えて、観察による燃料デブリの全体像の把握のためには遠距離からの広角撮影が必要であるのに対して、LIBS 分析のためには対象に接近したマクロ撮影が必要であるなど、観察と LIBS が実際に統合できるかという問題もある。現時点では、これらの問題は段階的に解決されつつある。まず、超広角レンズを複合型ファイバと組み合わせた防水スコープの試作に成功し、画像観察と LIBS 分析が可能で可搬のプローブ装置の試作に成功した。水中 LIBS 分析に関しては、レーザーのダブルパルス化やガスパージ型プローブの適用により、水中にあるステンレス鋼と純鉄の区別、および水中の ZrO_2 からの発光スペクトル取得に成功した。

100m³/day 以上の冷却水の投入にもかかわらず水位が一定なのは、炉にある破口のためである。PCV と圧力抑制室の接続管（ベント管）には蛇腹構造のベローで接続されている。このようなベロー構造は脆弱であり、事故初期の水蒸気と水素の高温高压により破壊されたことは容易に想像できる。燃料デブリの本格的な取り出しに先立って、破口部分の漏水措置を施した上で PCV 内部の水位を上げて、内部調査と燃料デブリのサンプリングを実施することとなる。十分な調査の後に PCV の上部の冷却配管等に止水措置を施した後、PCV 内の水位を上げる。この操作により事

実上、PCV は水棺となる。この状態で、本格的な調査が遠隔ロボットにより実施されることになる。本格的なデブリ取り出しは 15～20 年後とされている。

4. まとめと今後の課題

H24 年度の各グループの活動により損傷炉心内部の調査のためのプローブ開発に向けてスタートを切ることができた。これらの基盤技術は、原子力システム研究開発事業や一般会計や特別会計の運営交付金などにより、東日本大震災が発生する以前の段階において、別目的として研究開発を進めていたものが幸運にも芽となった。H24 年度の予算措置により、拡散状態であった技術が初めて集約され、方向性が与えられた。本件を支えて頂いた関係者に厚く御礼申し上げたい。同時に H25 年度以降の継続的なサポートが不可欠なことは必然である。

燃料デブリに関して現時点では TMI-2 の燃料デブリ分析が基本となっている[4]。しかしながら、TMI-2 のような PWR に比べて福島原子力発電所のような BWR は Zr が多用されている。また、福島原子力発電所では制御棒に B_4C を用いているため、燃料デブリ中にも炭化物やホウ化物の混入が考えられる。最も大きな違いは 1 号機であり、核燃料のほとんど全量が PCV 底部に落下し、コンクリートとの熔融反応を生じている点である。これは TMI-2 には見られなかった状態である。一方で、燃料デブリの多くが RPV 内に残留している 2 号機、3 号機は TMI-2 に類似していると云える。

現在1日当たり100m³以上の冷却水が注がれる中で、PCV 底部の燃料デブリは残留熱とガンマ線を放射続けている。1～3 号機の何れも炉心熔融により生成した水素は 800kg/機と推定され、これに対応する酸化物が大量に生成しているはずである。仮に全てが酸化 Zr 粒子とすると、重量で 25 トン、密度を 1.3g/cm³とすると容積 18m³となる。高温で水により急冷されると酸化物は微粒化する。核燃料デブリの周囲では、ガンマ線により生成したコンプトン電子によりチェレンコフ光が生じている。さらに燃料デブリの周囲では、残留熱により自然対流が生じ、この対流の中で微粒化した酸化物粒子が攪拌されているならば、燃料デブリの直接観察は極めて困難である。加えて酸化 Zr 粒子は蛍光を発する可能性もある。従って、青く懸濁した汚染水中での観察と分析という状況を想定することで、さらに新たな技術開発に取り組む必要が生まれる。燃料デブリの取出しに向けての技術開発のハードルは高い。

以上、福島技術本部を統括とする機構内連携により、損傷炉心内部調査のための新型プローブ開発が開始された。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] 山下和彦、福島第一原子力発電所における自己収束への取り組みと廃止措置に向けた中期計画、保全学、**11**, pp.18-23(2012).
- [2] 日本原子力研究開発機構 福島技術本部 復旧技術部、東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置技術に係る原子力機構の取り組み 2012 年版、発行 2012 年 11 月 pp.13-14(2012).
<http://www.jaea.go.jp/fukushima/pdf/20121206-02.pdf>
- [3] A. Nishimura, Y. Shimada, Development Maintenance Technologies for FBR's Heat Exchanger Units by Advanced Laser Processing, 19th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE19-43948(2011).
- [4] T. Washiya, Fundamental Research Program of Removal of Fuel Debris, International Symposium on the Decommissioning of TEPCO's Daiichi Nuclear Power Plant Unit 1-4, March 14(2012).
http://www.meti.go.jp/english/earthquake/nuclear/decommissioning/20120315_01.html

3.5 モンテカルロシミュレーションとゲル線量計による

粒子線線量分布評価

Dose Evaluation for Particle Therapy by Monte Carlo Simulation and Gel Dosimetry

石川 顕一^{1,2,3}、古田 琢哉⁴、前山 拓哉⁵、福西 暢尚⁵、野田 茂穂^{1,4}、高木 周^{1,6}、深作 和明^{1,7}、
姫野 龍太郎^{1,4}

¹理化学研究所 次世代計算科学研究開発プログラム、²東京大学 大学院工学系研究科 光量子科学研究センター、³東京大学 大学院工学系研究科 原子力国際専攻、⁴理化学研究所 情報基盤センター、
⁵理化学研究所 仁科加速器研究センター、⁶東京大学 大学院工学系研究科 機械工学専攻、
⁷碑文谷病院 脳神経外科

Kenichi L. Ishikawa^{1,2,3}, Takuya FURUTA⁴, Takuya MAEYAMA⁵, Nobuhisa FUKUNISHI⁵,
Shigeho NODA^{1,4}, Shu TAKAGI^{1,6}, Kazuaki FUKASAKU^{1,7}, Ryutaro HIMENO^{1,4}

¹ Computational Science Research Program, RIKEN

² Photon Science Center, School of Engineering, The University of Tokyo

³ Department of Nuclear Engineering and Management, School of Engineering, The University of Tokyo

⁴ Advanced Center for Computing and Communication, RIKEN

⁵ Nishina Center for Accelerator-Based Science, RIKEN

⁶ Department of Mechanical Engineering, School of Engineering, The University of Tokyo

⁷ Department of Neurosurgery, Himon'ya Hospital

Precise prediction of dose distribution on human voxel data is an essential issue in the particle therapy (proton and carbon therapy) treatment planning. The goal of our project is to conduct dose simulation on a whole-body voxel phantom to evaluate secondary cancer risk, and to verify calculated dose distribution by gel dosimetry.

Keywords: Particle Therapy, Carbon-ion Therapy, Proton Therapy, K Supercomputer, Monte-Carlo Method, Gel Dosimetry

1. はじめに

重粒子線治療[1]とは、重粒子線(主に炭素イオン線)を病巣に集中的に照射することによって、非侵襲にがんを治す最先端の治療法である。通常の放射線治療で用いられているエックス線は、がん病巣で止まらずに進み、通り道にまんべんなく影響を与える。これに対して、物質内を進む重粒子線は停止する直前に最大の線量を付与するため、エネルギーを適切に選べばピンポイントにがんを攻撃できる。

我々は、スーパーコンピュータ「京」でも動作するような重粒子線治療用の線量計算システムの開発を、モンテカルロ粒子・重イオン輸送コード PHITS[2]を用いて進めている[3-5]。また、ゲル 3D 線量計を開発することで[6-8]、計算の精度検証も進めている。これらについて、我々が行ってきた研究の成果の一部を紹介する。

2. 重粒子線治療のための PHITS コードを用いた線量計算手法の開発

2.1. はじめに

重粒子線がん治療で発生する2次中性子の飛程は非常に長く(数十 cm)、2 次がんリスク評価には人体全身スケールでの線量計算が必要である。全身ボクセルデータに対してモンテカルロ粒子輸送計算を行うことで全身線量計算が可能であるが、これには膨大な計算量・計算時間が必要で系統的な研究が行われていない。この一方で、モンテカルロ粒子輸送計算では個々の照射粒子を独立に扱うため、大規模並列計算で計算時間の大幅な短縮が可能である。実際、汎用コード PHITS[2]には MPI による並列処理が組み込まれており、並列計算が行える。ところが、MPI 並列はメモリ分散並列であり、大容量ボクセルデータを扱う全身線量計算には不向きである。一般の大型計算機は個々のノードをメモリ共有の複数コア(通常8コア)で構成した多数ノードで成り立つが、全身スケールのボクセルデータは数 GB に相当し、汎用計算機のコア当たりメモリ容量(例:京コンピュータ=2GB)を凌駕する。この制限から全身線量計算には専用の大容量メモリ計算機が必要とされる。汎用計算機による大規模並列全身線量計算を可能にするため、領域分割モンテカルロ法の開発[3]および PHITS への OpenMP メモリ共有並列の導入[4,5]を行った。

京コンピュータを含む計算機での大規模並列計算の実行および性能測定について報告する。

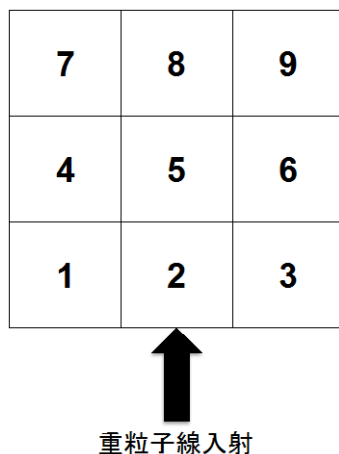


Fig.1 Schematic of the domain division.

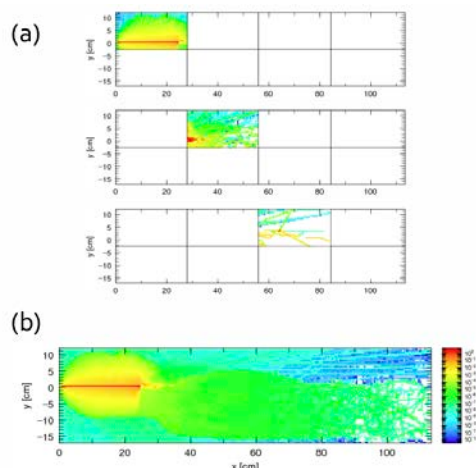


Fig.2 Domain-division Monte-Carlo for 200 MeV proton incidence to the human voxel phantom. (a) progress in each generation (b) total dose distribution

2.2 領域分割モンテカルロ法[3]

Fig. 1 に示す様に計算領域全体を複数の領域に分割する(実際には、紙面に垂直な方向にも分割する)。各領域のサイズは、与えられたメモリーで線量計算できるデータ量におさまるようにする。ここでは、重粒子線は領域2に直接入射すると仮定する。PHITSに実装されている、計算領域を出た粒子の情報をファイルにダンプする機能、およびダンプファイルを線源として入力する機能を利用し、分割領域のうち、粒子線入射領域から周辺領域へと、ツリー状に順次モンテカルロシミュレーションを実行し、線量等をタリーする外部モジュールを作成し、また、その並列化を行った。この方法のひとつの利点は、粒子の入って

こない遠方などの領域は計算する必要がないことである。並列計算機上での人体ボクセルデータに対する領域分割計算の例を Fig. 2 に示す。粒子情報のダンプ・再読み込みの時間が計算時間として余計にかかるが、この計算時間増加は数%以内におさえられることを確認している。

2.3 OpenMP-MPI ハイブリッド並列導入によるモンテカルロシミュレーションコード PHITS の開発[4,5]

モンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS[1]を用い、CT イメージから取得したボクセルデータに対して線量計算を行うことで、粒子線治療シミュレーションが行える。モンテカルロ法は従来のペンシルビーム法に比べて、長時間の計算を要するため、効率的な並列処理導入による計算時間の短縮が求められている。従来の PHITS コードに含まれる MPI メモリ分散並列処理では、メモリ資源の活用に問題があり、大容量のボクセルデータを取り扱う粒子線治療シミュレーションでは問題が生じる。この問題を解決するため、我々は OpenMP メモリ共有並列処理を新たに導入し、複数ノードからなるスーパーコンピュータではハイブリッド並列(ノード間 MPI メモリ分散型並列+ノード内 OpenMP メモリ共有型並列)で動作するようにコード化し、実装したハイブリッド並列の検証と性能測定を行った。

1ミリ角のボクセルで表現した一辺 10 センチの立方体形状の水ファントムに、100 MeV/u の炭素ビームが入射した場合の計算例を Fig. 3 に示す。メモリー共有並列を使用した場合とそうでない場合で全く同じ結果が得られていることが分かる。また、12 スレッド並列でも 87%という高い並列化効率を得られている。

大規模並列計算での動作確認を行うため、RIKEN Integrated Cluster of Clusters (RICC)および京コンピュータを利用して試計算を実行する。並列化効率を調べるため、全体の問題サイズ(入射粒子数)を固定して並列数を増加させた場合の計算時間の変化(ストロングスケーリング)を測定する。同時に、プロファイラーを用いて実行性能について調べる。複数ノードで構成されるスーパーコンピュータを用いた OpenMP-MPI ハイブリッド並列の動作確認として、RICC および京コンピュータにて試計算(10cm 角の水ファントムに対する炭素線照射の線量計算)を実行した。2012 年 9 月現在、京コンピュータにて 16,384 ノード(131,072 コア)までの実行を試し、正常動作を確認した。性能測定に関しては、現在までのところ京コンピュータを用いて、2,048 ノード(16,384 コア)までの並列化効率、および 4,096 ノード(32,768 コア)までの実行性能の測定を終えた。Fig. 4 は得られたストロングスケーリングの台数効果(並列化効率)を示しており、現在までの並列数では非常に良好な結果が得られている。

OpenMP-MPI ハイブリッド並列は PHITS に実装され、version 2.51 として公開されている[9]。

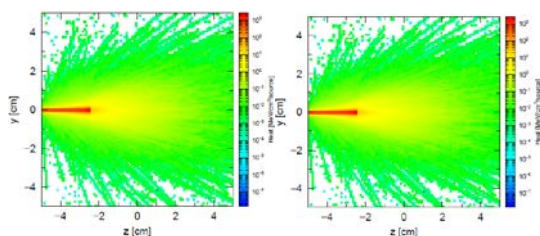


Fig.3 Dose distribution in water phantom exposed to a carbon beam with (left) and without (right) the shared-memory parallelization with 8 cores.

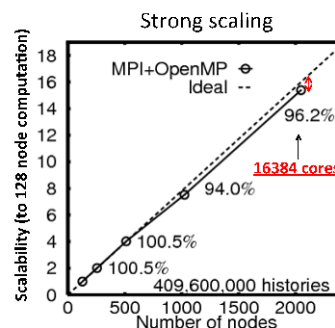


Fig.4 Strong scaling measured at the K supercomputer.

3. ポリマーゲル線量計を用いた線量分布測定とシミュレーションの検証

ゲル線量計は MRI を用いることで生体等価材料中の三次元線量分布を評価可能とする唯一の線量計であり、線量分布の精度検証に適している。本研究では炭素線照射時のゲル線量計の特性評価、並びに骨ファントムをゲル線量計の手前に挿入した際の線量分布の評価と重粒子線輸送計算コード PHITS との比較を行った。

VIPAR ポリマーゲル線量計を用い、400 ml PET 製容器に封入し、調製翌日に照射実験を行った。照射は理研リングサイクロトロンからの 135 MeV/u の炭素線を用いた。照射後の試料は Philips 1.5 T MRI を用い T_2 分布測定を行い、 R_2 ($1/T_2$) 値の線量依存性を評価した。

ゲル線量計の入射表面に骨ファントムを配置して照射したときの、VIPAR ゲルの R_2 分布と PHITS コードから計算される線量分布を比較したものを Fig. 5 に示す。測定と計算による飛程の位置が、1~2mm の精度で一致していることが分かる。ずれは、するどいブラッグピークによるトランケーションアーチファクトに起因すると考えられる。

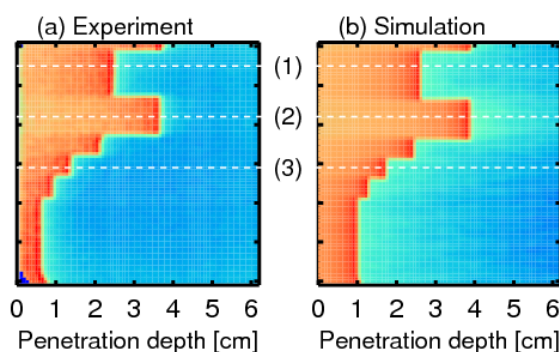


Fig.5 Comparison of (a) measured R_2 distribution and (b) calculated dose distribution.

謝辞

本研究は、文部科学省の最先端・高性能汎用スーパーコンピュータの開発利用プロジェクトの一環である次世代生命体統合シミュレーションソフトウェアの研究開発プロジェクト、理化学研究所戦略的研究展開事業、理化学研究所基礎科学特別研究員制度、科学研究費補助金(21656240, 24760725)、放射線医学総合研究所 HIMAC ビームタイムの支援によって得られたものである。これらの支援に感謝する。

参考文献

- [1] <http://www.juryushi.org/index.html> 重粒子線治療
- [2] K. Niita, T. Sato, H. Iwase, H. Nose, H. Nakashima, L. Sihver, Radiat. Meas. **41**, 1080 (2006).
- [3] K. L. Ishikawa *et al.*, Prog. Nucl. Sci. Tech. **2**, 197 (2011).
- [4] T. Furuta, *et al.*, Proceedings of 6th Japan-Korea Joint Meeting on Medical Physics and 11th Asia-Oceania Congress of Medical Physics (2011).
- [5] T. Furuta, *et al.*, IFMBE Proceedings **39**, 2099 (2012).
- [6] T. Maeyama, *et al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep.45, 205 (2012).
- [7] T. Maeyama, *et al.*, Phys.: Conf. Ser. (in press).
- [8] M.L. Taylor, *et al.*, Phys.: Conf. Ser. (in press).
- [9] Particle and Heavy Ion Transport code System (<http://phits.jaea.go.jp/getj.html>)

3.6 重粒子線照射による二次電子の運動とプラズマ振動生成

The Movement of Secondary Electrons and Plasma Oscillation Production Due to the Irradiation of a Heavy Particle

森林 健悟

日本原子力研究開発機構

Kengo Moribayashi

Japan Atomic Energy Agency

Abstract. This paper presents a theoretical study of the DNA damage due to the effect of the composite electric fields of H_2O^+ ions produced from the irradiation of a heavy ion onto a cell. A model for atomic and molecular processes in strong electric fields is developed. It is found that the composite electric fields increase the number of the events of electron impact ionization processes.

key words: Heavy Ion Irradiation, the Movement of Secondary Electrons, Composite Electric Field, Plasma Oscillation

1. はじめに

重粒子線によるがん治療は高い治療効果を持つことが知られている[1, 2]。その理由の一つはクラスターDNA損傷を作るからと考えられているが[3 – 7]、クラスターDNA損傷の生成機構は分かっていない [7]。この機構が分かれば、より高い治療効果をもつがん治療の実施につながる。そこで、我々はシミュレーションで炭素線でのクラスターDNA損傷の生成機構を調べている [8, 9]。クラスターDNA損傷はFig. 1 (a)で示すように粒子線が水分子を電離し、そのとき生じた二次電子によって生じると考えられてきた [6]。そこで、クラスターDNA損傷の生成機構を解明するために、二次電子の運動のシミュレーション研究を行っているが、精密に再現するために人工的及び経験的な近似をできる限り減らしたモデルを開発している。最近のコンピュータの発展に伴い個々の二次電子と個々の分子イオンとのクーロン相互作用を考慮して二次電子の運動がシミュレーションできるようになった。このモデルを用いて炭素線照射に二次電子の運動を計算したところ入射イオン衝突の電離過程でできる水分子イオンの合成電場が強く、さらに、その電場で多くの二次電子が入射イオンの軌道付近にトラップされることがわかった [8, 9]。これらのトラップされた二次電子はプラズマ振動を起こすと考えられるが、重粒子線照射によるプラズマ振動は古くから知らせているリンドハードモデル [10] 及びチャタジーモデル [11] で示されている。プラズマ振動はFig.1(b)で示すようにDNAへの相互作用の回数を増やすことが期待でき、さらに、この回数の増加がクラスターDNA損傷生成につながることを期待できる。本論文では、陽子線と炭素線とでの軌道付近にトラップされる二次電子の数を示す。

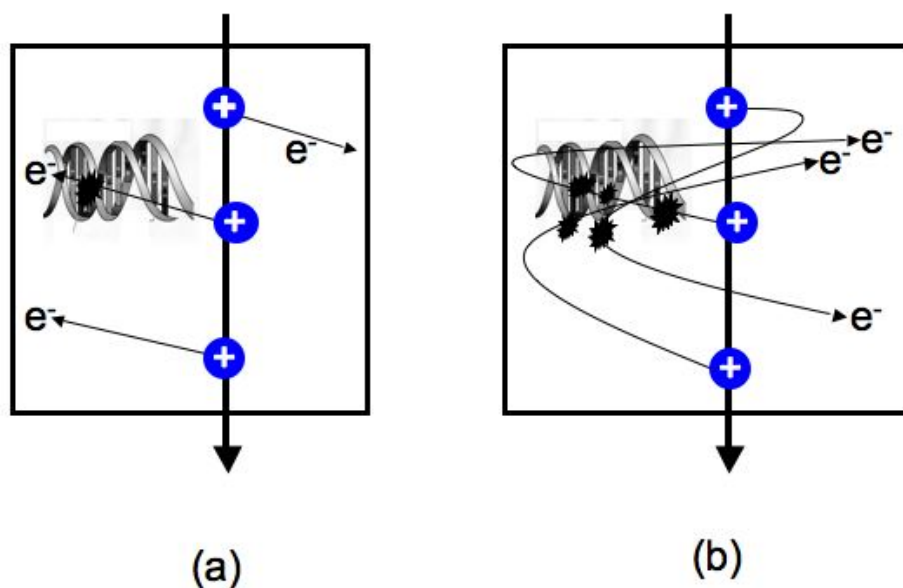


Fig.1 Images of DNA damage using (a) convetional model and (b)our new model.

The movement of electrons are straight and zigzag using (a)convetional model and (b)our model, respectively and the yield of DNA damage due to electron impact using our model are much larger than that using the convetional model.

2. シミュレーションモデル

本研究で用いるシミュレーションモデルの詳細は我々の以前の論文 [8, 9] に示してあるので、ここでは、シミュレーションの手順を示すことに留めておく。(i)まず、標的は水として、標的内に水分子を液体密度になるように挿入する。(ii)一つのイオンを標的内に入れて動かす。(iii)イオンと水分子との衝突電離過程 ($A^{z+} + H_2O \rightarrow A^{z+} + H_2O^+ + e^-$) [12, 13]を取り扱い、二次電子及び水分子イオンを生成させる。ここで、 A^{z+} 、 e^- はそれぞれ、入射イオン、電子を表す。(iv)これらの電子の初期エネルギー及び放出角度を決める。(v)これらの電子とイオン及び他の電子のクーロン相互作用を考慮してニュートン方程式を解いて電子の運動をシミュレーションする。(vi)これらの電子の水分子への衝突電離過程 ($e^- + H_2O \rightarrow e^- + H_2O^+ + e^-$) [14]、または、衝突励起過程 ($e^- + H_2O \rightarrow e^- + H_2O^*$) [15]により水分子の電子状態を変化させる。ここで、 H_2O^* は水分子の励起状態を表す。同時にその起こる過程に従って衝突に関与した電子のエネルギーを減らす。(vii)状態の変化がイオン化の場合、新たに電子を生成させ、手順 (iv) - (vi) を実行させる。

3. 結果と考察

Fig. 2 は水分子イオンが生成する位置座標と水分子イオンが捕獲する電子の数を示す。3 MeV/u のエネルギーの炭素線及び 200 keV の陽子線の場合、軌道付近のほぼすべての水分子が電離して、その軌道方向に対しそれぞれ、0.3 nm、0.8 nm の間隔で水分子イオンが作られ、同時に生じた電子は、それぞれ 45 %、25%の確率でイオンの電場により軌道から直径 2 nm 以内の距離に捕獲されることが分かった（軌道方向に 10 nm 進むと、それぞれ 15 個、3 個の電子が捕獲される）。クラスターDNA 損傷は軌道付近で生じると考えられるので、軌道から近い距離として DNA 分子の直径である 2 nm 以内での捕獲を計算した。陽子線の場合、200 keV 付近でイオンが作られる確率が最大となるので、これらの結果は水分子イオンの電場により、炭素線の方が陽子線よりも数倍多くの電子を粒子線の軌道付近に捕獲しうることを世界で初めて見いだしたものである。さらに、電子の捕獲を考慮すると、炭素線では軌道から直径 2 nm 以内にある水分子の電離の数が従来考えられていた数の約 4 倍になるという結果を得た。これは、電子の捕獲が水分子を電離させる機会を増やすことが原因と考えられ、細胞中の DNA に対しては Fig.1(b)に示すようなイメージ、すなわち、電子の捕獲がプラズマ振動を起こし、それにより、長時間 DNA と相互作用し、DNA 損傷を局所的に多く作り出し、クラスターDNA 損傷の生成数を増やすことを示唆する。

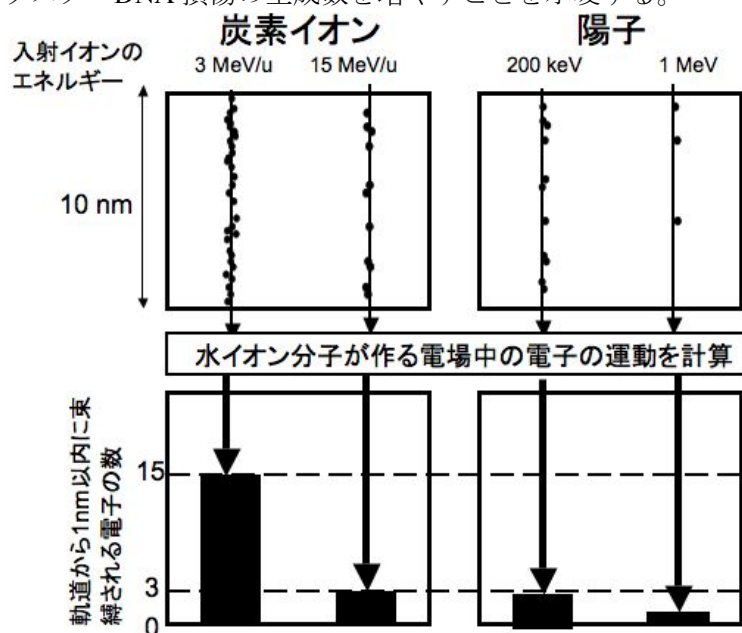


Fig.2 (Upper figure)The positions where the water ions are produced and (Lower figure) the numbers of electrons trapped near the track

(Upper figure)Positions of water ions produced from an carbon ion with an energy of 36 MeV and a proton with 200 keV when the particle moves the distance of 10 nm in the water. (Lower figure) The numbers of electrons trapped within the diameter of 2 nm from the track of the particle due to electric fields of water ions.

4. まとめ

粒子線が水中を通過すると粒子線の衝突電離過程により水分子が電離し、生成したイオンにより電場を形成する。ここでは、陽子線と炭素線照射に対して、この水分子イオンの合成電場によって粒子線の軌道付近にトラップされる電子数を計算した。その結果、炭素線の方が陽子線よりも(i)入射イオン衝突の電離過程でできる水分子イオンの合成電場が強く、さらに、(ii)その電場で多くの二次電子が入射イオンの軌道付近にトラップされることがわかった。これらのトラップされた電子はプラズマ振動を起こし、クラスターDNA損傷生成に寄与することが期待できる。

謝辞

入来仁隆博士、土田秀次博士、伊藤秋男博士（京大）、赤松憲博士、鹿園直哉グループリーダー、田中敦ユニット長、南波秀樹理事（原子力機構）に有用な議論をしていただき、感謝したいと思います。本シミュレーションは原子力機構東海研のスーパーコンピュータ‘PRIMERGY BX900’を使用しました。

参考文献

- [1] E.A. Blakely and A. Kronenberg, Radiat. Res., **150**, S126 (1998).
- [2] Y. Sato, *et al.*, AIP Conference Proceedings, **771** 128 (2005).
- [3] J.F. Ward, Int. J. Radiat. Biol. **66**, 427 (1994).
- [4] D.T. Goodhead, Int. J. Radiat. Biol. **65**, 7 (1994).
- [5] M. Hada, and A.G. Georgakilas, J. Rad. Res. **49**, 203 (2008).
- [6] H. Nikjoo, *et. al.*, Int. J. Radiat. Bio. **73**, 355 (1998).
- [7] N. Shikazono, *et al.*, J. Radiat. Res. **50**, 27 (2009).
- [8] K. Moribayashi, Phys. Rev. A. **84** 012702 (2011).
- [9] K. Moribayashi, Rad. Phys. Chem., in press (2012).
- [10] J. Lindhard and A. Winther, Mat. Fys. Medd. Vid. Selsk. **34** 1 (1964).
- [11] A. Chatterjee and H.J. Schaefer, Rad. Env, Bio, **13** 215 (1976).
- [12] C.D. Cappello, *et al.*, Nucl. Instru. and Meth. Phys. Res. B, **267** 781 (2009).
- [13] S. Uehara, *et al.*, Rad.Phys. Chem., **59** 1 (2000).
- [14] O.J. Orient and S.K. Srivastava, J. Phys. B. **20**, 3923 (1987).
- [15] H.P. Pritchard, V. McKoy, and M.A.P., Lima, Phys.Rev. A. **41**, 546 (1990).

3.7 レーザー逆コンプトンガンマ線による宇宙核物理研究

Nuclear Astrophysics with Laser Compton-backscattered γ -rays

嶋 達志

大阪大学 核物理研究センター

Tatsushi SHIMA

Research Center for Nuclear Physics, Osaka University

Laser Compton-backscattered (LCS) γ -ray beams provide a unique opportunity for studies of photonuclear reactions relevant to nucleosynthesis and evolutions of stars and the universe. In this contribution some topics from the photonuclear reaction studies with LCS γ -rays are presented.

Keywords: Nucleosynthesis, Photonuclear Reactions, Laser Compton-backscattered γ -rays.

1. Introduction

The origin of the chemical elements is one of the fundamental questions in natural science. The aim of the nuclear astrophysics is to understand the origin of chemical elements by comparing the observational data for elemental or isotopic abundances with the calculated ones using theoretical models for nucleosynthesis and the data of the relevant nuclear reactions. It is considered that the light elements up to lithium were mainly produced in the big-bang nucleosynthesis [1], and the heavier elements were made by nuclear reactions occurring in stars [2]. The nuclear radiative capture reactions and their inverse photonuclear reactions play crucial roles in various processes of nucleosynthesis, and precise data of those reactions are highly demanded. High-quality real photon beams generated by the laser Compton-backscattering (LCS) method provide a promising tool for high-precision measurements of the photonuclear reaction cross sections as presented below.

2. Photodisintegration of deuteron and big-bang nucleosynthesis

The standard model of the big-bang nucleosynthesis (SBBN) is based on the standard theory of the electro-weak interaction, the general relativity, and the assumption that the matter distribution was homogeneous and isotropic. It would produce the nuclei up to the mass number of $A=7$ via the nuclear reaction network between lighter nuclei. For precise calculation of the nucleosynthetic yields of SBBN, reliable data of the nuclear reaction rates are indispensable. From the reaction network calculations of SBBN, the neutron capture reaction on proton at the center-of-mass energy of 0.1~1 MeV was found to be one of the most influential ones to the nucleosynthetic yields [3,4], and its reaction rate should be known with the best accuracy. For that purpose we made a direct

measurement of the $p(n,\gamma)d$ reaction cross section in the energy region up to 300 keV using a fast neutron beam [5]. The direct measurement, however, is difficult above 300 keV due to the severe background caused by the scattered neutrons. Therefore we determined the cross section in the energy region above 300 keV by measuring the inverse $d(\gamma,p)n$ reaction cross section and assuming the principle of the detailed balance. A schematic view of the experimental setup is shown in Fig. 1.

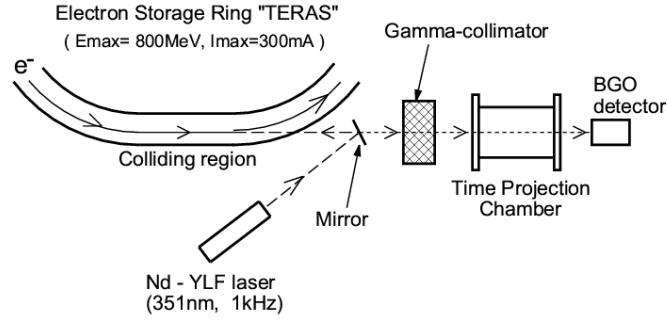


Figure 1. Experimental setup for photonuclear reaction experiment with LCS γ -ray beam.

We used the pulsed LCS γ -ray beam at the National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST) [6]. So far the photonuclear reactions have been measured mainly using bremsstrahlung photons. The bremsstrahlung photons are however not useful for the measurements at the energy as low as a few MeV, because they contain intense low-energy γ -rays which make serious backgrounds. On the other hand, since the LCS γ -rays are quasi-monoenergetic, they are free from low-energy background photons. For detection of the protons from the $d(\gamma,p)n$ reaction, we used a time projection chamber (TPC) containing the CD_4 gas as an active target [7].

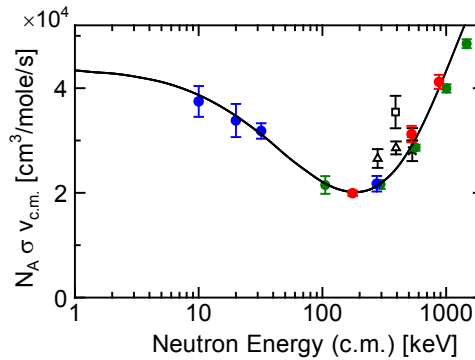


Figure 2. Nuclear reaction rate for $p(n,\gamma)d$. Blue dots; data from our (n,γ) measurement [5], red dots; present result [8], green dots; data with LCS γ -rays by Hara et al. [9]. Boxes [10], triangles [11] and crosses [12] are the $d(\gamma,p)n$ data with γ -rays from RI sources. Solid line; ENDF/B-VII library [13].

The present result is shown together with the other data in Fig. 2. The old data taken by means of discrete γ -rays from radioactive isotopes are significantly larger than the latest evaluated data

from the ENDF/B-VII library [13]. On the other hand, our data are found to be in good agreement with the data from another measurement with LCS γ -rays and a high-efficiency neutron detector [9]. Also the present result agrees with the evaluated one within the standard deviation of 4%, suggesting the great advantage of LCS γ -rays to high-precision measurements of photonuclear reactions.

3. $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ reaction and stellar nucleosynthesis

The $^4\text{He}(2\alpha, \gamma)^{12}\text{C}$ reaction, or the triple- α reaction, is one of the key reactions to the stellar evolution and the nucleosynthesis in the helium-burning phase [14]. Due to unavailability of an unstable ^8Be target, a direct measurement of the triple- α reaction cross section is very difficult in a laboratory. On the other hand, the inverse $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ reaction can occur in a laboratory, and will be useful to obtain information on the reaction. For that purpose we made a measurement of the $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ reaction cross section using the same method as for the $d(\gamma, p)n$ measurement. Fig. 3 shows an example of the observed image of the α -ray tracks emitted by the $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ reaction.

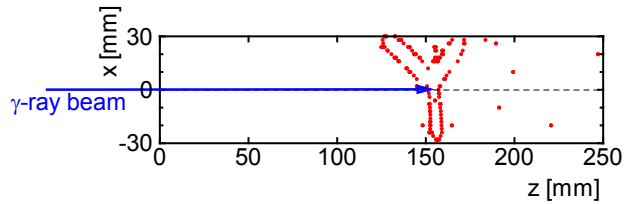


Figure 3. Example of the $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ event. The rectangular box indicates the side view of the effective region of the TPC. The γ -ray beam comes from left (blue arrow). Red dots denote the envelopes of the clouds of the ionized electrons produced along the α -ray tracks.

As shown in Fig. 4, there has been a large discrepancy in the existing data of the $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ cross section. The present result was found to support the older data [15] rather than the newer ones [16,17,18]. Also we did not find an evidence of the possible 2^+ resonance at 9.11 MeV which is taken into account by the NACRE compilation for nuclear astrophysics [19]. On the other hand, our result is found to be consistent with the evaluation by the JENDL-3.3 nuclear data library [20].

4. Summary

LCS γ -rays have nice features of narrow energy widths, small angular spreads, good polarizations, and so on, and will provide ideal tools for high-precision measurements on the photonuclear reactions relevant to nucleosynthesis. Next-generation LCS γ -ray sources are aiming at producing γ -rays with total intensity of up to $\sim 10^{13}$ γ /s, and will enable one to make more precise experiments such as the cross section measurements for stable nuclei at very low energies and direct measurement of the photonuclear reactions of unstable nuclei.

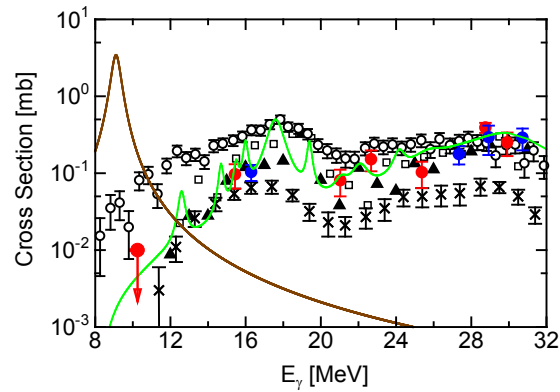


Figure 4. $^{12}\text{C}(\gamma, 2\alpha)^4\text{He}$ cross section data. Red dots and blue dots are our data measured at AIST and the NewSUBARU synchrotron radiation facility of the University of Hyogo, respectively [21]. Triangles; Ref. [15], boxes; Ref. [16], crosses; Ref. [17], and circles; Ref. [18]. A brown curve and a green curve are the evaluated data by NACRE [19] and JENDL-3.3 [20], respectively.

References

- [1] R.A. Alpher, H.A. Bethe and G. Gamow, Phys. Rev. **73**, 803 (1948).
- [2] E. M. Burbidge, G.R. Burbidge, W.A. Fowler and F. Hoyle, Rev Mod. Phys. **29**, 547 (1957)
- [3] K.M. Nollet and S. Burles, Phys. Rev. **D61**, 123505 (2000).
- [4] A. Coc and E. Vangioni, J. Phys.: Conf. Ser. **202**, 012001 (2010).
- [5] T.S. Suzuki et al., Astrophys. J. **439**, L59 (1995); Y. Nagai et al., Phys. Rev. **C56**, 3173 (1997).
- [6] H. Ohgaki et al., IEEE Trans. Nucl. Sci. **38**, 386 (1991).
- [7] T. Kii et al., Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. **A552**, 329 (2005).
- [8] T. Kii et al., Proc. of 5th Int. Symp. on Nuclear Astrophysics, 21 (1998).
- [9] K.Y. Hara et al., Phys. Rev. **D68**, 072001 (2003).
- [10] K. Shinohara, T. Okada and S. Morita, J. Phys. Soc. Japan, **4**, 77 (1949).
- [11] G.R. Bishop et al., Phys. Rev. **80**, 211 (1950).
- [12] A.H. Snell, E.C. Barker and R.L. Sternberg, Phys. Rev. **80**, 637 (1950).
- [13] ENDF/B-VII.0 data file for ^1H (MAT=125). 2006, evaluated by G.M. Hale
- [14] F. Hoyle, Astrophys. J. Suppl. **1**, 121 (1954).
- [15] V.N. Maikov, Zh. eksper. teor. Fiz. **34**, 1406 (1958). (Soviet Physics-JETP **7**, 973 (1958).)
- [16] A. Murakami, J. Phys. Soc. Japan **28**, 1 (1970).
- [17] E.A. Kotikov et al., Nauk, Ser. Fiz. **66**, 445 (2002).
- [18] S.N. Afanas'ev and A.F. Khodyachikh, Phys. Atomic Nuclei **71**, 1827 (2008).
- [19] NACRE compilation, C. Angulo et al., Nucl. Phys. **A656**, 3 (1999).
- [20] JENDL-3.3 nuclear data library, K. Shibata et al., J. Nucl. Sci. Technol. **39**, 1125 (2002).
- [21] K. Horikawa et al., Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. **A618**, 209 (2010)

3.8 積分共鳴法及び光核分裂法による核共鳴蛍光非破壊測定の 性能向上

Significantly Improving Nuclear Resonance Fluorescence Non-Destructive Assay by Using the Integral Resonance Transmission Method and Photofission

Christopher T. ANGELL、早川 岳人、静間 俊行、羽島 良一

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

Christopher T. ANGELL, Takehito HAYAKAWA, Toshiyuki SHIZUMA, Ryoichi HAJIMA

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Non-destructive assay (NDA) of ^{239}Pu in spent nuclear fuel or melted fuel using a γ -ray beam is possible using self absorption and the integral resonance transmission method. The method uses nuclear resonance absorption where resonances in ^{239}Pu remove photons from the beam, and the selective absorption is detected by measuring the decrease in scattering in a witness target placed in the beam after the fuel, consisting of the isotope of interest, namely ^{239}Pu . The method is isotope specific, and can use photofission or scattered γ -rays to assay the ^{239}Pu . It overcomes several problems related to NDA of melted fuel, including the radioactivity of the fuel, and the unknown composition and geometry. This talk will explain the general method, and how photofission can be used to assay specific isotopes, and present example calculations.

Keywords: Safeguards, Non-Destructive Assay, Nuclear Resonance Fluorescence

1. Introduction

Nuclear resonance fluorescence (NRF) is a powerful tool for assaying ^{239}Pu in nuclear fuel [1], including melted fuel from Fukushima. It is an active interrogation technique using a γ -ray beam in the 1-10 MeV energy region. It is a process where the nucleus is excited resonantly by absorbing a γ ray, and then de-excites by emitting a characteristic γ ray, or by particle emission, or fissioning. NRF provides a unique fingerprint of each nucleus, but suffers from several limitations arising from low concentration of the isotope of interest and radioactivity of the fuel. The limitations can be overcome by making a self-absorption measurement [2]. A self-absorption measurement can be improved by integrating the signal over multiple resonances in the energy region of a quasi-monoenergetic γ -ray beam, termed the Integral Resonance Transmission (IRT) method. The IRT method also enables using photofission for isotope specific assay. The IRT method is similar to that used for neutron self-interrogation [3], and is being extended here to γ -rays beams.

2. Method

The self-absorption method uses the resonant absorption of photons by nuclear states as a signature of the total mass of a specific isotope. The states have widths on order of an eV, and their energy is characteristic of the isotope, such as ^{239}Pu (see Fig. 1). A state in ^{239}Pu will resonantly absorb photons,

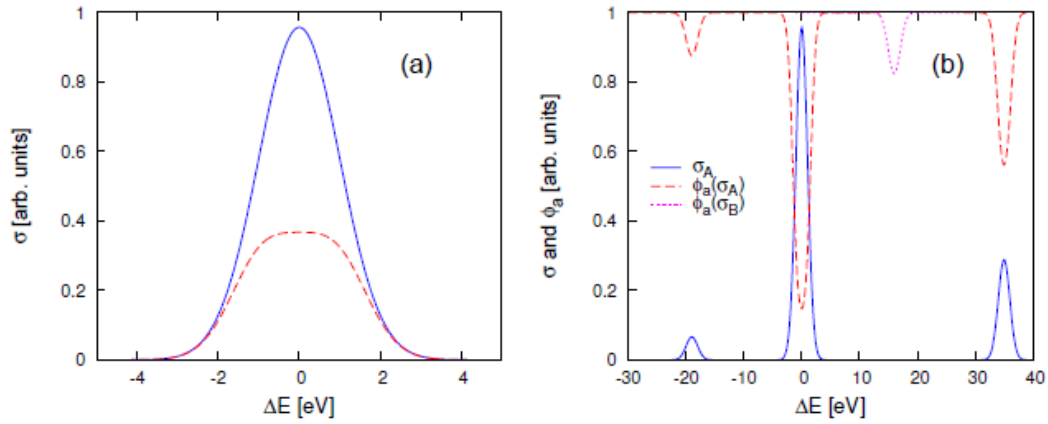


Figure 1: The absorption of a single resonance is shown in (a), as first the cross section for the resonance (σ , solid line), and the effective cross section of measurement in the scattering target after the beam has been attenuated by the resonance (dashed line). The absorption amount is directly proportional to the amount of material the beam traversed, providing a signal which can be used to assay ^{239}Pu . In (b), the energy specificity of individual resonances is retained when utilizing multiple resonances. σ_A is the cross section for scattering showing three states. $\phi_a(\sigma_A)$ is the flux attenuated by isotope A, and $\phi_a(\sigma_B)$ is the flux attenuated by isotope B. Using isotope A (for example, ^{239}Pu) in the scattering target (as shown by σ_A) makes the self-absorption measurement sensitive to only isotope A.

which can be observed by placing a target of ^{239}Pu in the beam path, and measuring the decrease in the scattering rate. The self-absorption method is insensitive to the target geometry, and chemical composition, making it well suited for assaying the melted fuel at Fukushima as it will have a complex composition, and the size and shape is likely to be ill-defined.

In a self-absorption measurement, the beam first traverses the melted fuel where states in ^{239}Pu selectively absorb γ rays (Fig. 2). The beam continues to a shielded measurement location, and intersects a mono-isotopic ^{239}Pu scattering target. The scattered radiation is measured by an appropriate detector array. The beam flux is monitored to normalize for attenuation from atomic scattering. The normalized scattering intensity decreases proportionally to increasing amounts of ^{239}Pu in the fuel.

Self-absorption measurements using a γ -ray beam can be split into three scenarios based on the measured signature: self-absorption of a discrete state, IRT using NRF, and IRT using photofission. A self-absorption measurement of a discrete state requires HPGe detectors so that the scattered radiation from the individual state is resolved.

The integral signal of IRT using NRF method uses all resonances within the energy window of the beam, including weaker states that are not resolvable with current HPGe detectors. To ensure the integral signal is the scattered radiation from nuclear resonances, and not background, the IRT method requires a quasi-monoenergetic γ -ray beam. The integral signal enables the use of cheaper scintillator detectors which are more efficient, improving the measurement time.

IRT with photofission using a quasi-monoenergetic γ -ray beam uses all photofission resonances in the energy width of the beam to assay ^{239}Pu . It effectively eliminates all γ -ray background if a detector sensitive only to the photofission signature is used. Photofission has the additional advantage that it can be used with low duty-cycle, high-flux quasi-monoenergetic γ -ray beams, such as wakefield accelerator sources [4]. The photofission neutrons are measured using a 4π composite array of neutron detectors, and/or the ^{239}Pu target may be itself in a fission chamber. Assaying ^{239}Pu by directly measuring neutrons from photofission induced in the melted fuel is not possible.

3. Calculations

Calculations for assaying ^{239}Pu using self-absorption assumed a large fragment of melted fuel the thickness of a typical BWR assembly. The melted fuel was assumed to be UO_2 with 1% ^{239}Pu by mass. The incident flux and beam profile are from the estimated performance of a next generation quasi-monoenergetic photon source, the compact energy recovery linac (cERL) [5]. Nuclear physics parameters were estimated from compiled libraries, and recent experimental results [6,7]. A measurement time of 8 hours was chosen, as was a scattering target of 1 cm thick metallic ^{239}Pu .

Calculations were done for the three scenarios (Fig. 3) [8]. Measuring discrete resonances assumed a HPGe detector array and a beam energy of 2.4 MeV, IRT using NRF assumed scintillator detectors and 2.4 MeV, IRT using photofission assumed moderated ^3He detectors and 5.6 MeV. Using a discrete resonance or photofission produced a similar uncertainty in final ^{239}Pu mass of between 2-3% in 8 hours.

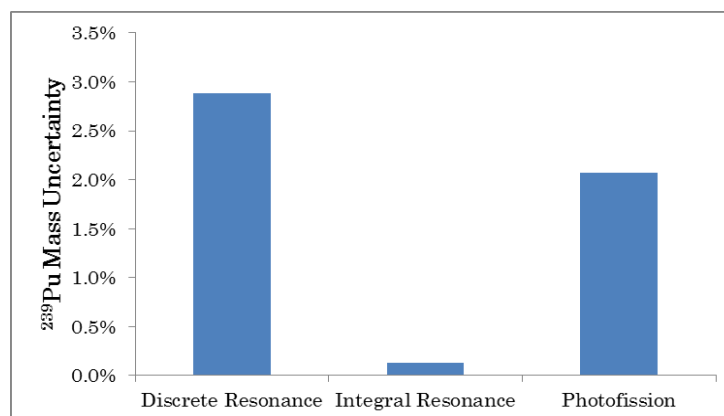


Figure 3: Uncertainty of ^{239}Pu mass in melted fuel after 8 hours of measurement, compared for three techniques. The IRT using scintillator detectors achieves the lowest uncertainty in 8 hours of about 0.1%. This corresponds to assaying the ^{239}Pu to 1% in under 10 mins.

IRT using NRF can assay the ^{239}Pu to about 0.1% in 8 hours, or 1% in less than 10 mins.

4. Conclusions

The IRT method improves assay times of ^{239}Pu in melted fuel, and overcomes problems associated with directly measuring scattered radiation from the fuel. With the IRT method using NRF it may be possible to assay ^{239}Pu in large fragments of melted fuel to 1% in under 10 min using the cERL next generation γ -ray source [5] according to calculations [8]. Photofission can be used to assay ^{239}Pu using the IRT method, and enables using future light sources which may have a high flux but low duty cycle.

References

- [1] Hayakawa, T., Kikuzawa, N., Hajima, R., Shizuma, T., Nishimori, N., Fujiwara, M., and Seya, M. Nucl. Instrum. and Meth. A621(1-3), pp. 695-700 (2010).
- [2] Quiter, B., Ludewigt, B., Mozin, V., Wilson, C., and Korbly, S. Nucl. Instrum. and Meth. B269(10), pp. 1130 - 1139 (2011).
- [3] Menlove, H. O., Tesche, C. D., Thorpe, M. M., and Walton, R. B. In Safeguards Papers from the ANS/AIF Winter Meeting, November 1968 IAEA Reprint: INDC(USA)-24/G, International Atomic Energy Agency, February (1970).
- [4] Walsh, W. J., Clarke, S. D., Pozzi, S. A., Cunningham, N., Banerjee, S., and Umstadter, D. In Proceedings of the Conference on Technologies for Homeland Security, (2009).
- [5] Hajima, R., Hayakawa, T., Kikuzawa, N., and Minehara, E. J. Nucl. Sci. Tech. 45(5), 441-451 (2008).
- [6] Bertozzi, W., Caggiano, J. A., Hensley, W. K., Johnson, M. S., Korbly, S. E., Ledoflux, R. J., McNabb, D. P., Norman, E. B., Park, W. H., and Warren, G. A. Phys. Rev. C 78(4), 041601 (2008).
- [7] Belgia, T. et al. Technical Report IAEA-TECDOC-1506, IAEA, Vienna, (2006).
- [8] Angell, C.T., Hayakawa, T, Shizuma, T., Hajima, R., In Institute of Nuclear Materials Management 53rd Annual Meeting, July (2012).

3.9 Latent Tracks in Polymeric Etched Track Detectors

Tomoya YAMAUCHI

Graduate School of Maritime Sciences, Kobe University

Track registration properties in polymeric track detectors, including Poly(allyl diglycol carbonate), Bisphenol A polycarbonate, Poly(ethylen terephtharate), and Polyimide, have been investigated by means of Fourier transform Infrared FT-IR spectrometry. Chemical criterion on the track formation threshold has been proposed, instead of the conventional physical track registration models.

Keywords: Latent Track, Etched Track Detector

1. Introduction

The Etched Track Detector is a sort of passive radiation detectors, which record the trails of energetic proton and heavy ions, depending on each track registration property [1-3]. Any dielectric materials can be an etched track detector in principal. Among them, poly(allyl diglycol carbonate) (PADC) based polymers, usually called under the trade name of CR-39, are well recognized as the most sensitive etched track detector [4], which can record proton tracks at energies around 20 MeV under the suited conditions. The CR-39 has been utilized in the laser-driven ion acceleration experiments [5-8]. By stacking the CR-39 sheets and following up the etch pit evolution during chemical etching, one can evaluate the particle energy even if it has enough energy to pass through the single sheet and achieve higher energy resolution within 100 keV [7]. The etched track detectors have many fields of application. On the other hand, our knowledge on the latent track structure in polymeric material, including CR-39, is still limited [9]. In the following, a brief review is given about recent studies by my colleagues and me on the latent track structure in PADC, Bisphenol A polycarbonate (PC), Poly(ethylen terephtharate) (PET), and Polyimide Kapton [10-13].

2. Etched track detector and physical stopping parameters

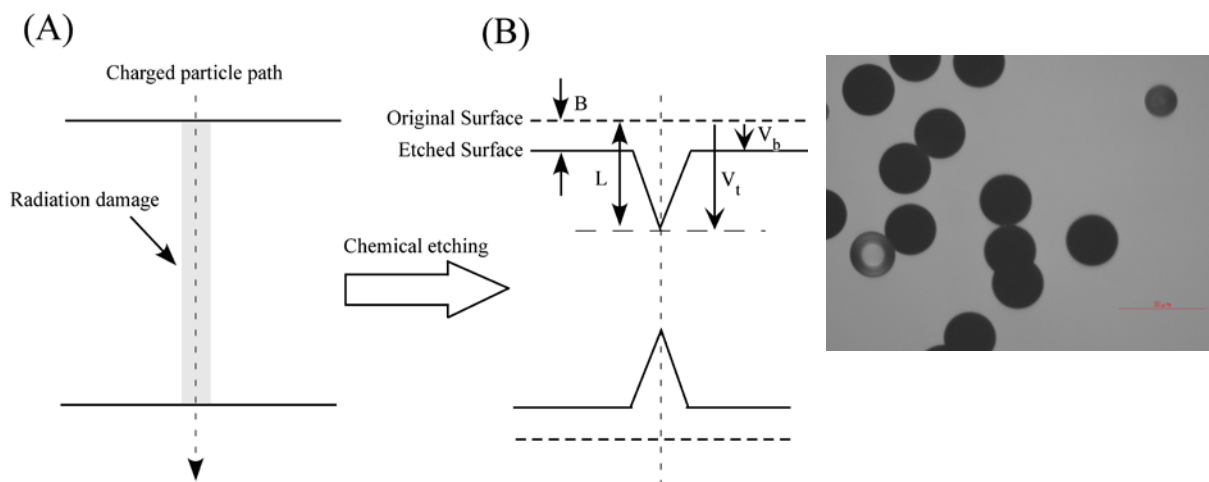


Fig.1 Etch pit formation process (A&B) and photo of etch pit (4.0 GeV Fe ions).

Figure 1 expresses etch pit formation process and typical opening mouths of etch pits of 4.0 GeV Fe ions under an optical microscope. The smaller pit in up-right side should be for a fragmented lighter ion and that in low-left side with brighter base should be for a scattered ion with lower energy. When the ion has passed through the detector, radiation damage will be remained along the trail, called latent track (A). Generally speaking, the original structure is disordered and the local density is reduced along the latent track. The structure and spatial distribution of radiation damage depend on the charge Z and speed β of the ion. When the disordered region was removed by chemical etching faster than the original region, the etch pit will be formed (B). The etch rate along the latent track is called track etch rate V_t and that at the original surface is called bulk etch rate V_b . The etch rate ratio $V = V_t/V_b$ and the reduced etch rate ratio $V - 1$ are used to express the sensitivity of the track detector. The etch rate ratio must be a function of the charge and speed of ions:

$$V = f(Z, \beta). \quad (1)$$

This relation is not so amusing from the viewpoint of radiation measurements, because one cannot identify the charge and speed of ion which had produced the etch pit.

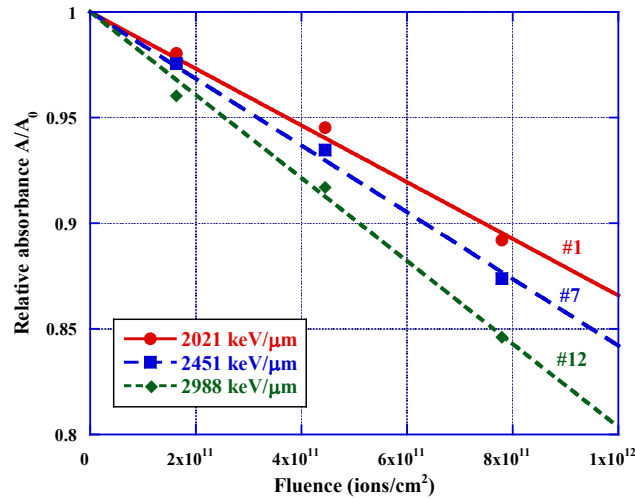


Fig.2 Reduction of the relative absorbance of C=O bond with the fluence of Si ions.

Several universal stopping parameters have been proposed and disappeared to express the response of each track detector. The stopping power is not such a universal parameter. Different ions with the identical stopping power have the different etch rate ratio from each other. The Restricted Energy Loss (REL) has been developed and utilized as the best universal parameter for polymeric etched track detectors, in which higher energy components of secondary electrons are regarded as less contributable for track formation than a certain cut-off energy ω_0 [14]. In the case of CR-39, the appropriate cut-off energy was determined as $\omega_0=200$ eV, based on the experiments under various irradiation conditions from proton to Xe ion [15]. As an experimental parameter, REL is useful and really helps CR-39 to be an excellent track detector in application fields. The ion explosion spike mechanism was proposed for the track formation in dielectric detectors, including polymeric materials, using the value of primary specific ionization (PI), which is considered as the number of ions formed per unit distance along the particle path [16]. However,

any possible values of the ionization energy of outer electron of CR-39 polymer have not been found, which will work as a single parameter to fit the value of PI on the experimentally obtained thresholds in this model. In our recent study, we found the both conventional track formation models of REL and PI failed to predict the track registration behavior in Kapton.

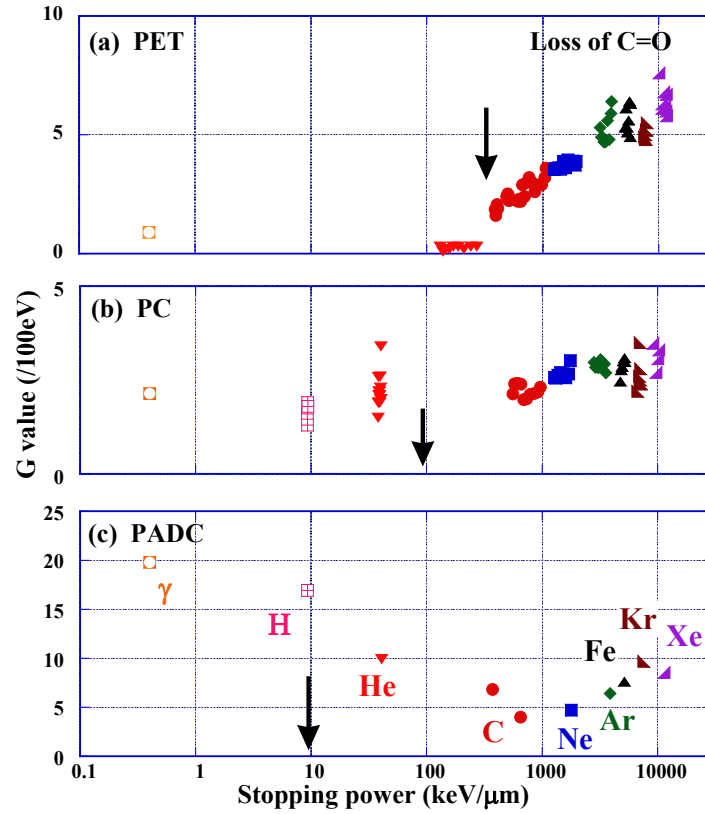


Fig.3 G values for the loss of carbonyl C=O in PET, PC and PADC as a function of the stopping power. Indicating symbols show the threshold for the etchable track formation for each polymer.

3. Chemical damage parameters and chemical criterion

My colleagues and I have been conducting the fundamental studies on the latent tracks in polymeric detectors by means of Fourier transform Infrared FT-IR spectrometry. The applicability of FT-IR was demonstrated firstly for cellulose nitrate CN, indicating significantly large radiation chemical yield, G value, for loss of glycosidic bonds at low stopping powers where CN could not record any etchable tracks [17]. This implies that we need to find the key phenomena in the latent tracks what makes it etchable.

Figure 2 shows the decreasing trend of the relative absorbance A/A_0 , which is the ratio of the net absorbance of carbonyl after the irradiation A to the original absorbance A_0 as a function of fluence of Si ions, for three films different in depths and the averaged stopping power. The upper data set corresponds to the top surface, and the middle set corresponds to the 7th film in the stacks. The lowest data set corresponds to the 12th film, presenting the result at the Bragg peak. As shown clearly here, the slope is sensitive to the stopping power. We found that the observed trends are expressed well by the following experimental formula against the ion fluence F :

$$A/A_0 = 1 - \sigma_i \cdot F, \quad (2)$$

where σ_i is an experimental constant in units of cm^2 . This constant means the removal cross section or the effective track core cross section in which carbonyl bonds were lost. In the region of fluence where the overlapping of tracks was negligible, the relative absorbance is equivalent to the survival fraction of carbonyl bonds N/N_0 , that is the ratio of density on the bond after the irradiation N , to that of original density N_0 . Similar discussions are valid for other chemical functional groups, such as the ethylene group and phenyl ring. The following evaluations are based on the value of σ_i for each combination of ion species, ion energy, considering functional group, and type of polymeric film. Based on the removal cross sections, we can attain some chemical damage parameters, like track core radius and G value.

The G value for the loss of carbonyl bonds, C=O bonds, in PET increases step-likely at the stopping power of the threshold for etch pit formation, as shown in Fig. 2(a). The corresponding track core radius was almost equivalent to the distance between two adjacent ester bonds in PET, indicating the breaking at the two adjacent C-O bonds can be resulted in the rapid increment of the G value and the etchable latent tracks. The G value in PC is independent of the stopping power, including gamma ray from Co-60 with averaged LET of $0.4 \text{ keV}/\mu\text{m}$ [12]. But we have found the step-like raise of G value for loss of methyl groups and phenyl rings that are sandwiched by two adjacent carbonate ester bonds at the stopping power corresponding to the threshold for pit formation indicating by the arrow in Fig. 3(b). The similar relation has been also confirmed between the track core size and the distance between the adjacent most radiosensitive bonds also in PADC [11]. Our resent study on Kapton also supports this view.

We are proposing a novel criterion for etchable track formation in chemical form, which insists etchable tracks will be formed when two adjacent C-O bonds were broken in tack radial direction in ether, ester, and carbonate ester in PET, PC, PADC, and PI.

References

- [1] D. A. Young, *Nature*, **182** 375 (1958).
- [2] E. C. H. Silk and R. S. Barnes, *Philos. Mag.*, **4** 970 (1959).
- [3] P. B. Price and R. M. Walker, *Phys. Lett.*, **3** 113 (1962).
- [4] B. G. Cartwright, et al., *Nucl. Instr. Meth.*, **153** 457 (1978).
- [5] Y. Fukuda, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **103** 165002 (2009).
- [6] M. Nishiuchi, et al., *Phys. Plasma*, **19** 030706 (2012).
- [7] M. Kanasaki, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **51** 056401 (2012).
- [8] K. Ogura, et al., *Opt. Lett.*, **37** 2868 (2012).
- [9] T. Yamauchi, *Radiat. Meas.*, **36** 73 (2003).
- [10] Y. Mori, et al., *Appl. Phys. Exp.*, **5** 086401 (2012).
- [11] Y. Mori, et al., *Radiat. Meas.*, **46** 1147 (2011).
- [12] T. Yamauchi, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **51** 056301 (2012).
- [13] T. Yamauchi, et al., *Radiat. Meas.*, *in press*
- [14] E. V. Benton and W. D. Nix, *Nucl. Instr. Meth.*, **67** 343 (1969).
- [15] S. Kodaira, et al., *Radiat. Meas.*, *in press*
- [16] R. L. Flischer, et al., *Phys. Rev.*, **156** 353 (1967).
- [17] R. Barillon and T. Yamauchi, *Nucl. Instr. Meth. B*, **208** 336 (2003).

4. プロシーディングス（ポスター発表）

4.1 イオンビーム細胞照射におけるピーク強度依存性の解明に関する研究

Study on Peak Intensity Dependence of Proton Beam Bio-medical Irradiation

野田 章、想田 光、頓宮 拓、中尾 政夫

京都大学 化学研究所・附属先端ビームナノ科学センター

Akira NODA, Hikaru SOUDA, Hiromu TONGU, Masao NAKAO

Institute for Chemical Research, Kyoto University

近藤 公伯、余語 覚文、織茂 聡

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門

Kiminori KONDO, Akifumi YOGO, Satoshi ORIMO

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

白井 敏之、野田 耕司

放射線医学総合研究所

Toshiyuki SHIRAI, Koji NODA

National Institute of Radiological Sciences

藤本 哲也、岩田 宗磨

加速器エンジニアリング(株)

Tetsuya FUJIMOTO, Soma IWATA

Accelerator Engineering Cop.

Based on the report about the capability of DNA double strand break by Yogo et al., we are now planning a study of peak intensity dependence on proton beam bio-medical Irradiation. Electron cooled 7 MeV proton beam from S-LSR is expected to provide $\sim 5 \times 10^5$ pps with the pulse width of ~ 4 ns (2σ) and energy spread of less than 1 %. A vertical beam irradiation port of the fast extracted beam is now under construction at S-LSR to realize an irradiation on bio-medical cells kept in a breeding liquid.

Keywords: Electron Cooling, Bio-medical Irradiation, Fast Extraction, Very Short Pulse Duration

1. はじめに

余語らによる、レーザー駆動陽子線を用いた細胞照射により報告されたヒトがん細胞の DNA 二重鎖切断 [1]は RBE が 1.1 と考えられている陽子ビームによる生物照射効果に関して大きな関心を惹起した。こうした陽子線の生物効果をより定量的に測定し、上述の DNA 二重鎖切断を可能とする条件に関して詳細な測定を可能とすることを目的として、 ~ 15 ns のパルス幅で $2.5 \pm 0.5 \times 10^4$ /ショットで照射を行っている上記 Ref.[1]の実験条件をカバーできる高周波加速器からのビームを用いた生物照射用ビームコース構築の可能性を考察した。

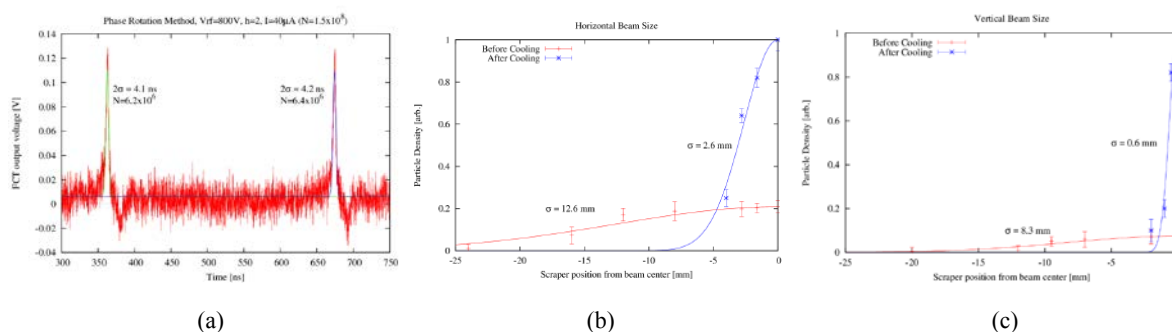


Fig. 1. Measured beam quality.

(a) Time structure of the two bunches fast extracted at the same cycle after phase rotation applied following an electron cooling, (b) and (c) are horizontal and vertical beam sizes before (red coloured) and after (blue coloured) electron cooling, respectively.

2. 電子ビーム冷却による短パルスビームの生成とその早いビーム取り出し

レーザー生成陽子ビームが、従来の陽子ビームの RBE が 1.1 という認識の枠内にとどまらず、DNA の二重鎖切断を実現した可能性として、その高いビームの尖頭値或いは照射に寄与したビームエネルギーが比較的低エネルギーであったことによると考えられている。したがって、前述のレーザー生成陽子ビームの尖頭値 1.7×10^3 個/ns をカバーできるビーム強度とパルス幅を実現でき、エネルギーの依存性も調査可能な照射用ビームラインを用いて定量的な研究を行うことが望ましい。こうした認識から我々は、すでに技術的に確立している電子ビーム冷却を 7 MeV 陽子に適用し、パルス幅の縮減を行いビーム強度の尖頭値の増大を図ることを試みた。さらに、電子ビーム冷却を行った陽子ビームを生物照射に供するためには、S-LSR リングから取り出して、照射用チェンバーに導く必要があるので、ビームを 1 ターンで取り出す速い取出しを行い、ビームコースまで導いたビーム強度とそのパルス幅から照射に供給可能なビーム尖頭値を実測した。電子ビーム冷却を行うに際して、ビーム入射を行った後、(1)コースティングビームの状態では電子ビーム冷却を行った後に位相空間内で 90 度の位相回転を行う「位相回転法」と(2)ビームを高周波電圧で Adiabatic に Capture しつつ電子ビーム冷却を適用する「バンチング法」が考えられる[2]が、ここでは実現可能なパルス幅のより短い(1)位相回転法の場合をベースに考察を行った。

実測した電子ビーム冷却後の 7MeV 陽子ビームの特性を Fig.2 に示した。(a)には 1 サイクルで取り出された 2 つのバンチ(ハーモニック数が 2 のため)の 時間構造、(b)と(c)にはスクレーパーを用いて測定[3]した水平、垂直両方向の冷却前後のビームサイズを夫々示した。パルス幅 ~ 4 ns 中に $\sim 6 \times 10^6$ 個の陽子が存在し、ビーム強度の尖頭値は 1.5×10^6 個/ns となる。Fig.2 (b), (c)のデータから電子ビーム冷却後のビームサイズは $\pm 2.6 \times 0.6$ mm² (H \times V)と実測されており、前述の Ref.[1]の照射面積 1mm²に限っても、この S-LSR から供給可能な電子ビーム冷却ビームの尖頭強度は Ref.[1]に比して充分大きな値となる。

前述のエネルギー依存性は、S-LSR への入射後の 7MeV 陽子のコースティングビームをインダクション加速器で減速後、電子ビーム冷却と速いビーム取り出しを行うことで充分対処可能である。

3. 垂直照射用跳ね上げビームラインの建設

生物細胞への照射では、培養液中に浸した細胞に垂直にビームを当てることが、生きた細胞への照射の観点からは重要なため、現在 S-LSR から取り出したビームを垂直に跳ね上げるための偏向電磁石の設置を進めている (Fig.3 参照)。

参考文献

- [1] A. Yogo et al., Appl. Phys. Lett. **94** 181502 (2009).
- [2] T. Fujimoto, et al., Nucl. Instr. Meth.in Phys. Res. A **588** pp. 330-335 (2008).
- [3] H. Souda et al., Submitted Jpn. J. Appl. Phys.

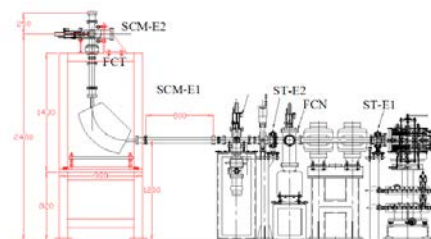


Fig.2. Layout of vertically bent beam line.

4.2 プラズマチャネルの周波数アップシフトへの影響

Effect of the Plasma Channel on Frequency Up-Shift of Intense Laser Pulses

小瀧 秀行、森 道昭、林 由紀雄、神門 正城、甲賀 James、S. V. Bulanov

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

Hideyuki KOTAKI, Michiaki MORI, Yukio HAYASHI, Masaki KANDO,

James K. KOGA, and S. V. BULANOV

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

When an intense laser pulse is focused in tenuous gas, the pulse blue-shifts by optical-field ionization and relativistically self-focuses forming a plasma channel. Since the blue-shift changes the critical power of the self-focusing, the plasma channel length can be limited. This mechanism results in the fixed amount of blueshift.

Keywords: Laser-plasma Interaction, Frequency Blueshift, Relativistic Self-focusing

1. Introduction

Laser-plasma interaction includes a lot of physics, which are quantum beam generation, laser self-focusing, frequency shift, etc. The frequency blueshift has two mechanisms, which are ionization blueshift [1-3] and photon acceleration [4,5]. The ionization blueshift occurs due to a frequency shift at the boundary between neutral gas and plasma. It occurs in an ionization front. The ionization blueshift is independent of the interaction length and the laser intensity. Photon acceleration is a frequency blueshift in a plasma wake wave. The shift depends on the interaction length, the plasma density, and the laser intensity. From experimental results, a fixed blueshift has been observed [1]. When the target gas is changed, the parameters of ionization should change. Nevertheless, the spectrum of the transmitted laser light was the same, even though, the target gases were different.

In addition, relativistic self-focusing is one of the important physics for laser-plasma interaction [6]. When the laser power is high enough, the laser pulse self-focuses. The critical power, P_{cr} , is $P_{cr} = 16.2 (\omega / \omega_p)^2$ [GW], where $\omega_p = (4\pi n_e e^2 / m_e)$ is the plasma frequency, ω_0 is the laser frequency, and n_e is the plasma density. The self-focusing is related to n_e and ω_0 . The plasma channel is produced in a balance between focusing and de-focusing.

In plasma, the laser pulse is self-focused with frequency blueshift. The plasma channel ends when the laser power becomes smaller than the critical power for the self-focusing. In this paper, the effect of the frequency blueshift of the laser pulse in the plasma channel is studied in order to elucidate the fixed blueshift and the plasma channel length limitation.

2. Experimental setup and condition

The experiments have been performed with a Ti:sapphire laser system at the Japan Atomic Energy

Agency (JAEA) - Advanced Photon Research Center (APRC) named JLITE-X [7]. The laser pulses with 200 and 133 mJ energy are focused onto a 3-mm-diameter helium gas-jet by an off-axis parabolic mirror (OAP) with the focal length of 646 mm ($f/22$). The $1/e^2$ diameter of the focal spot is 32 μm . The energy concentration within this region is 60%. The pulse width of the laser pulse, τ , is 40 fs. The estimated peak irradiances from the measurement data, I_0 , are 7.5×10^{17} and 5.0×10^{17} W/cm^2 in vacuum corresponding to a dimensionless amplitude of the driver laser fields $a_0 = 0.6$ and 0.5. Figure 1 shows the spectrum of the transmitted laser light. The spectrum shifts with the interaction length, L .

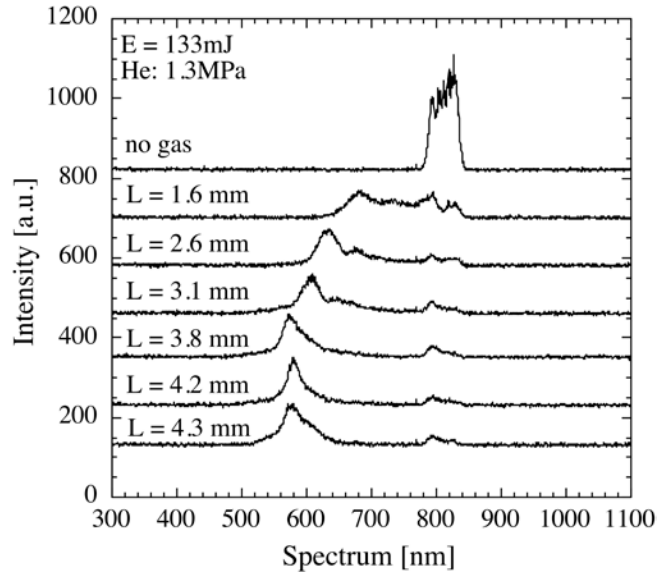


Fig.1 Spectrum of the transmitted laser light. The spectrum shift increased with increasing interaction length, L .

3. Experimental results and discussion

The frequency blueshift has two mechanisms, ionization blueshift and photon acceleration. The ionization blueshift is independent of the interaction length and the laser intensity. The photon acceleration depends on the interaction length, the plasma density, and the laser intensity. Figure 2 shows the peak value of the spectrum of the transmitted laser light. The first shift of 50 nm at $L = 0$ is the ionization blueshift. It is independent of the interaction length and the laser intensity. The spectrum shift is increasing with L . The shifts are proportional to L and depend on the laser intensity. These should be caused by the photon acceleration. The shifts are saturated when $L > 1.9$ mm. The shifts may finish due to the ending of the plasma channel.

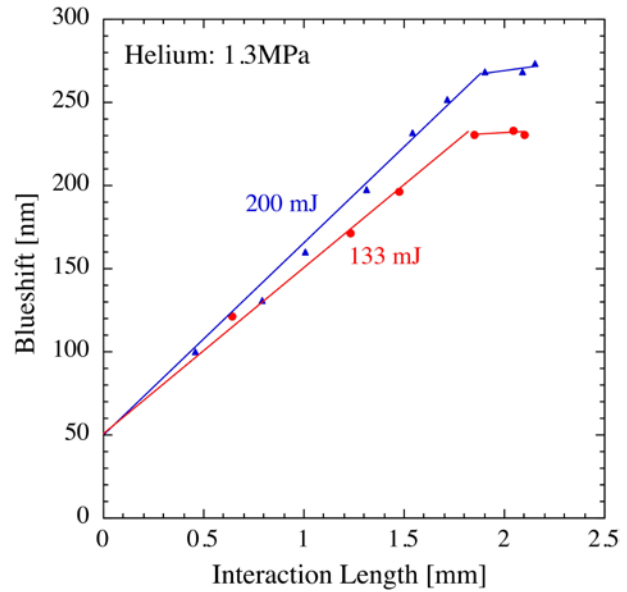


Fig.2 The peak value of the transmitted laser spectrum. The first shift of 50 nm at $L = 0$ is the ionization blueshift. The spectrum shift, which is increasing with L , is the photon acceleration.

In the interaction, the laser power decreases due to the plasma generation by the laser pulse. The laser spectrum blueshifts due to (i) ionization blueshift and (ii) photon acceleration. These effects change P_{cr} and the transmitted laser power, P . The plasma channel ends when $P < P_{cr}$ due to the end of the relativistic

self-focusing. Figure 3 shows the relationship between the transmitted laser power, P , and the critical power, P_{cr} . P_{cr} is calculated from the plasma density and the measured transmitted laser spectrum. When n_e is less than $1.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, the laser pulse has no self-focusing due to low plasma density. When n_e is between $2.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ and $4.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, the difference of P and P_{cr} is caused by the scattering of the laser pulse by gas after the plasma channel ends. When the plasma density is high enough, the plasma channel continues to the end of the gas-jet. When n_e is higher than $4.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, P is in good agreement with P_{cr} , because the plasma channel continues to the end of the gas-jet. These results show that the laser pulse in plasma is blueshifted and the plasma channel length is limited due to the spectrum shift. In addition, the blueshift stops when $P < P_{cr}$. The blueshift is also limited due to the stop of self-focusing, and the spectrum of the transmitted laser light is fixed.

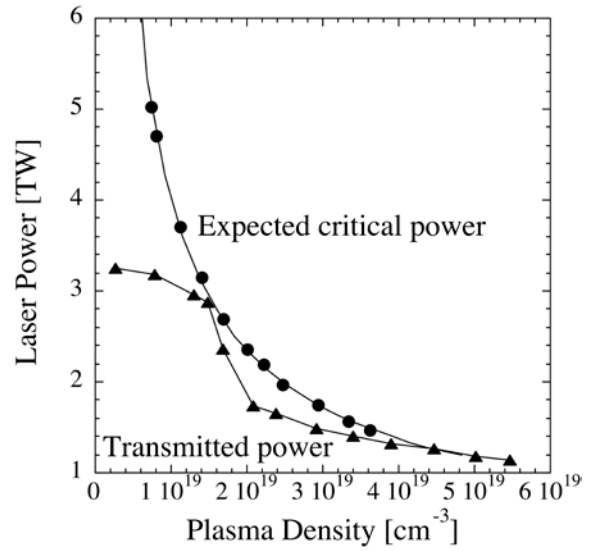


Fig.3 Relationship between the transmitted laser power, P , and the critical power, P_{cr} at 133 mJ of the laser pulse energy. P_{cr} is calculated from the plasma density and the measured transmitted laser spectrum.

4. Conclusions

We observe two types of the blueshift, (a) ionization blueshift and (b) photon acceleration. The intense laser pulse produces a plasma channel due to the self-focusing. The plasma channel corresponds to a balance between the self-focusing and defocusing. In the channel, the laser power decreases and the frequency is blueshifting. When $P < P_{cr}$, the balance is broken and the plasma channel disappears. The end of self-focusing limits the length of the plasma channel and fixes the spectrum of the transmitted laser light.

References

- [1] J. K. Koga, et al., Phys. Plasmas **7** 5223 (2000).
- [2] J. K. Koga, J. Opt. Soc. Am. **26** 930 (2009).
- [3] R. L. Savage, et al., Phys. Rev. Lett. **68** 946 (1992).
- [4] S. C. Wilks, et al., Phys. Rev. Lett. **62** 2600 (1989).
- [5] C. D. Murphy, et al., Phys. Plasmas **13** 033108 (2006).
- [6] G. Z. Sun, et al., Phys. Fluids **30** 526 (1987).
- [7] M. Mori, et al., Laser Phys. **16** 1092 (2006).

4.3 テラワットレーザー励起により金属箔ターゲットの後方に

放射された高強度 THz 波放射

High-power Terahertz Radiation from the Back of Metal Foil Target

菜嶋 茂喜

大阪市立大学大学院 工学研究科

Shigeki NASHIMA

Department of Applied Physics, Graduate School, Osaka City University

We observed intense terahertz (THz) waves from the back of Ti foil target excited by tabletop terawatt laser system. Experimental results demonstrated that radiation efficiency was drastically increased with laser power and its polarization characteristics of THz waves from the back of Ti foil target was parallel to the incident plane.

Keywords: Terawatt Laser, Terahertz (THz) Radiation, Laser Plasma

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、放射角度特性や偏光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 波を調べてきた。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、励起光反射角方向の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 0° ($\theta = 90^\circ$) および $\pm 15^\circ$ ($\theta =$

$90 \pm 15^\circ$) とにして, $\phi = 225^\circ$, および, 270° の方向で行った. 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, 励起光の透過方向における入射面方向および入射面から ± 15 度方向の THz 波放射強度の励起光強度依存性の結果である. 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(a)より, 励起光強度に対して検出された THz 波強度が急激に増加する傾向を示している. 図(b)は, THz 波の偏光特性の結果である. 図中の角度 0 度の信号強度が最も大きく, 角度の増加と共に余弦関数的に減少し, 90 度になるとほぼ 0 に達することから, 検出された THz 波の偏光は, レーザー入射面に平行な偏光成分であることがわかる. これらの結果は, $\theta = 90 \pm 15^\circ$ のときや, $\phi = 270^\circ$ のときにも同じ傾向の実験結果が得られている.

4. まとめ

本研究では, 是迄と同じ実験条件下でターゲット裏面方向の THz 波の放射特性を調べた. その結果, 金属ターゲット裏面からも高強度な THz 波信号を検出することができ, 励起光強度に対し指数関数的な増加を示すことがわかった. また, その偏光特性は $\phi = 225^\circ$, および, 270° において, 入射面および $\pm 15^\circ$ の方向においていずれも入射面に平行な直線偏光であることを示し, 励起光反射角方向の偏光特性とは異なっていることがわかった.

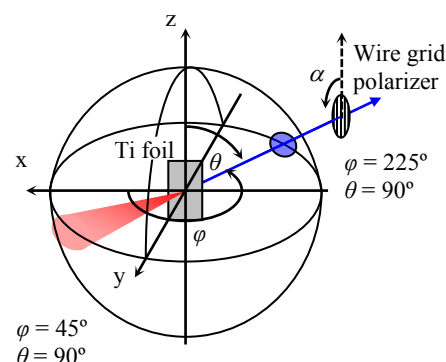


Fig. 1. Schematic diagram of experimental set-up used for THz generation and detection.

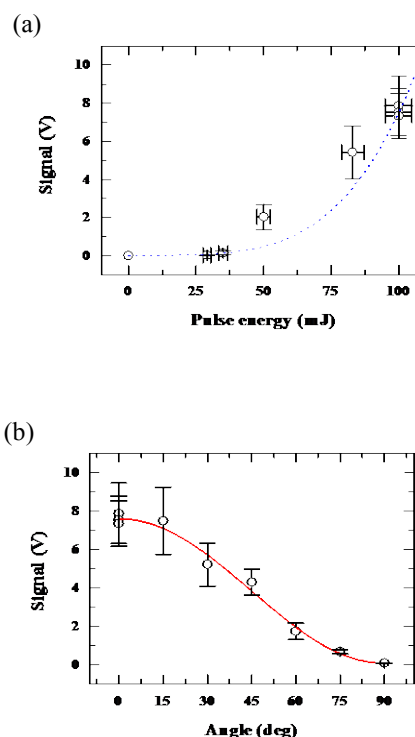


Fig. 2. (a) Radiation power characteristics vs laser pulse energy. Dashed lines show curve fittings as a function of power of a number for laser pulse energy. (b) The open circles represent detected THz signals obtained by rotating the wire grid in front of the detector clockwise in the radial direction. The solid line represent the sinusoidal curve fittings.

参考文献

- [1]. H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, Phys. Rev. Lett. **71** pp. 2725-2728 (1993).
- [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. Marcellis, M. A. Carnahan, R. A. Kaindle, J. Byrd, and M. C. Martin, Phys. Rev. Lett. **91** pp. 74802-74804 (2003).
- [3]. T. Löffler, F. Jacob, and H. G. Roskos, Appl. Phys. Lett. **77** pp. 453-455 (2000).
- [4]. D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, Opt. Lett. **25** pp. 1210-1212 (2000)
- [5]. M. van Exter, Ch. Fattinger and D. Grischkowsky, Opt. Lett. **14** pp. 1128-1130 (1989).
- [6]. B. B. Hu and M. C. Nuss, Opt. Lett. **20** pp. 1716-1718 (1995).
- [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-Conf 2008-007 pp. 81-84 (2008).
- [8]. S. Nashima, K. Shimizu, M. Hosoda, H. Murakami, S. Orimo, K. Ogura, M. Mori, A. Sagisaka, and H. Daido, 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-Conf 2007-001 pp. 129-132 (2007).

4.4 レーザー航跡場加速のためのスプラッシュプラズマチャネル Splash Plasma Channels for Wave Guided Laser Wakefield Acceleration

水田 好雄¹, 細貝 知直^{2,3}, 益田 伸一^{2,3}, Alexei Zhidkov^{2,3}, 牧戸 啓悟¹, 中新 信彦^{2,3},
梶野 祥平¹, 西田 明憲¹, 神門 正城⁴, 森 道昭⁴, 小瀧 秀行⁴, 林 由紀夫⁴,
S. V. Bulanov⁴, 兒玉 了祐^{1,2,3}

¹大阪大学工学研究科,

²大阪大学光科学センター,

³独立行政法人科学技術振興機構 (JST, CREST),

⁴独立行政法人日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所,

⁵大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

Yoshio Mizuta¹, Tomonao Hosokai^{2,3}, Shinichi Masuda^{2,3}, Alexei Zhidkov^{2,3}, Keigo Makito¹,
Nobuhiko Nakanii^{2,3}, Shohei Kajino¹, Akinori Nishida¹, Masaki Kando⁴, Michiaki Mori⁴,
Hideyuki Kotaki⁴, Yukio Hayashi⁴, S. V. Bulanov⁴ and Ryosuke Kodama^{1,2,3}

¹Graduate School of Engineering, Osaka University, ²Photon Pioneers Center, Osaka University,

³Japan Science and Technology Agency (JST), CREST, ⁴Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency, ⁵Institute of Laser Engineering, Osaka University

The use of plasma channels in the laser wakefield acceleration(LWFA) provide a controllable self-injection that results in production of higher quality electron bunches. We have demonstrated generation of quasi-monoenergetic, hundreds MeV electron beams with excellent emittance and stability by channel guided laser wake field acceleration. However, the parameters of the channels could not been characterized. In this study, short-lived, ~ 10 ps, deep plasma channels(splash plasma channels), with their lengths of several hundred micrometers and diameters of $\sim 20 \mu\text{m}$, are observed and characterized in argon gas jets irradiated by moderate intensity, $\sim 10^{15-16} \text{ W/cm}^2$, laser pulses with duration from sub-picosecond to several picoseconds.

Keywords: Laser Wakefield Acceleration, Plasma Channel, Wave Guide

1. はじめに

我々は、高い指向性をもつ単色の高エネルギー電子ビームをレーザー航跡場加速により安定に生成するためプラズママイクロオプティクス(TPMO: Transient Plasma Micro Optics)を用いることを提案している[1]。TPMO とはプリフォームドプラズマを利用した集光・光導波デバイスである。生成された長尺のプラズマチャネルを含む TPMO を用いることで長い加速距離が得られその結果、位相回転が起り電子ビームの単色化が期待できる。また、高エネルギー化も同時に期待できる。TPMO の研究において我々は、パルス幅がピコ秒・サブピコ秒、適度な強度($10^{15} \sim 10^{16} \text{ W/cm}^2$)のレーザーパルス照射により生成される長尺($\sim 1 \text{ mm}$)かつ深い(最高密度/最低密度 ~ 50)プラズマチャネルの形成を実証している[2]。本稿ではこの長尺プラズマチャネル形成過程について報告する。

2. 実験セットアップ

Fig.1 にプラズマチャネル形成実験のセットアップを示す。実験には原子力研究開発機構関西光科学研究所の JLITE-X [3,4] (10 TW, 中心波長: $\lambda = 815$ nm) CPA チタンサファイアレーザーシステムを使用した。本研究では 1.2mm の長さを持つ超音速ヘリウムおよび Ar スリットガスジェット(Smartshell Co.Ltd)を用いた。ノズル出口より高さ 1.5mm, スリットノズルのフロントエッジから 100 μm 下流の場所にレーザーを集光した。集光には軸外し方物面鏡($f=178\text{mm}$, $F/5.9$)を用いる。レーザーのビーム径は 16 $\mu\text{m}(1/e^2)$ で最大強度は $3.5 \times 10^{16} \text{W}/\text{cm}^2$ である。レーザーシステムのパルスコンプレッサー内にある回折格子対の距離を調節することでパルス幅を 300fs \sim 6ps に変化させ実験する。また、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でナノ秒レンジのレーザープレパルスの大きさを制御する[4]。メインパルスとプレパルスの典型的なコントラスト比は $\sim 1:10^6$ である。プラズマ密度を計測するため干渉計を使用する。プローブビームはメインパルスの 2 倍波(中心波長 $\lambda_p \doteq 400$)を用い、光学遅延(メインパルス到達より 10ps 後まで 1ps 刻み)を与えることでプラズマオプティクスが形成される過程を観察する。

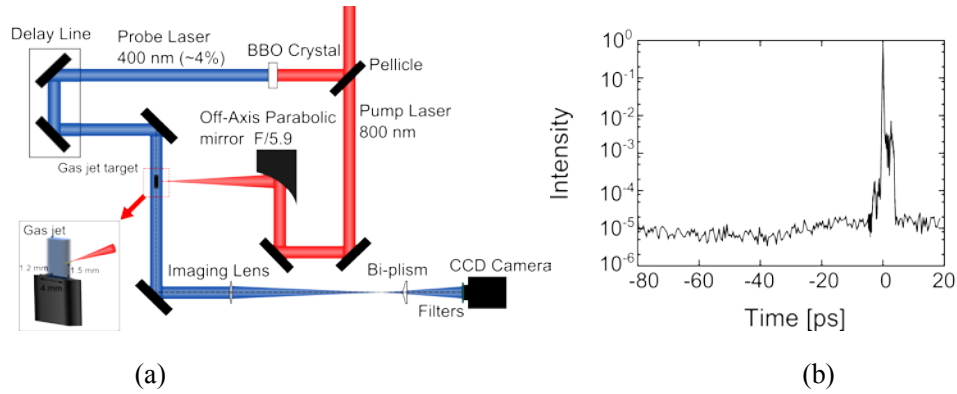


Fig.1 Experimental setup:

(a)An outline of the experimental setup, (b) Third-order autocorrelation trace of the driving laser

3. 実験結果(長尺プラズマチャネル形成)

Fig.2 に実験で得られたプラズマチャネル形成の様子を示す。

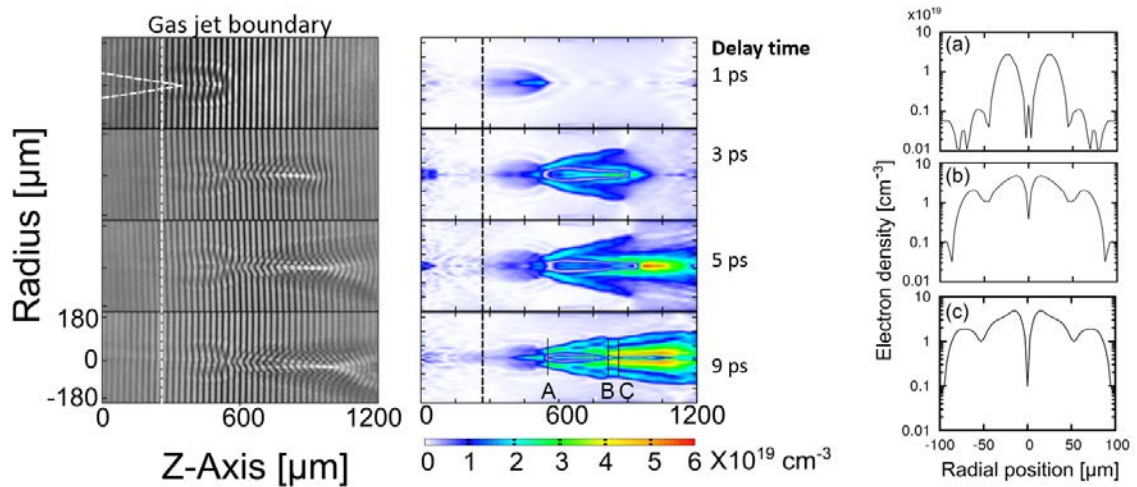


Fig. 2 Plasma channel for the laser power $P=0.3$ TW
(the pulse energy 90 mJ and pulse duration 0.3 ps)

レーザーは図の右から左に向かって進行する。レーザーのパルス幅は 300 fs である。左図がプラズマの干渉計測象で右は干渉計像を解析した結果得られたプラズマの密度分布である。それぞれレーザーが標的に照射されプラズマが生成され始めてから 1 ps, 3 ps, 5 ps, 9 ps 後の像である。なお、図中の点線はガスと真空の境界である。図よりボール状のプラズマができて (1 ps) からレーザーが通り過ぎるまでにレーザー軸方向にプラズマチャンネルが時間とともに成長していく様子を見ることができる。チャンネル径 13 μm であり、レーザーの集光径より小さい。また、チャンネルの長さは 600 μm である。これは、本実験でのレーザーのレーリー長 (186 μm) の 3.2 倍である。Fig.2 右のグラフはチャンネルの径方向のプロファイルを表しており、(a) ~ (c) はそれぞれ 9 ps での密度分布における A, B, C に対応している。Fig.2 のプラズマチャンネル (9 ps) において最大密度は $4.9 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ であり最低密度は $1.0 \times 10^{19} \text{ W/cm}^2$ である。これより、形成されたプラズマチャンネルの密度差は最大で約 50 倍にも達するということが分かる。

スプラッシュプラズマチャンネル形成メカニズムの考察

実験より得られたプラズマチャンネルがどのように形成されたかを考察する。

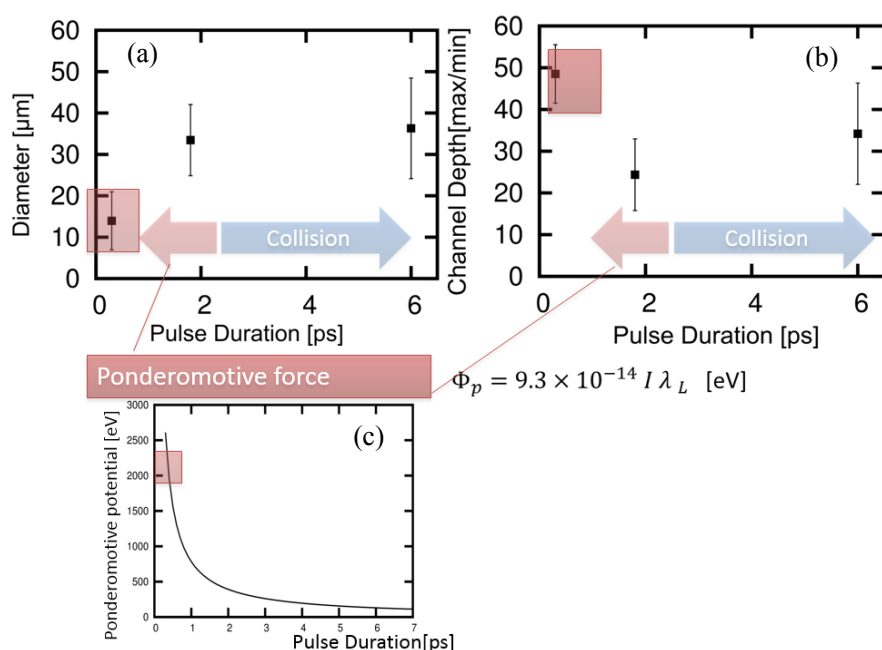


Fig.3 Plasma channel parameters

(a) Channel diameter (b) Channel depth (max/min plasma density) (c) ponderomotive potential

Fig.3 (a), (b) はそれぞれ実験で得られたチャンネル径とパルス幅の関係、それぞれのパルス幅におけるチャンネルの深さ (最高密度/最低密度) を表している。(c) は各パルス幅におけるポンデロモーティブポテンシャル ($\Phi_p = e^2 E^2 / 4m\omega$, ただし e : 電子の電荷, E : レーザーの電場強度, m : 電子質量, ω : レーザー周波数である。) である。レーザーのパルス幅が長い場合 (パルス幅: 1.8 ps, 6 ps) レーザーのポンデロモーティブ力は弱く ($\Phi_p \sim 500 \text{ eV}$) チャンネル形成には衝突電離によるナノ秒オーダーのイオン化が主に寄与すると考えられる。本実験で計測されたようなピコ秒オーダーで形成されるチャンネルのメカニズムを説明することはできない。一方、パルス幅が短い場合 ($< 0.3 \text{ ps}$) はポンデロモーティブ力が急激に増加し ($\Phi_p > 2 \text{ keV}$) 電子はレーザーの軸上から排除される。ポンデロモーティブ力により排除された電子がイオンを引きよせながら動くことでレーザー軸上にプラズマ密度の薄い部分が数ピコ秒のタイムスケールで形成され、

実験で得られたような深くて長いチャンネルができると考えられる。このようにポンデロモータイブ力が支配的に働き、形成される深いプラズマチャンネルを我々は”スプラッシュプラズマチャンネル”と名付た。

4. まとめと将来の計画

パルス幅がピコ秒・サブピコ秒の適度な強度(10^{15} – 10^{16} W/cm²)をもつレーザーをガスジェット標的に集光し、ピコ秒の時間分解能をもつ干渉計測により、形成されるプラズマチャンネルの密度分布を計測した。実験では、パルス幅が 300 fs の時に形成されるチャンネルの長さが 600 μ m、密度の高低差が約 50 倍にも達するという結果が得られた。我々は、この生成時間の短い(>10 ps)プラズマチャンネルをそのポンデロモータイブ力によりプラズマ中の電子を弾き飛ばしていく生成機構の様子から、スプラッシュプラズマチャンネルと命名した。このような深くて長く、かつ制御性の高いプラズマチャンネルはチャンネルガイドレーザー航跡場加速において重要なツールである。現在、スプラッシュチャンネルを利用したレーザー航跡場加速実験を行うための 2 ビームレーザーシステム(1つのレーザーを用いてスプラッシュチャンネルを生成し、もう一方のレーザーを電子加速に用いる。)を大阪大学光科学センターに構築し実験の準備を開始している。

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] Y. Mizuta, T. Hosokai, S. Masuda, A. Zhidkov, K. Makito, N. Nakanii, S. Kajino, A. Nishida, M. Kando, M. Mori, H. Kotaki, Y. Hayashi, S. V. Bulanov, R. Kodama, Phys. Rev. ST Accel. Beams **15**, 121301 (2012)
- [3] M.Mori,A.Pirozhkov,M.Nishiuchi,K.Ogura,A.Sagisaka,Y.Hayashi,S.Orimo,A.Fukumi,Z.Li,M.Kando,a nd H.Daido Phys. Rev. Lett . **97**,075004(2006)
- [4] M.Mori, et al IEEE TRANSACTIONS ON PLASMA SCIENCE, VOL. 36, NO.4 AUGUST (2008)

4.5 レーザー航跡場加速における電子ビーム制御に関する研究

Steering of Electron Beams from Laser Wakefield Acceleration via Transient Plasma Micro-Optics

中原 弘貴¹, 細貝 知直^{2,3}, 益田 伸一^{2,3}, 中新 信彦^{2,3}, 水田 好雄¹, 梶野 祥平¹, 牧戸 啓悟¹,

A. Zhidkov^{2,3}, 神門 正城⁴, S. V. Bulanov⁴, 兒玉 了祐^{1,2,5}

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独立行政法人 科学技術振興機構 (CREST),

⁴独立行政法人 日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所

⁵大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

H. Nakahara¹, T. Hosokai^{2,3}, S. Masuda^{2,3}, N. Nakanii^{2,3}, Y. Mizuta¹, S. Kajino¹, K. Makito¹,

A. Zhidkov^{2,3}, M. Kando⁴, S. V. Bulanov⁴ and R. Kodama^{1,2,5}

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 (JAEA),

⁵ Institute of Laser Engineering, Osaka University

Laser Wakefield Acceleration(LWFA) has a potential for generating high charge, low emittance, ultra-short electron bunch. Until recently well-collimated electron beams are successfully generated with excellent stability due to the control of the drive laser pulses by Transient Plasma Micro-Optics(TPMO). However, the electron beam has thermal energy spread because electrons are generated by wave breaking process. We plan to improve the energy spread of the beams with phase rotation in further Laser wakefield. In this staged acceleration scheme, the electrons must be injected into the correct phase-space of further stage. We steer the electron beam direction for controlling of injection position by the TPMO produced in external static magnetic field.

Keywords: Laser Wakefield Acceleration (LWFA), Transient Plasma Micro-Optics (TPMO)

1. はじめに

レーザー航跡場加速は、プラズマ波を利用した加速器であり、従来の高周波加速器に比べ、1000倍以上の高い加速勾配を持つことから次世代の小型加速器として注目されている。我々は、レーザー航跡場を構成するプラズマ波を構成する電子に着目し、レーザー航跡場加速を電子源に応用した研究を行っている。ここでは、レーザー航跡場加速を利用した電子源開発における電子ビームの方向制御に関する研究成果を述べる。

2. プラズマ波破碎による電子ビームの発生

高強度レーザーによって励起されたプラズマ波の中には、大量の電子が含まれている。そのため、プラズマ波から電子を取り出すことが出来れば、大電荷の電子ビームを得ることができる。プラズマ波から電子を取り出す方法はいくつか存在するが、最も簡単なものとしてプラズマ波の破碎を利用したものがある。

プラズマ波には破碎限界が存在し、破碎限界を超えたプラズマ波は破碎される。このとき、プラズマ波を構成していた電子の一部が飛び出す。こうして破碎し、飛び出した電子は大電荷で、バンチ幅がプラズマ波長程度という特徴を持っており、高品質な電子ビームとして期待できる。

プラズマ波は、プラズマ中に急峻な密度勾配が存在すると、密度境界で効率的に破碎される。そこで、我々は外部磁場によるプレプラズマ制御により、プラズマ中に急峻な密度勾配を作り、波破碎を起こしている。外部磁場を集光点付近に印加することで、プレプラズマが Fig. 1 のように変化する。その結果、集光点付近で波破碎が効率的に起こり、Fig. 2 のような高い指向性で再現性の良い電子ビームを得ることができる[1,2]。

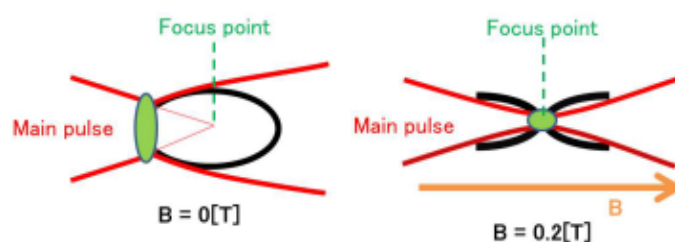


Fig.1 Change of the pre-plasma by the existence of external magnetic field

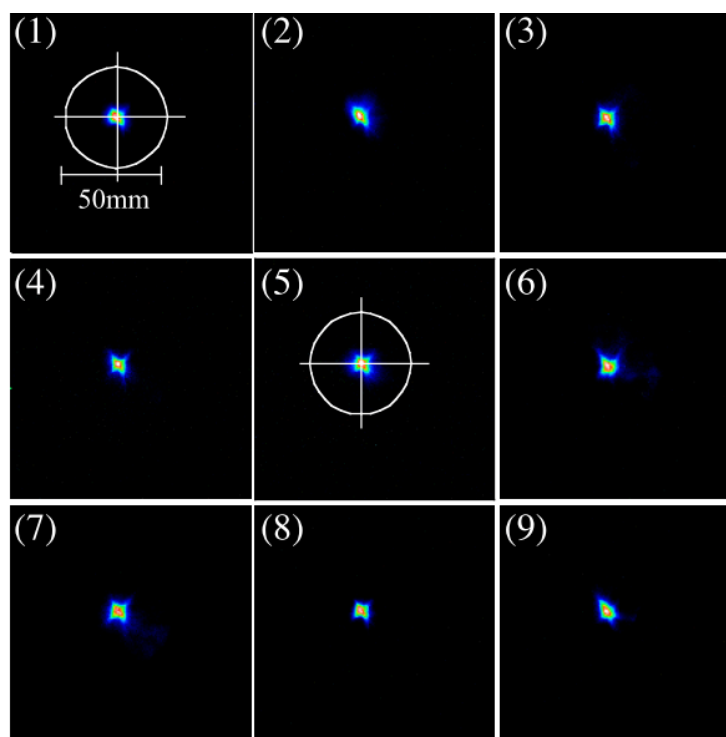


Fig.2 Electron beam profile and repeatability[1]

3. プレプラズマ制御による電子ビーム方向制御実験

上述した波破碎によって発生する電子ビームは、大電荷、極短バンチ、低エミッタンスであるが、エネルギー幅が大きく広がっているという問題がある。このエネルギー幅を改善するために、我々は多段加速による位相回転を提案している。多段加速を行うためには、前段の航跡場から発生する電子ビームを後

段の航跡場の適切な位相に正確に入射する必要がある。そこで、我々は、後段の航跡場への入射制御として、波破碎で発生する電子ビームの方向制御を試みた。その実験セットアップを Fig. 3 に示す。レーザーの集光点付近に 0.2T の外部磁場を印加し、その磁場の方向を変化させたときの電子ビームの発生方向を調べた。その結果を Fig.4 に示す。この結果より、波破碎によって発生する電子ビームは外部磁場と同じ方向に発生することを確認した。

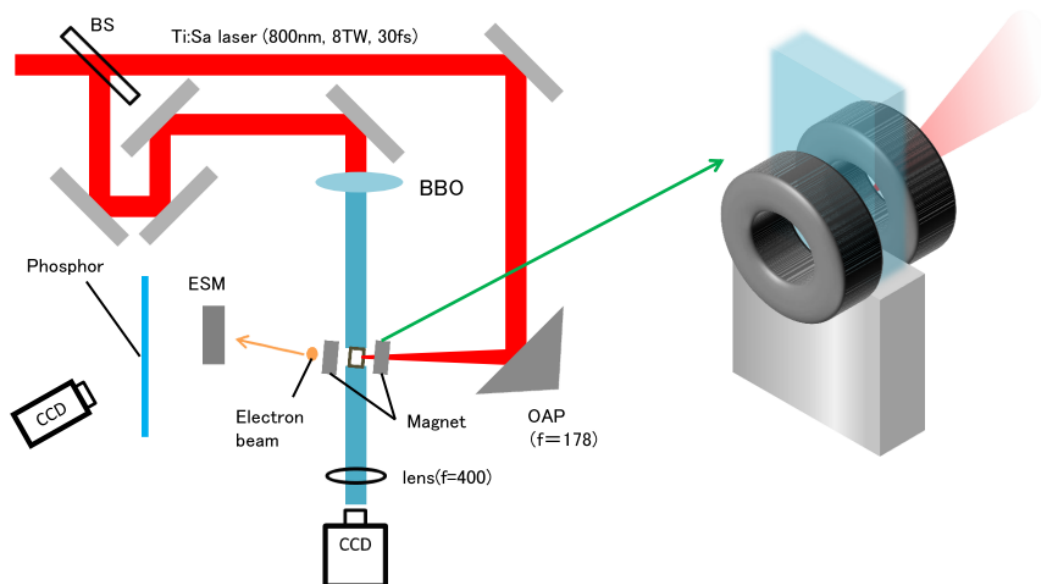


Fig.3 Experimental setup

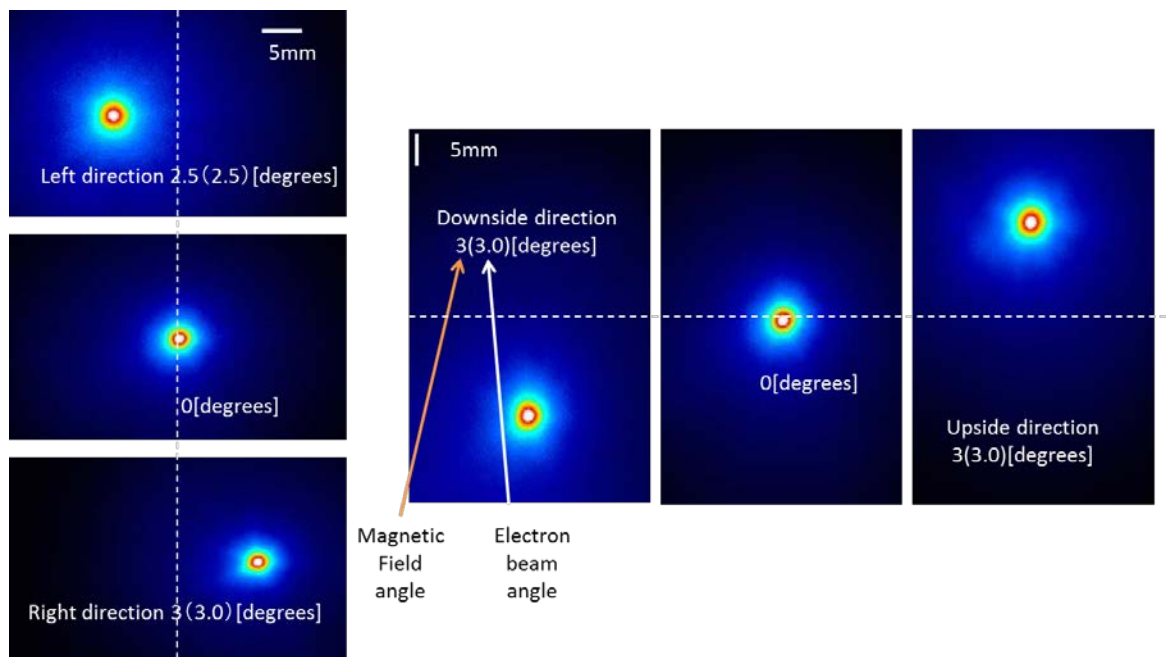


Fig.4 Electron beam profile

4. まとめ

今回、多段加速に向けた研究の一環として、波破碎によって発生する電子ビームの方向制御を行った。その結果、電子ビームは印加した外部磁場と同じ方向に発生することを確認した。方向制御された電子ビームは高い位置安定性と再現性を示し、加えて、電子ビームのエネルギースペクトル、電荷量、ビームエミッタンスは伝播方向に依存せず、ビームパラメータを変化させることなく方向を制御することができた。この結果より、プラズママイクロオプティクスを用いて発生させる電子ビームは、多段レーザー航跡場加速の入射器に適していることが示された。

参考文献

- [1] T.Hosokai et al. , Phys. Rev. Lett. **97**, 075004 (2006)
- [2] T.Hosokai et al. , Appl. Phys. Lett. **96**, 121501 (2010)

4.6 Quantitative $K\alpha$ Line Spectroscopy for Energy Transport in Ultra-intense Laser Plasma Interaction

Z. Zhang¹, H. Nishimura¹, T. Namimoto¹, S. Fujioka¹, Y. Arikawa¹, M. Nakai¹, T. Ozaki², M. Koga¹, H. Chen³, J. Park³, G. J. Williams³, H. Shiraga¹, S. Kojima¹, M. Nishikino⁴, T. Kawachi⁴, A. Sagisaka⁴, H. Hosoda¹, S. Orimo⁴, K. Ogura⁴, A. Pirozhkov⁴, A. Yogo⁴, Y. Okano⁵, H. Kiriya⁴, K. Kondo⁴, S. Ohshima^{1,6} and H. Azechi¹

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

2. National Institute for Fusion Science, LHD, High Temperature Plasma G. 322-6 Oroshi Toki, Gifu 509-5292, Japan

3. Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, California 94550, USA

4. Quantum Beam Science Directorate, Kansai Photon Science Institute, JAEA, Kyoto 619-0215, Japan

5. Laser Research Center for Molecular Science, Institute for Molecular Science, National Institute of Natural Science 38 Nishigo-Naka, Myodaiji, Okazaki 444-8585, Japan

6. Pioneering Research Unit for Next Generation, Kyoto University, Uji 611-0011, Japan
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Absolute $K\alpha$ line spectroscopy is proposed to study laser-plasma interactions taking place in the Au cone-guided fast ignition targets. A transmission-type Laue spectrometer was developed for this purpose. X-ray spectra ranging from 20 to 100 keV were quantitatively measured with a Laue spectrometer composed of a cylindrically curved crystal and a filter-absorption method for Bremsstrahlung continuum emission. Applying the hot electron spectrum information from electron spectrometer or scaling laws, energy transfer efficiency of incident LFEX, a kJ-class PW laser, to hot electrons was derived.

Keywords: X-ray Spectroscopy, Laser Plasma Interaction, Hard x-ray, Fast Ignition

1. Introduction

Fast ignition is recognized as a promising pathway to efficient thermonuclear fusion in laser-driven inertial confinement fusion. A cone-guided CD-shell has been used as a base-line target for the fast ignition experiment [1]. It has long been expected to provide more quantitative information about the hot electron generation and transport in the cone than those derived only with x-ray imaging and neutron detection. In this research, we propose an absolute $K\alpha$ line spectroscopy dedicated for quantitative measurement of hot electron generation and transport in the high-Z target. This diagnostic provides local information about the hot electrons propagating through specific materials composing the cone-guided target.

In this study, Au and Ta were chosen as tracer since they are representative highest-Z materials which are available for the guide cone, thus better matching with MeV-hot electrons than lower-Z tracers such as Cu.

2. The Laue spectrometer

A Laue spectrometer was developed to cover high energy range from Mo ($K\alpha_1$: 17.48 keV, $K\alpha_2$: 17.37 keV) to Au ($K\alpha_1$: 68.80 keV, $K\alpha_2$: 66.99 keV) $K\alpha$ lines. As shown in Fig. 1, the spectrometer consists of a cylindrically curved Quartz (10-11) and detectors. The detector can either be an imaging plate (IP) from Fuji film or a charge coupled device (CCD) with a fiber-optic plate coated with a CsI phosphor of 100 μm in thickness. The Quartz plate is bent with a radius of 170 mm in such that the diffracted x-rays are focused once at the intermediate slit. X-ray components propagating in a straightforward manner are prohibited irradiating the detector directly with a lead pinhole plate located in front of the crystal and a pair of lead shields located at the intermediate x-ray focus. To avoid influence of hard x-rays from plasma on output signal, whole body of the spectrometer and the detector are covered with lead shields. This Cauchois geometry effectively discriminates 0th order component, stray x-rays and fluorescence from spectrometer components such as filters. By varying the distances from the crystal to the source and detector, this spectrometer can cover the energy range of either 10-60 keV (Type-I set) or 30-100 keV (Type-II set) (see Fig. 1 for details).

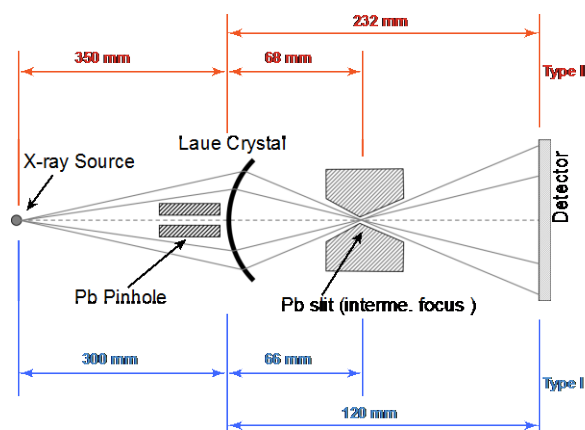


Fig.1 The basic setup of Laue spectrometer

Absolute sensitivity for the Type-I set was measured [2] at J-KAREN laser system at Japan Atomic Energy Agency, Kansai Photon Science Institute [3]. This system delivers a laser pulse of 800 nm in wavelength, 1.8 J in energy and 58 fs in duration. The pulse contrast ratio was typically 10–11. An $f/2.67$ gold-coated off-axis parabolic mirror was used to focus a p-polarized laser beam at an incident angle of 22.5° relative to the target normal. 100- μm -thick Mo and Ag planar targets were mounted on a motorized translation stage. The laser focal spot size was varied with translating the target along the laser beam to change laser irradiance intensity while keep the energy consistent. The absolute yield of $K\alpha$ x-rays was measured with a pre-calibrated back-illuminated x-ray CCD operated in a single-photon counting mode. The calibration for the Type-II was taken out with radioisotopes. The line emission at 59 keV from ^{241}Am (370 kBq), and 77 keV from ^{226}Ra (3.7 MBq) were used.

Diffraction efficiency for the Quartz crystal was derived with XOP code assuming the Takagi-Taupin model. Figure 2 shows the comparison result. The solid line represents the product of calculated diffraction efficiency and spectral sensitivity of CsI. Absolute sensitivities calibrated with laser produced

K α lines and that for a radioisotope are respectively shown with triangles and a circle.

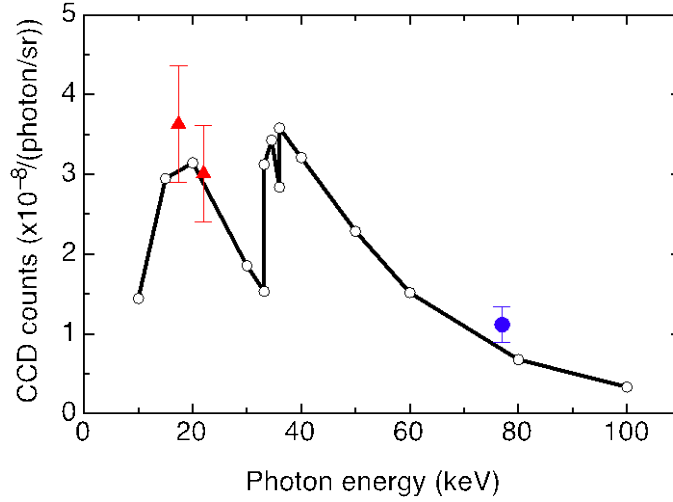


Fig.2 Overall sensitivity of Laue spectrometer system with CsI/CCD detector. The solid line represents a product of spectral sensitivities for the crystal and CsI/CCD. Experimental data points are also plotted for comparison.

3. K α line measurement and transfer efficiency estimation from fast ignition plasma

The absolute yield of Au K α line was measured in the fast ignition experimental campaign by using Gekko XII and LFEX lasers at Institute of Laser Engineering, Osaka University [4]. There were three kinds of targets measured: Au planar plate, Au-cone with CD shell, and Au-cone with CD hemi-shell attached with a Ta plate.

The transfer efficiency estimation was based on the model of K α yield from hot electrons:

$$\eta_{K\alpha} = \frac{\eta_{TE} n_A \omega_{K\alpha} E_{K\alpha}}{4\pi T_h} \int_0^\infty dE \sigma_K(E) \times \int_0^d dx f_h(E_0, x) \exp\left(-\frac{x}{\lambda_{mfp} \cos(\theta)}\right)$$

where $\sigma_{K\alpha}$, $\omega_{K\alpha}$, and n_A are, respectively, the cross section for K-shell ionization, the K α fluorescence yield, and the atomic number density. The term $\exp(-x/(\lambda_{mfp} \cos(\theta)))$ describes the re-absorption of K α photons during the propagation through the target material where θ is the angle between the spectrometer and target normal. f_h is the hot electron energy distribution function which can be measured by electron spectrometer (ESM) or inferred from scaling laws.

Figure 3 shows a typical Au K α and K β spectra obtained by the Laue spectrometer. The 1st order diffraction lines were observed symmetrically on both sides, and the bright spot on the center is the 0th order pinhole image.

In the case of Au planar plate, the η_{TE} was measured as a function of laser intensity, while for the Au-cone guided targets, there was 1 data for each kind. The η_{TE} s are summarized and plotted in Fig. 4. As a general trend, the η_{TE} is increased with laser intensity and a significant enhancement is achieved by applying the guiding cone.

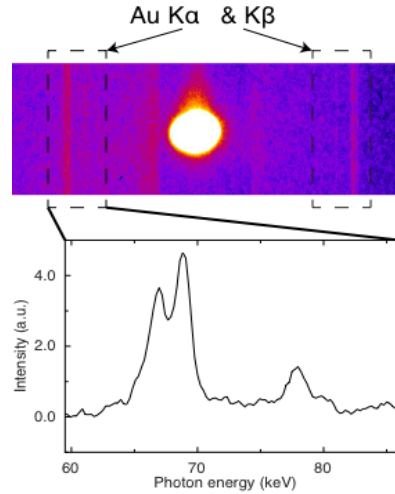


Fig.3 The Au $K\alpha$ and $K\beta$ lines from the Laue spectrometer.

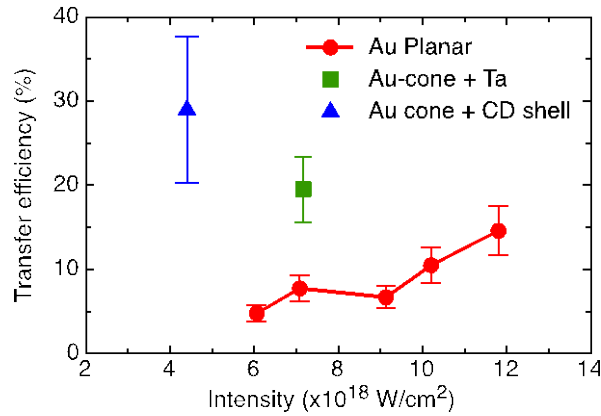


Fig.4 The η_{TE} as a function of the laser intensity for three kinds of targets.

4. Conclusion

$K\alpha$ line spectroscopy, particularly for hard-x-ray region, has been proposed for quantitative measurement of cone-guided fast ignition targets. The Au and Ta $K\alpha$ line from the Au-cone guided target was observed and energy transfer efficiency was provided as a preliminary study. Compared with the planar geometry, the LFEX laser transfer efficiency is significantly enhanced with a Au-cone. In near future, absolute measurement of hard x-ray continuum will be made together with that of the $K\alpha$ line to improve accuracy of energy transfer measurements in the cone-guided fast ignition targets. Furthermore, detailed analysis with a hybrid modeling, namely combination of particle-in-cell (PIC) code and hydrodynamic code, will be made for $K\alpha$ yield to improve understanding of hot electron generation, transport and deposition in the cone-guided target.

参考文献

- [1] R. Kodama, et al., Nature, 412 pp. 798–802 (2001)
- [2] Z. Zhang, et al., Opt. Exp., **19** pp. 4560–4565 (2011)
- [3] H. Kiriya, et al., Opt. Lett., 35 pp. 1497–1499 (2010)
- [4] H. Shiraga, et al., Plasma Phys. Controlled Fusion **53** 124029 (2011)

4.7 クーロン爆発と RPDA を効果的に用いたレーザーイオン加速

Efficient Proton Acceleration using Coulomb Explosion and RPDA of a Target

守田 利昌、Sergei V. BULANOV、James KOGA

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

Toshimasa MORITA, Sergei V. BULANOV, James KOGA

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Ion acceleration by irradiating a hundred TW laser pulse on a foil target is examined using three-dimensional particle-in-cell simulations. We show higher energy protons can be obtained by using a “light” material for the target. Since a strong inhomogeneous expansion of the target occurs due to its Coulomb explosion, and movement of the target occurs by RPDA. These lead to a time-varying electric potential which efficiently accelerates protons.

Keywords: Ion Acceleration, Laser Plasma Interaction, Particle-in-cell Simulation

1. はじめに

レーザーイオン加速において、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はなく、その実応用には、より高エネルギーなプロトンの生成が必要とされている。より高エネルギーなプロトンを生成するには、単純には、より強いレーザーを用いることで可能である。しかし、例えば医療応用に必要とされている 200MeV 程度のプロトンを、単純に強い強度のレーザーを照射することで生成するには、現在利用可能なレーザーの強度は、まだ低い状況である。そこで、ある強度のレーザーで、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。シミュレーションには、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。本研究で目標とするのは、極力低い出力のレーザー ($P < 500\text{TW}$) で、高エネルギー ($E \approx 200\text{MeV}$) かつ、高品質 ($\Delta E/E_{\text{ave}} < 5\%$) なプロトンビーム生成の方法を示すことである。本報告では、 m/q の値が小さな物質を“軽い物質”、大きな物質を“重い物質”と呼ぶ。それは、ある電場 E において、 m/q が粒子の運動の抵抗を表すからである。ここで、 m はイオンの質量、 q は電荷である。

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 $\lambda = 0.8\mu\text{m}$ 、スポット径は半値幅で 4λ 、パルス幅は 10λ 、強度は $5 \times 10^{21}\text{W/cm}^2$ である。このとき、レーザー出力=620TW、エネルギー=18J となる。ターゲットには double-layer target を用いた [1,2]。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。3章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/cm³ である。シミュレーション領域は、 $L_x \times L_y \times L_z = 120\lambda \times 36.5\lambda \times 36.5\lambda$ であり、用いたグリッド

数は、 $3300 \times 1024 \times 1024$ である。用いた粒子の総数は 8×10^7 個である。レーザーパルスは、垂直入射としている。

3. Target 素材と生成プロトンのエネルギー

ここでは、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示す[3]。Fig.1 は first layer が炭素の場合の結果を示している。レーザーパルスは、内部の状態を示すために、 $z > 0$ の部分を取り除いて表示している。初期時刻 ($t=0$)においては円盤状であった first layer が時刻 $t=100 \times 2\pi/\omega$ においては、クーロン爆発により、広い空間領域に分布しているのが分かる。Fig.2 に $t=100 \times 2\pi/\omega$ における炭素のケースと金のケースのイオンとプロトンの分布図を示す。 z 軸方向から見た状態を示すことで2次元的に表示している。ここで、プロトンは、そのエネルギー値で色分けされている。プロトンの平均エネルギー (\mathcal{E}_{ave}) は、炭素のケースでは 63.4MeV、金のケースで 38.3MeV である。クーロン爆発により、炭素イオンは金イオンに比べ広い領域に分布しており、膨張した炭素イオンの表面はプロトンの近傍に達している。さらに、RPDA により、炭素のケースでは炭素イオン全体が+x 方向に動いていることが分かる。これらの効果により、炭素のケースでは高エネルギーのプロトンが生成されることとなる。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 倍になっている。

Fig.3 に、様々な素材を first layer に用いた場合の生成プロトンのエネルギーを示す。横軸は Z_i/A 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 が金のケースとの比で示している。Fig.3 は、 Z_i/A が大きい物質ほど、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. 200MeV プロトンの生成

ここでは、200MeV プロトンビーム生成の検討を行なった結果を示す。前章で“軽い物質”を first layer に用いた方が高エネルギーのプロトンが得られることを示した。最も“軽い物質”は水素である。そこで、first layer に水素を採用することとする。First layer が水素であるので、second layer に厚みの薄い水素の層を配置した double-layer target としても、second layer の水素はほとんど意味を持たない。そこで、ここでの検討では、水素だけの層からなる単純な disk target とした。Target の電子密度は、 9×10^{22} 個/cm³ である。水素ターゲットはクーロン爆発により大きな領域に分布することとなるので、 y と z 方向の計算領域を2章よりも大きく取った。シミュレーション領域は、 $L_x \times L_y \times L_z = 113\lambda \times 67.5\lambda \times 67.5\lambda$ であり、用いたグ

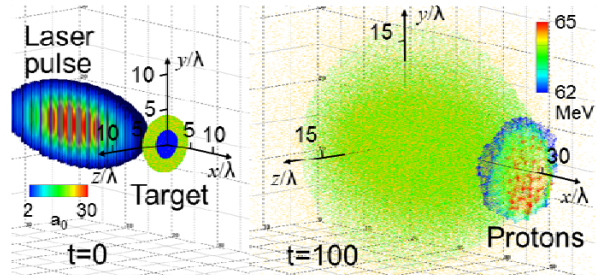


Fig.1 The initial shape of the target and the laser pulse ($t=0$). The expansion of the first layer and the proton acceleration in the carbon case ($t=100$).

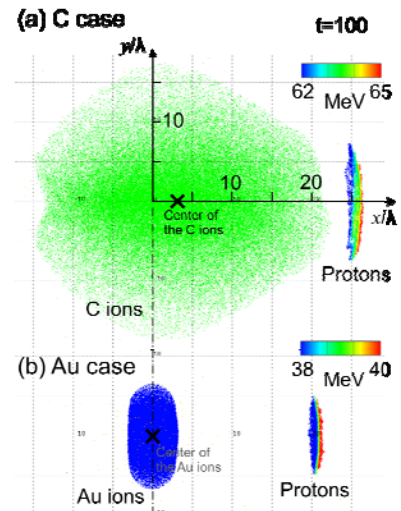


Fig.2 Distribution of the ions of the first layer and protons in the carbon cases (a) and the gold cases (b).

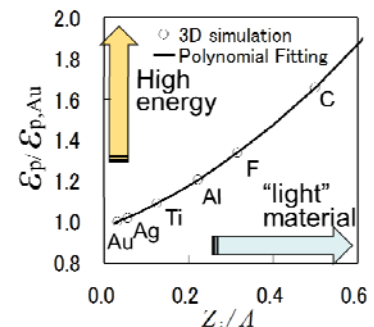


Fig.3 The average proton energy normalized by the energy in the gold case.

リッド数は、 $5000 \times 3000 \times 3000$ である。用いた粒子の総数は 4×10^8 個である。その他のデータは2章と同じである。

Fig.4 は時刻別のプロトンと電場の様子を示している。電場の表示では、内部の状態を示すために、 $z > 0$

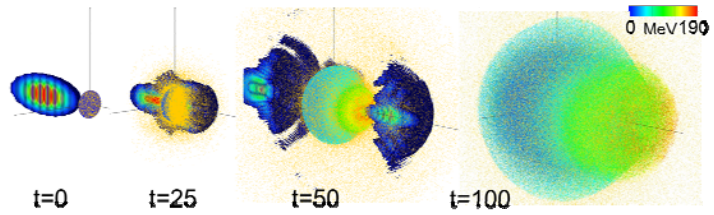


Fig.4 The initial shape of the target and the laser pulse ($t=0$). Distributions of protons and electric fields ($t=25, 50, 100$).

の部分を取り除いている。Target がクーロン爆発により、広い空間領域に分布しているのが分かる。Fig.5 に z 軸方向から見た $t=100 \times 2\pi/\omega$ におけるプロトンの分布図を示す。プロトンは、そのエネルギー値で色分けされている。プロトンは、エネルギー値の違いで異なる空間位置に分布していることが分かる。また、高エネルギープロトンは $+x$ 側の端に分布しており、かつ $+x$ 方向へ移動している。よって、シャッターの付いたピンホールで高エネルギープロトンだけを取り出すことが可能である。図に切り出した位置が示されている。時間的精度や遮蔽能力から、シャッターの実現が困難な場合は、磁石を設置し、その磁場によりプロトンの軌道をエネルギー値毎に変え、スリットを通過させることで同様の高エネルギー部分の取り出しが可能である。Fig.6 に、この切り出されたプロトンビームのエネルギースペクトル図を示す。最大エネルギー $\mathcal{E}_{\max}=200\text{MeV}$ 、平均エネルギー $\mathcal{E}_{\text{ave}}=193\text{MeV}$ 、エネルギー広がり $\Delta\mathcal{E}/\mathcal{E}_{\text{ave}}=2.3\%$ のプロトンビームが得られている。生成プロトンの個数 $=2.6 \times 10^7$ 個であり、実应用到に十分な値となっている。

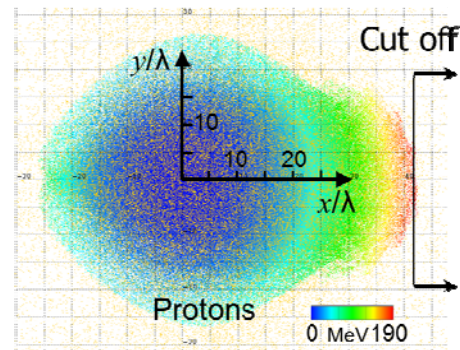


Fig.5 Distributions of protons at $t=100$ and the selected area of the proton bunch.

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 に用いることで、より高エネルギーのプロトンが得られることが分かった。それは、クーロン爆発による first layer の膨張と、RPDA による first layer の運動により、プロトンに強い加速電場を与えるからであることを示した。そして、最も“軽い物質”である水素の target を用い、生成されたプロトンを空間的に切り出すことにより、実应用到に必要な条件を満たす高エネルギーで高品質なプロトンビームが得られることを示した。

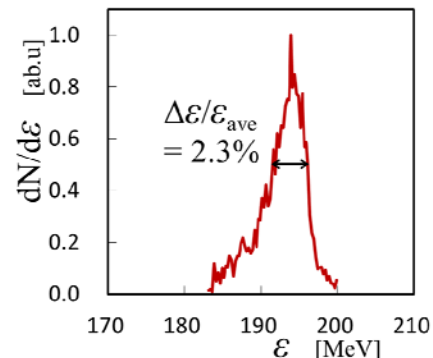


Fig.6 The proton energy spectrum at $t=100$.

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, S. V. Bulanov, T. Zh. Esirkepov, J. Koga, M. Kando, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 024501 (2012).

4.8 プラズマと放電の不均一性のパーコレーションモデル

Percolation Model of the Non-uniformity of Plasma and Discharge

佐々木 明

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

Akira SASAKI

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Non-uniformity of the plasma and discharge, which has an impact on the performance of light sources, is investigated. The complex spatial temporal behavior of the discharge is shown to be reproduced using the percolation model, from the initial pre-discharge activity to the growth of the stepped leader.

Keywords: Plasma, Discharge, Structure Formation, Simulation, Percolation

1. はじめに

EUV 光源や X 線レーザーの媒質プラズマ中では、しばしば不均一性が生じて、それが特性に与える影響が問題になっている。これらの光源の励起にも用いられる、高圧気体中の放電は、しばしば遠回りや枝分かれを持つ複雑な経路を通して突然発生することが知られている。放電の原子分子素過程はすでに詳しく調べられているが、原子レベルの電離や励起過程が、どのようにしてマクロな構造形成に発展するかは必ずしも明らかではない。本研究では、統計手法の一つであるパーコレーションモデルと、それに空間の静電容量や電離、再結合のダイナミクス取り入れて拡張したモデルによって、放電の特性の解析を行なった結果を報告する。

2. モデル

パーコレーションモデルとは、「系の性質を決める中心的な役割をするもののつながりが系全体に広がっているかどうか、系の特徴を決める」と考えるモデルである[1]。気体放電が起こる際、媒質中の電流が流れている場所は導体の状態にあると考えられる。すると、放電は、気体中に、プラズマ化し、導体になった領域が生成し、それが互いにつながることによって生じると考えられる。このようなモデルによる放電のシミュレーションでは、媒質の状態を考えるために、セルで領域を分割し、セル毎に媒質が確率的に中性気体(絶縁体)であるか、プラズマ(導体)のいずれかと考える。セルからメッシュを構成することが出来、メッシュに対する回路方程式を立てて解くことで、放電電流および電界の分布が求められる。

このようなパーコレーションモデルによるシミュレーションは、放電が遠回りや枝分かれを持つ複雑な経路を通して突然発生する性質を再現するが[2]、今回、放電の時空間の構造形成をより詳しく解析するために、プラズマの電気抵抗とともに、空間の静電容量を考慮し、抵抗と静電容量が直列に接続されたものを回路の要素とし、これがメッシュを構成するとした。そして、該当する媒質の領域がプラズマ化した場合に、静電容量が短絡されると考えた。このモデルでは、電界の分布は、電極間がプラズマ化した領域で接続するまでは静電容量により、接続されてからは抵抗値により分圧されることによって決まり、回路方程式を解くことで、Laplace 方程式を解く場合と同等に、電界分布を求めることができる。

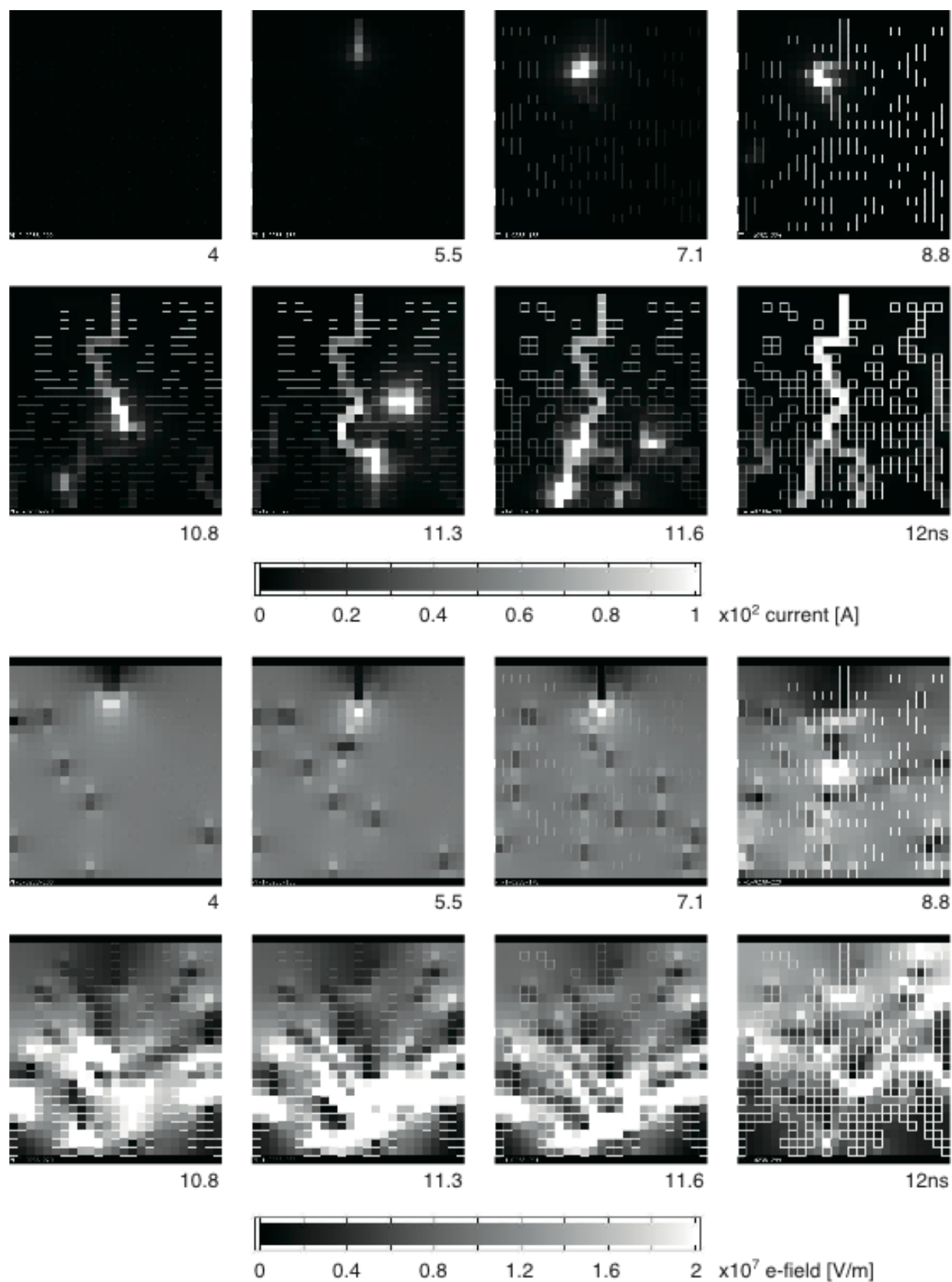


Fig. 1 Calculated temporal and spatial evolution of discharge current (upper pictures) and electric field (lower pictures) for a discharge between needle and plane electrode, showing initial partial discharge activity near the needle electrode, and subsequent growth of the stepped leader.

一方、放電媒質中では、プラズマ化した領域が、電離による生成と、再結合、拡散、ドリフトなどによる消滅を繰り返していると考えられる。今回のモデルでは、これらの効果を、中性気体の状態のセルが計算のタイムステップ毎に確率的に電離するとともに、プラズマ化した領域も確率的に再結合して中性気体の状態に戻るとして取り入れた。そして、電離、再結合の確率を、各場所の電界、電流の値で重み付けすることにより、ストリーマの先端の成長の効果や、宇宙線等の、高エネルギーの粒子によってランダムに電離が起こる効果を考慮するようにした。

3. 結果と議論

計算は、実験室における針-平板電極の放電を模した条件で行なった[3]。Fig.1 は電流と電界の分布の時間発展を示し、図中で 8.8ns のタイムラグの間、針電極の周辺で、短い局所的なストリーマの間歇的な発生が続いた後、ステップドリーダーの進展が起り、速やかに短絡に至る様子を示す。針電極、ストリーマの先端では電界が強まり、電離が促進される。ステップドリーダーの進展が始まると、それに従ってさらに電界が強まるため、進展は加速される。

Fig.2(a)に、放電電流の時間発展を示す。タイムラグのあと急激に電流が増加するが、初期から局所的なストリーマの生成にともなって、パルス状の電流が生じる実験の傾向が再現されている。この電流は、媒質の各所で電離、再結合が起こることによって、空間の静電容量が充放電されるために生じる。

Fig.2(b)は電離のレートに対するブレイクダウン時間の変化を示す。確率を用いた計算の結果は毎回異なるが、多数回の計算から傾向を求めることができる。電離のレートは、印加電界に対応すると考えられ、これがある一定値以下ではブレイクダウンが起こらなくなることを示し、実験で観測されるブレイクダウンの閾値特性や、その近傍でブレイクダウン時間がばらつく傾向が再現されることを示す。

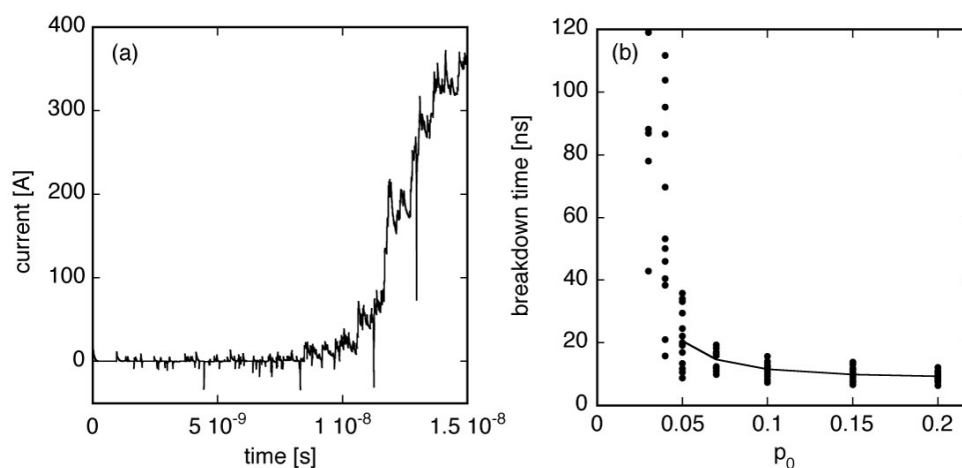


Fig.2 An example of temporal development of discharge current showing breakdown near 12ns (a), and the breakdown time as a function of ionization rate shown by the equilibrium population of ionized region in the discharge medium showing its threshold behavior (b).

参考文献

- [1] 「パーコレーションの科学」小田垣孝、裳華房、(1993).
- [2] A. Sasaki, Y. Kishimoto, E. Takahashi, S. Kato, T. Fujii and S. Kanazawa, “Percolation simulation of laser-guided electrical discharges”, Phys. Rev. Lett., **105**, 075004 (2010).
- [3] M. Seeger, L. Niemeyer and M. Bujotzek, J. Phys. **D41**, 185204 (2008).

4.9 軟X線レーザーパルス照射によって形成される表面構造の観察

Observations of Surface Modifications Induced by Soft X-ray Laser Pulse Irradiations

石野 雅彦,¹ Anatoly Faenov,^{1,2} 田中 桃子,¹ 保 智己,³ 長谷川 登,¹ 錦野 将元,¹

Tatiana Pikuz,^{1,2} 海堀 岳史,¹ 河内 哲哉¹

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 ロシア科学アカデミー 高温合同研究所

³ 奈良女子大学 大学院人間文化研究科

Masahiko ISHINO,¹ Anatoly FAENOV,^{1,2} Momoko TANAKA,¹ Satoshi TAMOTSU,³

Noboru HASEGAWA,¹ Masaharu NISHIKINO,¹ Tatiana PIKUZ,^{1,2} Takeshi KAIHORI,¹

Tetsuya KAWACHI¹

¹ Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

² Joint Institute for High Temperatures, Russian Academy of Sciences

³ Division of Natural Sciences, Faculty, Nara Women's University

To study the interactions between picosecond soft x-ray laser (SXRL) beams and material surfaces, aluminum (Al), gold (Au), copper (Cu), and silicon (Si) surfaces were irradiated with SXRL pulses. Following irradiation, the surfaces of the substrates were observed using a scanning electron microscope and an atomic force microscope. The surface modifications caused by the SXRL beam were clearly seen. With single pulse irradiation, the ablation holes and the conical structures were formed on the Al surface, and the ripple-like structures were formed on the Au and Cu surfaces. On the Si surface, deep holes that seemed to be melted structures induced by the accumulation of multiple pulses of irradiations were found. Therefore, it was concluded that SXRL beam irradiation of various material surfaces causes different types of surface modifications, and the changes in the surface behaviors are attributed to the differences in the elemental properties, such as the attenuation length of x-ray photons.

Keywords: Soft X-ray Laser, Multiple Pulse Exposures, Nanomodification, Nanostructuring

1. Introduction

The development of new techniques for producing nanostructures is important in the fields of nanoscience and nanotechnology. Optical lasers having picosecond and femtosecond durations have been shown to be effective tools for producing nanostructures via deposition from the plume of ablated materials. Additional advantages for surface modification are expected with an irradiation using a soft x-ray laser (SXRL) beam, and we studied the ablation property of LiF crystal experimentally and theoretically [1, 2]. Our experiments revealed that the value of ablation threshold obtained with the focused SXRL beam pulse was much smaller than those obtained with other lasers having longer pulse durations and/or longer wavelengths. In addition, we found that the conical structures were formed on Al surface by an irradiation of a low fluence of the SXRL pulse [3]. Hence, we are interested in investigating

the interactions between the SXRL beam and materials, particularly with respect to the surface modifications induced by the relatively low fluence pulses. Herein, we report a systematic experimental study of the surface modifications resulting from the interactions of both single and multiple SXRL pulses in order to confirm the development of the modified structures.

2. Experiment

To study the interactions between the SXRL beam and material surfaces, we irradiated the focused SXRL pulses to aluminum (Al), gold (Au), copper (Cu), and silicon (Si) surfaces [4]. The SXRL beam irradiation experiment was carried out by use of the SXRL facility at Japan Atomic Energy Agency. The SXRL beam pulse, which had a wavelength of 13.9 nm, a duration of 7 ps, and an average output energy of about 200 nJ, was focused on the sample surface by using a Mo/Si multilayer coated spherical mirror. Zr filter was placed in front of the spherical mirror in order to reduce the scattered optical radiation from the plasma mediums. After the irradiation, the surfaces were observed by use of a visible microscope, a scanning electron microscope (SEM), and an atomic force microscope (AFM). The details of experiment process were described in the previous paper [3, 4].

3. Results and discussion

Figures 1(a)–1(c) show the SEM images of the irradiated Al, Au, and Cu surfaces after a single pulse of irradiations using the SXRL beam. Figure 1(d) shows a SEM image of the modified structure on the Si surface induced by the accumulation of 10 shots of the SXRL beam, because at the position where only a single radiation pulse was used, no structures were detected.

In Fig. 1(a), it can be confirmed that the conical structures are formed around the ablated holes as observed previous experiment. On the Au surface, as shown in Fig. 1(b), no ablated holes are present and only ripple-like shallow structures can be seen. On the Cu surface shown in Fig. 1(c), ablated holes similar to those seen on the Al surface are present. The modified area of the Au surface was essentially smaller than those of the Al and Cu cases. It was estimated that the SXRL fluences in these areas were 20, 12 and 14 mJ/cm², respectively. The ablated portions in the modified structures on the Al and Cu surfaces correspond to SXRL fluences of 24 mJ/cm² and 30 mJ/cm², respectively. These values are nearly the same

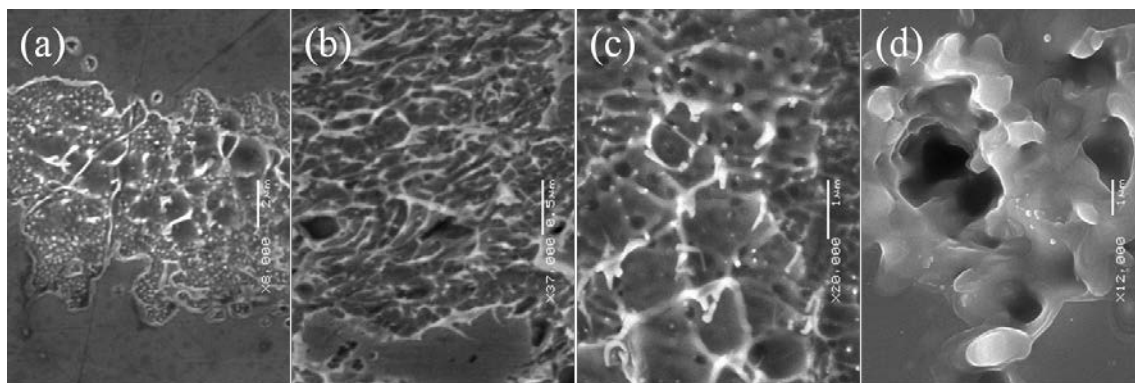


Figure 1 SEM images of the modified structures on (a) Al, (b) Au, (c) Cu, and (d) Si surfaces induced by the SXRL beam irradiations.

as those for the nanostructuring region on the Au surface. It is important to stress that these measurements demonstrate that two different regimes for surface modification were observed. Nanometer-scale in depth surface modification (not ablation) resulting from irradiation with the picosecond SXRL pulse appeared under fluences of about 12, 20, and 14 mJ/cm² for the Al, Au, and Cu targets, respectively. More deep modification of the surface has higher thresholds of ~24 mJ/cm² for Al and ~30 mJ/cm² for Cu.

On Si surface as shown in Fig. 1(d), the observed structures in the present study appear to be molten structures. It can be seen that the structure observed on the Si surface is different from those for the Au, Cu, and Al targets. Based on profile measurement by AFM, the depth of the holes was determined to be greater than 600 nm, which is according to the attenuation length of the SXRL beam for Si is quite large (590 nm). Unfortunately, the Zr filter was not inserted in the SXRL beam axis for the Si experiment, and thus, not only the SXRL beam but also a portion of the rays from the plasma mediums, such as visible and infrared light, were included in the beam pulses. The influence of the visible and infrared light from the plasmas on the surface modification could not be determined. Therefore, this issue must be considered when discussing the results for the Si target in this study.

It was concluded that the irradiation of SXRL beam to various materials causes different types of surface modifications, and the variation of surface behaviors can be attributed to the differences in the elemental properties, such as the melting points and/or the attenuation lengths for the SXRL beam.

4. Conclusion

We irradiated Al, Au, Cu, and Si targets with single and multiple pulses of an SXRL beam, and observed the modified structures formed on the irradiated surfaces. The results obtained in this study will be important not only for the pursuit of surface modification processes but also for the development of applications of the SXRL beam. Furthermore, the obtained results may become a good benchmark for experiments using x-ray FEL in the near future. Finally, many gaps in the understanding of ablation (or damage) mechanisms induced by short pulse lasers remain. The present results may provide ideas for the construction of theoretical models that might address these gaps.

Acknowledgments

This work was partly supported by Grant-in-Aid for Scientific Research (B) from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science, and Technology, Japan. Part of the work was supported by the Russian Foundation for Basic Research and by the Russian Academy of Science Presidium Program of Basic Research 2 and 21. We are grateful to Dr. M. Yamagiwa for his interest in and encouragement of this work.

References

- [1] A. Ya. Faenov et al., *Appl. Phys. Lett.* **94**, 231107 (2009).
- [2] N. A. Inogamov et al., *Appl. Phys. A* **101**, 87 (2010).
- [3] M. Ishino et al., *J. Appl. Phys.* **109**, 013504 (2011).
- [4] M. Ishino et al., *Appl. Phys. A* (Published online: 20 October 2012).

4. 10 軟 X 線シンチレーターとしての ZnO 結晶の空間分解能評価

Spatial Resolution Measurement of ZnO Crystal as a Soft X-ray Scintillator

中里 智治¹、清水 俊彦¹、山ノ井 航平¹、酒井 浩平¹、武田 耕平¹、西 亮祐¹、南 佑輝¹、
粉 亮介¹、新里 悠希¹、有田 廉¹、堀 達弘¹、Marilou CADATAL-RADUBAN¹、猿倉 信彦¹、
加納 正孝²、若宮 章²、福田 承生³、田中 桃子⁴、錦野 将元⁴、河内 哲也⁴
大阪大学レーザーエネルギー学研究センター¹、株式会社大真空²、東北大学 WPI-AIMR³
独立行政法人日本原子力研究開発機構⁴

Tomoharu NAKAZATO¹, Toshihiko SHIMIZU¹, Kohei YAMANOI¹, Kohei SAKAI¹,
Kohei TAKEDA¹, Ryosuke NISHI¹, Yuki MINAMI¹, Ryosuke SOGI¹, Yuki SHINZATO¹,
Ren ARITA¹, Tatsuhiko HORI¹, Marilou CADATAL-RADUBAN¹, Nobuhiko SARUKURA¹,
Masataka KANO², Akira WAKAMIYA², Tsuguo FUKUDA³, Momoko TANAKA⁴,
Masaharu NISHIKINO⁴, Tetsuya KAWACHI⁴
Institute of Laser Engineering, Osaka University¹, Daisinku Corporation²,
4WPI-AIMR, Tohoku University³, Japan Atomic Energy Agency⁴

We also demonstrate the potential of a hydrothermal method-grown ZnO as a high-spatial resolution imaging device for in-situ soft X-ray laser diagnostics by characterizing the exciton emission patterns. Spatial resolution of the magnifier was estimated to be 5 μm and limited by magnifier. This indicates that ZnO might have sub-micron spatial resolution.

Keywords: XFEL, Fast Response Scintillator, Wide Bandgap Semiconductor

1. はじめに

基礎科学から医療・産業まで幅広い分野で期待されている X 線自由電子レーザーやレーザープラズマ軟 X 線 [1-6]などの新規光源応用を進めるためには、光源診断に用いるイメージングデバイスが必要不可欠である。我々は ZnO 結晶に注目し、軟 X 線領域で優れたシンチレーター材料候補であることを示し[7-8]、不純物添加による高速応答化を試み、固体シンチレーターとしては最速の 3 ps という高速応答性を実現した[7-13]。本研究では、関西光科学研究所の軟 X 線レーザーを用い発光パターン径を解析することに寄り、ZnO 結晶の軟 X 線領域イメージングデバイスとしての原理実証および空間分解能評価を行った。

2. 実験

関西光科学研究所の波長 13.9 nm の軟 X 線レーザーを ZnO 結晶に照射し、その発光パターンを Schwarzschild mirror とカメラ用レンズ、EB-CCD で構成される拡大光学系で撮影した。このとき、球面鏡を用いた集光ミラーを動かすことで、ZnO 表面上におけるビーム径を変化させている。Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。

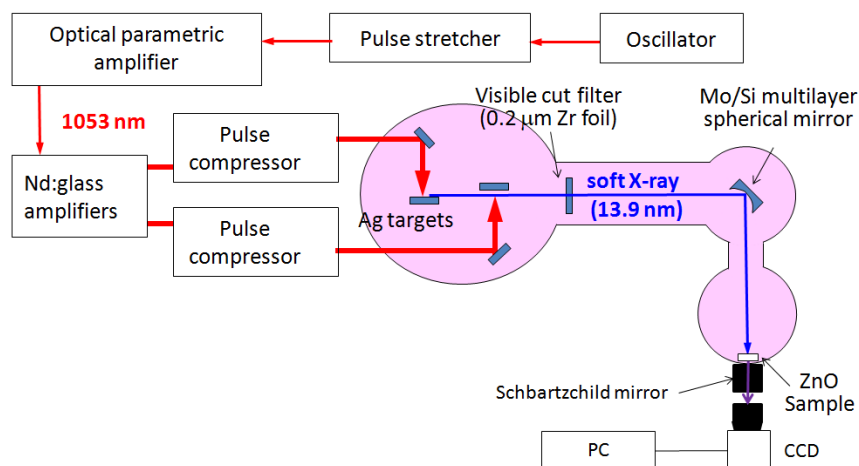


Fig. 1 Schematic diagram of experimental setup.

3. 結果および解析

Fig. 2 に ZnO 発光パターンを解析して得られた球面鏡集光による軟 X 線レーザーのビームプロファイルを示す。白抜きの四角が水平方向における発光パターン径であり解析の結果得られたビームプロファイルを破線で示す。また、黒抜きは垂直方向における発光パターン径で、実線は解析の結果得られたビームプロファイルである。また、一点破線は水平、点線が垂直方向の発散角を示している。解析の結果、水平方向、垂直方向それぞれの場合で、集光点の位置におけるビーム径が $9\ \mu\text{m}$ と $21\ \mu\text{m}$ 、発散角が 7.2 と $11\ \text{mrad}$ 、 M^2 が 47 と 50 であった。これらの結果は光源の仕様と良く一致しており、軟 X 線領域における ZnO 結晶の in-situ イメージングデバイスとしての原理実証に成功した。なお、発散角、 M^2 の値がともに大きいのは実験時にシングルターゲットでの照射となったためである。

続いて、空間分解能を評価するため、Fig.1 の集光鏡を球面鏡からフレネルゾーンプレート(FZP)に交換した上で軟 X 線レーザーを ZnO 結晶に照射し発光パターンを撮影した。また、同様に FZP を動かし ZnO 表面上におけるビーム径を変化させながら撮影を行ってた。その結果得られたビームプロファイルを Fig.3 に示す。Fig. 2 と同様に、白抜きの四角が水平方向における発光パターン径であり、解析の結果得られたビームプロファイルを破線で示す。また、黒抜きは垂直方向における発光パターン径で、実線は解析の結果得られたビームプロファイルである。集光点における発光パターン径は約 $5\ \mu\text{m}$ であった。一方、FZP で集光した際に見積もられる軟 X 線レーザーのビーム径は約 $1\ \mu\text{m}$ であり、観測された発光パターン

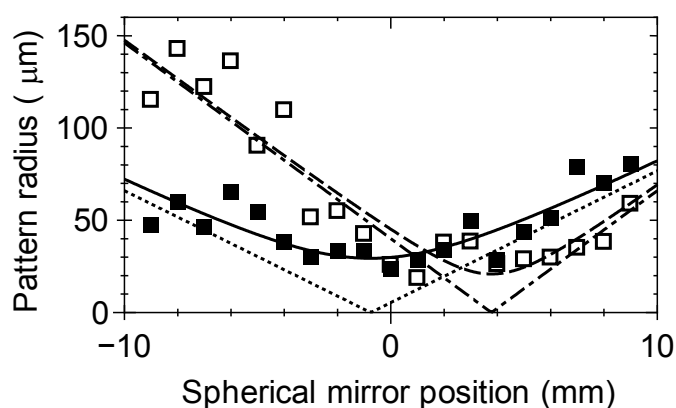


Fig. 2 Beam profile of the Soft X-ray laser obtained by analyzing the ZnO emission pattern.

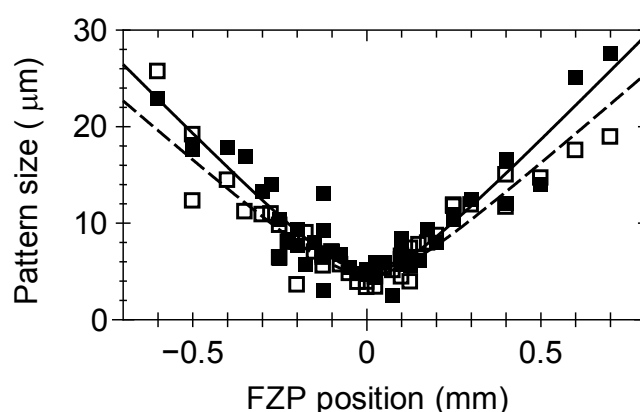


Fig. 3 Beam profile of the Soft X-ray laser obtained by analyzing the ZnO emission pattern.

径とは差がある。この原因を調べるために、ZnO 結晶を除いた拡大光学系のみ空間分解能を USAF テストターゲットで評価した。その結果、空間分解能は約 $5\ \mu\text{m}$ であり、本研究における実験装置の空間分解能は拡大光学系で制限されており、ZnO 結晶自体のイメージングデバイスとしての限界ではないことを明らかにした。このことは、ZnO 結晶の空間分解能は少なくとも $5\ \mu\text{m}$ よりも良いことを示しており、今後拡大光学系を改善することで空間分解能のさらなる改善を見込めることを示している。

4. まとめ

ZnO 結晶の軟 X 線領域イメージングデバイスとしての原理実証および空間分解能評価を目的に、関西光科学研究所が所有する軟 X 線レーザーを励起源に発光パターン撮影を行った。軟 X 線レーザーを集光する球面鏡を動かしながら撮影した発光パターンを解析したところ、集光点の位置におけるビーム径が $9\ \mu\text{m}$ と $21\ \mu\text{m}$ 、発散角が 7.2 と $11\ \text{mrad}$ 、 M^2 が 47 と 50 であり、光源の仕様と良く一致していることから軟 X 線領域における ZnO 結晶の in-situ イメージングデバイスとしての原理実証に成功した。続いて行った空間分解能評価では、FZP 集光による軟 X 空間レーザーの集光径が $1\ \mu\text{m}$ に対して、集光点付近の発光パターン径は約 $5\ \mu\text{m}$ であった。しかし、拡大光学系の空間分解能評価の結果、この原因は拡大光学系によるものであり、ZnO 結晶自体のイメージングデバイスとしての限界ではないことを明らかにした。このことは、ZnO 結晶の空間分解能は少なくとも $5\ \mu\text{m}$ よりも良いことを示しており、今後拡大光学系を改善することで空間分解能のさらなる改善を見込めることを示している。

参考文献

- [1] Y. Shimada, et al., Appl. Phys. Lett., **86**, 051501 (2005).
- [2] S. Fujioka, et al., Phys. Rev. Lett., **95**, 235004 (2005).
- [3] T. Kawachi, et al., Phys. Rev. A, **66**, 033815 (2002).
- [4] A. Klisnick, et al., Phys. Rev. A, **65**, 33810 (2002).
- [5] M. Tanaka, et al., Opt. Lett., **28**, pp. 1680-1682 (2003).
- [6] T. Shintake, et al., Nat. Photonics, **2**, pp. 555-559 (2008).
- [7] M. Tanaka, et al., Appl. Phys. Lett., **91**, 231117 (2007).
- [8] T. Nakazato, et al., J. Cryst. Growth, **311**, pp. 875-877 (2009).
- [9] T. Shimizu, et al., Rev. Sci. Instrum., **81**, 033102, (2010).

- [10] K. Yamanoi, et al., *Opt. Mater.*, **32**, pp. 1305-1308 (2010).
- [11] M. Kano, et al., *J. Cryst. Growth*, **318**, pp. 788-790 (2010).
- [12] T. Shimizu, et al., *Appl. Phys. Ex.*, **4**, 062701 (2011).
- [13] T. Nakazato, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **50**, 122202 (2011).

4. 11 広帯域軟 X 線発光分光システムの開発

An Extension of Detectable Energy-range of SXES Spectrometer for Electron Microscopes

寺内 正己¹、高橋 秀之²、飯田 信雄²、村野 孝訓²、小池 雅人³、河内 哲哉³、今園 孝志³、
長谷川 登³、小枝 勝⁴、長野 哲也⁴、笹井 浩行⁴、大上 裕紀⁴、米澤 善央⁴、倉本 智史⁴

Masami TERAUCHI¹, Hideyuki TAKAHASHI², Nobuo HANDA², Takanori MURANO², Masato KOIKE³,
Tetsuya KAWACHI³, Takashi IMAZONO³, Noboru HASEGAWA³, Masaru KOEDA⁴, Tetsuya NAGANO⁴,
Hiroyuki SASAI⁴, Yuki OUE⁴, Zeno YONEZAWA⁴ and Satoshi KURAMOTO⁴

¹ 東北大学・多元物質科学研究所、² 日本電子（株）、
³ 原子力機構・量子ビーム応用研究部門、⁴（株）島津製作所

¹ IMRAM, Tohoku University, ² EO Peripheral Component BU, JEOL Ltd.,
³ Quantum Beam Science Directorate, JAEA, ⁴ Device Department, SHIMADZU Corp.

Soft X-ray emission spectroscopy (SXES) instrument for electron microscopes of EPMA/TEM with an energy range of 50-3800 eV has designed and constructed. For extend the lowest and the highest detection energy, an Au-coated new grating (50-200 eV) and a new multilayer-structure of W/B₄C coated one (1500-4000 eV) were designed and manufactured. Energy resolutions were 0.2 eV for Mg-L and 27 eV for Te-L α . Software for elemental and/or electronic structure (chemical) mappings is also developed.

Keywords: Grazing-incidence flat-field optics, varied line-spacing grating, Li-K emission

1. はじめに

近年の半導体デバイス等の急速な微細化やナノ粒子等を用いた新機能材料の開発段階における評価技術として、顕微鏡技術に基盤を置いた構造・組成評価技術のみならず、デバイス機能に直結する元素の状態分析技術が求められている。物質の機能（物性）は、その物質を構成する原子同士の結合にあずかる結合電子（価電子）のエネルギー状態に強く依存している。したがって、高い空間分解能を有する価電子状態の分析技術は極めて重要である。これまでも、透過型電子顕微鏡（TEM）で特定した領域からの価電子エネルギー分布測定を目的とした軟 X 線発光分光（Soft-X-ray emission spectroscopy: SXES）装置開発が報告されているが、測定エネルギー領域は 60-1200eV であった[1,2]。今回、より広く材料への応用を目的とし、2 次電池で重要な Li（55eV）から、希少元素やメモリーデバイスに使われているカルコゲナイド（Te-L：3.8keV）までを測定できるように測定領域を 50-3800eV へと拡張し、検出系の再検討および解析ソフトウェアまでも含めたナノスケール軟 X 線発光分光システムの開発（JST-産学共同シーズイノベーション化事業（育成ステージ）：H20-H23）を行ってきた [3,4]。

2. 実験装置

今回のSXES装置は、これまでと同様に斜入射の平面結像型光学系を採用 (Fig. 1) しており、4つの収差補正型回折格子を用いて50eVから3800eVの領域を切れ目なくカバーできるように設計されている。斜入射の分光系の検出立体角は小さいが、わずかな隙間からのX線で十分であるため、電子顕微鏡の光学系を変更することなくTEM/EPMA (EPMA: Electron probe microanalyzer) との組み合わせが可能となっている。また、検出立体角が小さいため、プローブ電流が小さなTEMでの実験で十分なS/Nを得るには数十分の時間を要するが、プローブ電流の大きなEPMA/SEM (SEM: Scanning electron microscope) などでは1分以内で取得可能となる。

Fig. 2(a)は、今回試作した軟X線分光器を装着した汎用透過型電子顕微鏡JEM2010の外観写真である。この分光器は、X線集光ミラー、収差補正型回折格子ユニットと検出器から構成されている。X線集光ミラーは、Auメッキ表面を有するNi薄板で作られており、長さは14 cmである。また、実験目的の装置であるため、異なる仕様の2つの検出器が搭載できる特殊な構造をしている。上側の長い検出器は、CsIコート(増感材)したマルチチャンネル検出器(MCP)と汎用の前面照射型CCDを組み合わせたものである。MCP位置での画素サイズは24 μ mである。下側のコンパクトな検出器は、軟X線を直接検出できる背面照射型CCDであり、画素サイズは12 μ mである。画素の大きなMCP検出器は、大きなエネルギー分散の得られる200eV程度以下の低エネルギー領域に使用し、画素の小さなCCD検出器は、エネルギー分散が小さな高いエネルギー領域に使用している。同じ分光特性を有する装置を汎用EPMAに搭載した外観写真をFig. 2(b)に示す[5]。

3. 実験結果: 低エネルギー領域 [6,7]

Fig. 3 に、本プロジェクトで開発した新しい回折格子 JS50XL (刻線密度 1200 本/mm) と MCP 検出器を用いて測定した、金属リチウムの Li-K 発光 (価電子帯→K 殻) スペクトル、および、金属マグネシウムの Mg-L 発光 (価電子帯→L 殻) スペクトルを示す。測定の条件は、ビーム電流量 (nA) × 測定時間 (min) で、950nA・min (Li-K)、400nA・min (Mg-L) であった。プロジェクトの目標であった 50eV までのスペクトルを得ることに成功している。金属リチウムは大気中で

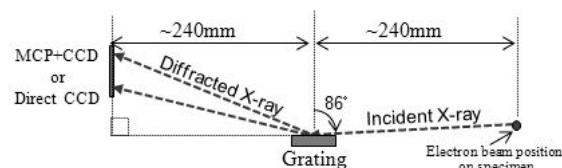


Fig.1 Grazing-incidence Flat-field optics adopted in the present development.

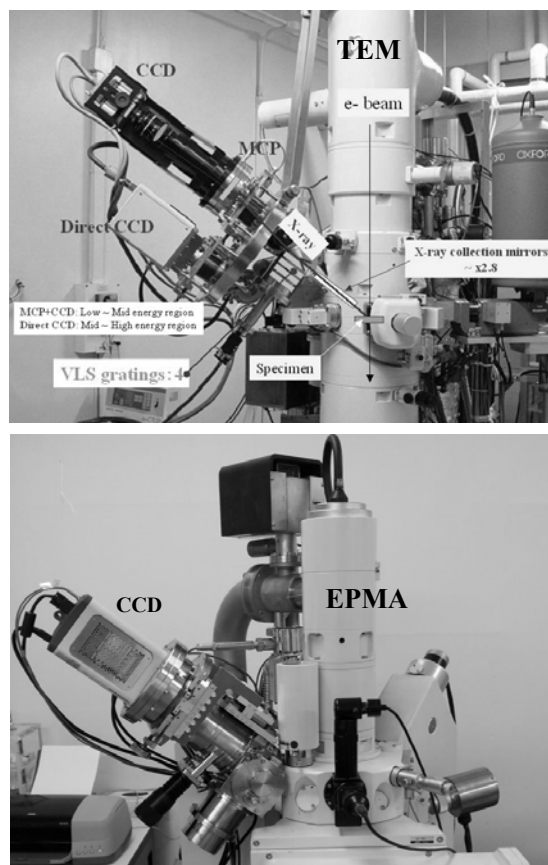


Fig. 2 (a) Test SXES spectrometer attached to a conventional TEM. (b) A commercial type SXES spectrometer attached to a conventional EPMA.

はすぐに酸化や窒化を生じるので、金属リチウム試料片の取り扱いと試料ホルダーへ装填は、Ar 雰囲気グローブボックス内で行った。さらに、Li 試料片を Ar 雰囲気下の環境を保ったまま移送し、TEM への挿入を行った。その結果、表面が酸化されると観測される 50eV 付近のピーク強度がほとんど観察されていない。Mg-L 発光および Li-K 発光スペクトルとも、スペクトル強度の右端にシャープなフェルミエッジを示している。フェルミエッジの中心 (E_F) は、価電子帯の上端に対応する。Mg-L 発光スペクトルの E_F (49.5eV) において、分解能は 0.16eV と評価できた。 E_F から左側 (低エネルギー側) のスペクトル強度分布は、基本的には価電子のエネルギー分布に対応している。

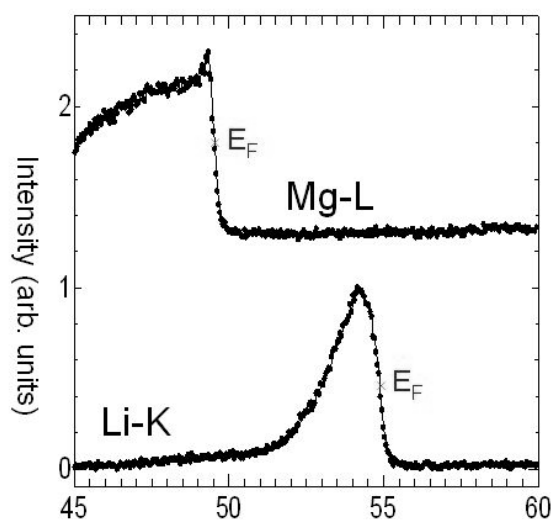


Fig.3 Mg-L and Li-K emission spectra of metal-Mg and metal-Li, respectively.

Fig.4 に、 CaB_6 (半導体) と LaB_6 (金属) から得た B-K 発光 (価電子帯 \rightarrow K 殻) スペクトルを示す。回折格子は JS200N (刻線密度 1200 本/mm) を使用し、検出器には背面照射型 CCD を使用した。図 2 のスペクトルの数倍の測定条件 $1560\text{nA} \cdot \text{min}$ のため、S/N の良いスペクトルが得られている。この二つの物質は、 B_6 クラスターのネットワークに金属元素が内包された構造 (挿入図) を有する。それぞれのスペクトルのメインピークは、 B_6 クラスターを形成する B 原子間の結合軌道に由来する。価電子帯の下部 (低エネルギー側) は、 B_6 クラスター間の結合軌道に起因している。二つのスペクトルでの最も大きな違いは、価電子帯上端にある。Ca と La は、それぞれ 2 個、3 個の価電子を B_6 クラスターネットワークへ与える。一方、 B_6 ネットワークは、その結合軌道を電子で満たすのに 2 個足りないことが知られている。その結果、 CaB_6 では価電子帯が満たされた半導体となり、 LaB_6 では伝導帯に電子が存在する金属となる。 LaB_6 の価電子帯上端にフェルミエッジ (E_F) が観測されている。

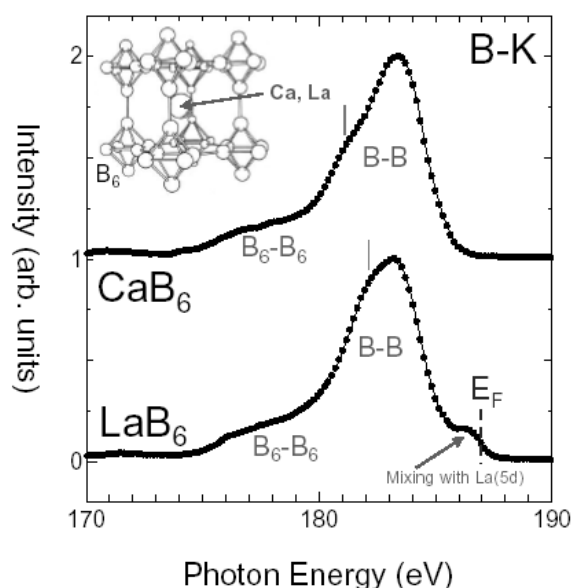
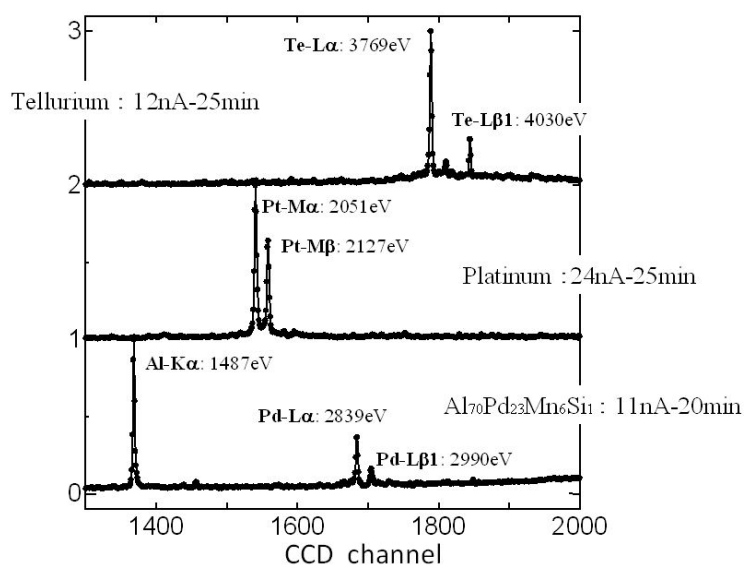


Fig.4 B-K emission spectra of CaB_6 (semiconductor) and LaB_6 (metal). The spectrum of LaB_6 clearly shows Fermi edge.

4. 実験結果: 高エネルギー領域 [8,9]

通常の回折格子の表面材質は Au である場合がほとんどである。しかしながら、2.2keV に M 吸収端があるため、それ以上のエネルギー領域では回折効率がほとんど得られない。この本質的な困難を乗り越えるため、2-4keV で実用的な回折効率を有する広帯域多層膜構造を新規に考案した。この新規多層膜構造を表面に施したレプリカ回折格子を電子顕微鏡に装着し、Te、Pt、

$\text{Al}_{70}\text{Pd}_{23}\text{Mn}_6\text{Si}_1$ から測定したスペクトルを Fig.5 に示す。1.5-4keV において、有意な強度の測定が可能であることを示している（放射光での回折効率評価でも同様な結果を得ている）。また、分解能・感度テストとして、透明電極材料である ITO（酸化インジウム(In_2O_3)に 5-10%の酸化スズ(SnO_2)を添加した化合物)の測定をしたところ、In-L β 1(3487eV) ピークと Sn-L α (3444eV)ピークを明瞭に分離計測できることが確認できた。



5. まとめ

これまでの透過型電子顕微鏡用に研究開発してきた軟 X 線発光分光装置の測定エネルギー領域を拡張して 50-4000eV を実現した。また、TEM

Fig.5 Emission spectra of Te, Pt, and $\text{Al}_{70}\text{Pd}_{23}\text{Mn}_6\text{Si}_1$ obtained in an energy range of 1.5-4 keV at the same setting for the new multi-layer coated grating.

だけでなく EPMA/SEM に搭載可能な軟 X 線発光分析システムの開発を行った。新たに開発した収差補正型回折格子 JS50XL により、Li-K 発光スペクトルを測定できるようになった。高エネルギー領域へ拡張するために、1.5-4keV で有意な回折強度が期待できる新しい多層膜構造を提案して作製し、その性能を実証することができた。この分析システムが、新機能材料や新素材開発現場での新たな評価技術として新たな情報を提供し、物質開発に貢献できることを期待している。

参考文献

- [1] M. Terauchi and M. Kawana, Ultramicroscopy, **106**, 1069 (2006).
- [2] M. Terauchi, et al., Journal of Electron Microscopy, **59**, 251 (2010).
- [3] 寺内正己, 顕微鏡, **46**, 105 (2011).
- [4] M. Terauchi, et al., Journal of Electron Microscopy, **61**, 1 (2012).
- [5] H. Takakashi, et al., Microscopy & Microanalysis, **16(supple.2)**, 34 (2010).
- [6] T. Imazono, et al., Appl. Opt., **51**, 2351 (2012).
- [7] 寺内正己, 他, 日本電子ニュース, **44**, 11 (2012).
- [8] T. Imazono, et al., AIP Conf. Proc., **1465**, 33 (2012).
- [9] M. Terauchi, et al., Microscopy, accepted.

4.12 Characterization of Cluster-gas Targets for Laser-driven Ion Acceleration

神野 智史¹, 福田 祐仁¹, 榊 泰直¹, 余語 覚文¹, 金崎 真聡^{1,2}, 近藤 公伯¹, A. Ya. Faenov^{1,3},

I. Yu. Skobelev³, T. A. Pikuz^{1,3}, A. S. Boldarev⁴, V. A. Gasilov⁴

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) 神戸大学大学院 海事科学研究科

3) Joint Institute for High Temperatures, Russian Academy of Sciences

4) Keldysh Institute of Applied Mathematics, Russian Academy of Science

S. Jinno¹, Y. Fukuda¹, H. Sakaki¹, A. Yogo¹, M. Kanasaki^{1,2}, K. Kondo¹, A. Ya. Faenov^{1,3},

I. Yu. Skobelev³, T. A. Pikuz^{1,3}, A. S. Boldarev⁴, V. A. Gasilov⁴

1) Kansai Photon Science Institute, Japan Atomic Energy Agency

2) Graduate School of Maritime Sciences, Kobe University

3) Joint Institute for High Temperatures, Russian Academy of Sciences

4) Keldysh Institute of Applied Mathematics, Russian Academy of Science

An apparatus for size evaluation of cluster-gas target in laser-driven ion acceleration was developed. The angular distribution of light scattering from CO₂ clusters, which formed in the supersonic gas jet of CO₂ and H₂ mixed-gas through the three-stage conical nozzle, were measured for irradiation with a second harmonic (532 nm) of pulsed Nd:YAG laser. The data are analyzed based on the Mie scattering theory, and the size of CO₂ clusters is distributed from 0.1 μm to 0.4 μm.

Keywords: Cluster, Mie Scattering

1. はじめに

高強度レーザーとクラスターとの相互作用により発生する高温プラズマは、高次高調波、核融合、レーザー駆動電子加速およびイオン加速などの広い分野から注目されている[1]。本研究で行っているクラスターをターゲットとしたレーザー駆動イオン加速実験は、小型なイオン加速器として医療や産業への応用を目指している[2]。

レーザーとクラスターの相互作用を理解するためには、クラスターガスターゲットを特徴付けるパラメータであるクラスターサイズ、全ガス密度、クラスター状態の割合について知る必要がある。クラスターサイズに関しては Hagena の半経験的なスケーリングパラメータ Γ^* [3]やレイリー散乱の測定[4]を用いて見積もられてきた。Hagena の式は平均クラスターサイズを与えるのに対し、Boldarev はクラスター状態の割合を含めたモデルを提唱した[5]。この Boldarev モデルの数値シミュレーションに基づいて、我々は十分な量のサブミクロンサイズのクラスターを生成できる三段コニカルノズルを製作した。実際にこのノズルを用いたレーザー駆動イオン加速において、ヘリウムと CO₂ の混合ガスターゲットに対して、高エネルギーイオンの効率的な発生が従来の固体をターゲットとした手法を超えて達成された[6]。

しかしながら、加速メカニズムや加速条件の最適化のために、このノズルにより生成されるク

ラスタースターゲットの特性は直接的に評価されていない。実験的なクラスターサイズの計測には、レイリー散乱の測定が従来行われてきたが、光の波長程度のサブミクロンサイズとなると、代わりにミー散乱理論に従う光の散乱角度分布の測定を行わなければならない。例として、ドロップレットやエアロゾルのような液体から形成されるミクロンサイズのクラスターのサイズ測定にはミー散乱を用いて行われている。

本研究ではクラスターガスターゲットに対して、クラスターサイズ分布を直接的に決定するために、ミー散乱を適用したターゲット診断装置の開発を行った。装置の動作やサイズ測定の妥当性を評価するために、標準シリカ粒子のサイズ測定を行った。そして、プロトン加速の種ガスとして用意した H_2 と CO_2 の混合ガスターゲットに対して CO_2 クラスターのサイズを評価した。

2. 実験装置

Fig. 1 にミー散乱を用いた粒子のサイズ測定のための実験装置を示す。Nd:YAG レーザーの 2 倍波 532 nm を光源として用いた。ロングパルスモードでエネルギー 1 μJ 以下のレーザー光は焦点距離 750 mm のレンズにより真空チェンバーの中心に集光される。レーザー光の偏光面は散乱平面に対して直角である。粒子による散乱光は光電子増倍管 (PMT) により検出される。散乱角度分布を得るために、PMT は 3 度から 108 度まで角度を変えることが出来き、その角度分解能は 0.5 度である。もう一台の PMT が 90 度方向に固定されており、検出される散乱光はターゲットの密度揺らぎを補正するためのリファレンスとする。入射光のエネルギーの揺らぎはチェンバーの外でモニターされている。このように散乱光の信号強度はリファレンス信号とレーザーエネルギーによ

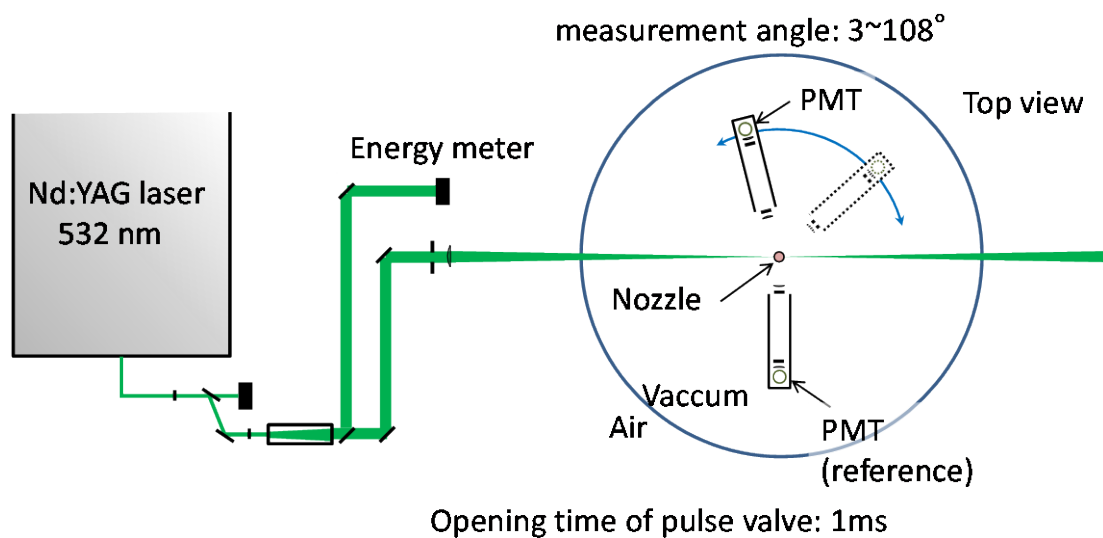


Fig. 1 Optical design

りショット毎に規格化される。

3. 標準シリカ粒子のサイズ測定

ミー散乱理論を用いた粒子のサイズ測定の原理実証実験を標準シリカ粒子を用いて行った。用いた標準シリカ粒子のサイズは 0.49, 0.99, 1.57 μm と分かっている。シリカ粒子を純水で懸濁し、100 ppm の濃度に調整したサンプルを内径 10 mm の石英管に入れて、チェンバーの中心に固定した。Fig. 2 (a) は大気中で測定されたサンプルからの散乱光の角度分布を示している。前方

散乱の割合が粒子サイズと共に増大している事ことから、ミー散乱の特徴が現れていることが分かる。

データ解析は以下のように行った。ミー散乱理論に従うと、粒子のサイズパラメータ $x = 2\pi rn/\lambda$ の増大と共に光は強く前方へ散乱される。ここで r , n , λ はそれぞれ粒子の半径、屈折率、および入射光の波長である。粒子のサイズ分布は以下の式の散乱光の角度分布の最小二乗フィットにより得る。

$$I(\theta) = \sum_x F(x, \theta) N(x) \quad (1)$$

ここで、 θ , $N(x)$, $F(x, \theta)$ はそれぞれ散乱角度、サイズ分布関数、および角度分布関数である。本研究ではサイズ分布関数 $N(x)$ は対数正規分布と仮定した。なぜなら、この関数はクラスターのような成長や分離の過程を含む様々な現象において、しばしば現れるためである。サイズパラメータ x を持つ一つの粒子からの θ 方向への単位立体角当たりの散乱強度である角度分布関数 $F(x, \theta)$ はミー散乱コードを利用して計算した。フィッティングは対数正規分布 $N(x)$ の平均と分散をパラメータとして、Nelder-Mead 法により行った。式(1)は Fig. 2 (a) に示されたフィッティングカーブ $I(\theta)$ と、Fig. 2 (b) に示されたサイズ分布 $N(x)$ を与える。これらのフィッテ

ィングの結果は実際の粒子サイズと良い一致を示した。本装置によるサイズ測定の上限は、検出器の分解能、小角度における散乱光と入射光からの迷光の識別、散乱角度分布における散乱強度の振動パターン、サイズ分布の幅、ターゲットの屈折率などに依存する。上記を考慮すると、例えば CO_2 クラスターに対しては、およそ $4 \mu\text{m}$ まで適用できる。サイズ測定の下限に関しては、レイリー散乱に近づくので、従来行われてきた方法を適用できる。

4. CO_2 クラスターのサイズ測定

我々は H_2 (70%) と CO_2 (30%) の混合ガス 6 MPa を三段コニカルノズルを通して真空中に噴射し、超音速ジェット中で形成された CO_2 クラスターのサイズを評価した。ノズル出口から 1, 3, 6 mm の位置において散乱角度分布を測定した。ノズルの入口に接続されたソレノイドパルスバルブの開放時間は安定なガスの流れを確保するために 1 ms に設定した。

Fig. 3 (a) に示されたように、ターゲットからの散乱光の角度分布はミー散乱による前方散乱の特徴を備えており、クラスターターゲット中にレーザーの波長程度の CO_2 クラスターが存在す

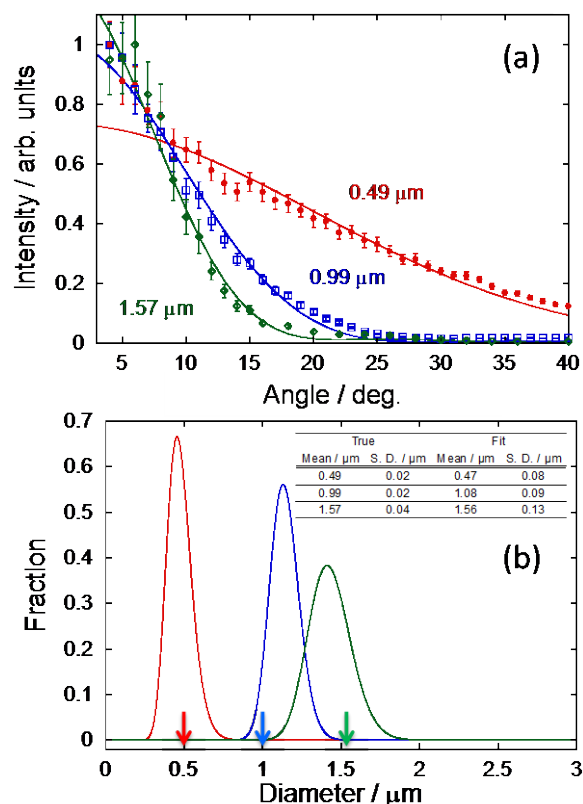


Fig. 2 (a) The angular distribution of light scattered by the standard silica particles. The red, blue, and green lines are fitting curves convolved with lognormal size distribution. (b) The size distribution of standard silica particles estimated by the fitting procedure. The mean cluster sizes and standard deviations (S. D.) for the true and the fitting values are together tabulated.

ることを示す。このとき、バックグラウンドであるモノマーガスからの散乱の寄与は無視できるほど小さい。散乱強度がノズルからの距離と共に減少しているのは、噴射ガスの発散により密度が低下しているためと考えられる。すでに説明した解析方法により得られたサイズ分布を Fig. 3 (b) に示す。これらの分布の平均サイズ、標準偏差、フィッティングの換算 χ^2 を図中に示した。これらの結果は Boldarev モデルから予想される直径 $0.6 \mu\text{m}$ を少し下回ったが、冷凍機を使用せず室温においてサブミクロンの CO_2 クラスタを生成し、それを確認したことは初めてとなる。

5. まとめ

以上のように、クラスターガスターゲットの特性評価のための装置と、ミー散乱理論を用いた解析手法を開発した。本手法が有効であることを確かめるために、原理実証実験を標準シリカ粒子を用いて行った。Boldarev モデルに基づいて設計製作した三段コニカルノズルにより生成した CO_2 クラスタの実際のサイズを初めて計測した。

クラスターガスターゲットの状態は、レーザー駆動イオン加速におけるプラズマの初期状態に密接に関わるので、このようなターゲットの特性評価は、最適条件の探索や加速効率向上に寄与するものと考えられる。本研究を通して、クラスターガスターゲットを用いたレーザー駆動イオン加速を医療や産業応用を目指して発展させていきたい。

謝辞

本研究は日本学術振興会「最先端・次世代研究開発支援プログラム」による支援を受けて行われている。

参考文献

- [1] H. Daido, et al., Rev. Prog. Phys. **75**, 056401 (2012).
- [2] Tajima, J. Jpn. Soc. Therapy. Rad. Oncol. **9**, 83 (1998).
- [3] O. F. Hagen, Rev. Sci. Instrum. **63**, 2374 (1992).
- [4] Ditmire, et al., Phys. Rev. A **57**, 369 (1998).
- [5] A. S. Boldarev, et al., Rev. Sci. Instrum. **77**, 083112 (2006).
- [6] Y. Fukuda, et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 165002 (2009).

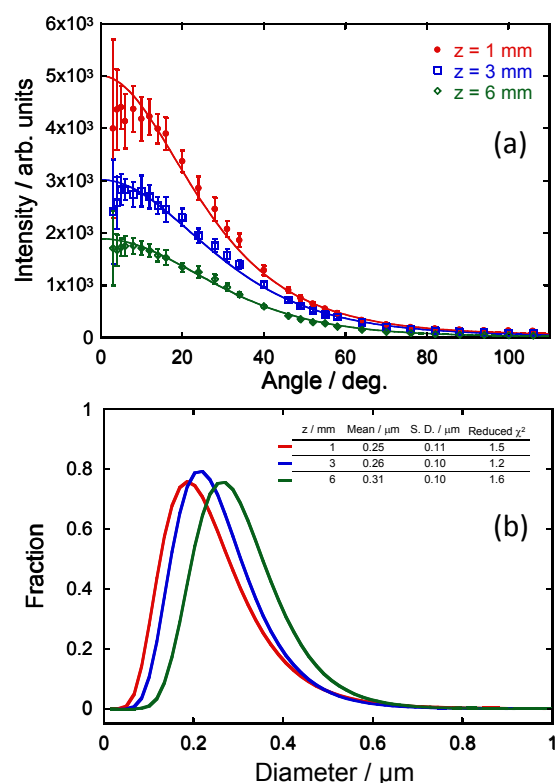


Fig. 3 (a) The light scattering angular distributions for the CO_2 clusters. They were measured at 1, 3, and 6 mm from the nozzle exit at the stagnation pressure of 6 MPa. The polarization plane of the incident laser is perpendicular to the scattering plane. (b) The lognormal size distributions estimated from the light scattering angular distributions.

4.13 時間分解反射率のピコ秒周期振動から探る

石英のフェムト秒レーザーアブレーションの研究

Dynamics of Femtosecond Laser Ablation of Fused Silica Studied by Picoseconds Oscillation of Time-resolved Reflectivity

熊田 高之、赤木 浩、板倉 隆二、乙部 智仁、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

Takayuki KUMADA, Hiroshi AKAGI, Ryuji ITAKURA, Tomohito OTOBE and Atsushi YOKOYAMA

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

We have observed an oscillation with ca. 60 ps-period in time-resolved reflectivity of fused silica excited by a femtosecond laser pulse with fluence of 4.9–12.8 J/cm². We consider that the oscillation is caused by an interference between reflected probe pulses from front and rear surfaces of liquid-vapor (LV) coexistence phase, which is not only expanded by thermodynamic homogeneous nucleation of gas bubbles, but also separated into two dense layers by tensile stress wave. In spite of great difference in bandgap and excitation energy, this feature of the ablation is very similar to that in metals, semiconductors, and organic solid irradiated with a femtosecond laser pulse.

Keywords: Femtosecond Laser Ablation, Fused Silica

1. はじめに

レーザー加工にフェムト秒レーザーを用いると、熱変性が最小限に抑えた高精度加工が実現する [1]。特にフェムト秒レーザーは多光子励起を効率よく引き起こすこともあり、石英のようなバンドギャップが 10 eV 近くに達する透明材料の加工には大変相性が良い。

一方で、透明材料のアブレーションは精密なコントロールが難しい“荒々しい”プロセスであることが知られている。金属や半導体の励起電子(キャリア)密度は照射線量に正比例するのに対して、多光子励起によりバンド間励起を引き起こす透明材料では、励起電子密度はプラズマ振動の閾値近傍に達した時を境に飛躍的に増大(オプティカルブレイクダウン)してアブレーションを引き起こす。ブレイクダウンによって生成した無数のキャリアは非常に高いエネルギーを持つために、キャリアからエネルギーをもらい受けた格子はクラスターや単離した分子となって木端微塵に吹き飛ぶものと考えられていた [2-4]。

加工技術の高度化を探求する上で、フェムト秒レーザーアブレーションの超高速ダイナミクスの物理を理解し、この荒々しいプロセスを上手に飼い慣らすことが必須となる。最近、我々はフェムト秒レーザー照射した石英の反射率において約 60 ps 周期の振動を見つけることに成功した。本稿ではその結果を示すとともに、そこから導かれるアブレーションダイナミクスの物理を議論する。

2. 実験

本時間分解反射率測定実験において、ポンプ光はチタンサファイアレーザー(波長 $\lambda = 795$ nm, パルス幅 70 fs, 繰り返し 10 Hz) 光を入射角 50 度で試料面上に強度 $F_{\text{pump}} = 4\text{--}12$ J/cm² まで集光し、プロ

ープ光には同レーザー光の基本波、もしくはBBO結晶を用いて作られた2倍高調波のSおよびP偏光の光を入射角 $\theta_{pr} = 55^\circ$ (ブリュスター角)で入射した。真空チャンバー内におかれた石英試料は、ショット毎に新しい照射面が来るように移動した。

3. 結果

Fig.1 にアブレーション閾値($\sim 4 \text{ J/cm}^2$)を幾らか上回る $F_{\text{pump}} = 9 \text{ J/cm}^2$ のポンプ光を照射した石英試料の時間分解反射率を示す。ポンプ光照射によってプラズマ反射が誘起された後、500 ps にわたり振幅 0.05–0.1 %程度の明瞭な反射率の振動が観測された。振動周期はプローブ光の波長 795nm では 62 ps、398nm の光ではちょうど半分であった。この結果から、振動は

$$d \cos \theta_{pr} = \frac{j\lambda}{2} \quad (j: \text{整数}) \quad (1)$$

の干渉条件を満たす速度 v で距離 $d = vt$ 離れた2つの反射面間の光学干渉によるものであると考えられる。振動周期から $v \approx 10000 \text{ m/s}$ が求まる。振動が $t = 0 \text{ ps}$ から等時間間隔で極小値を示すことから、2つの反射面は固定端と自由端を持つことがわかる。また、 j 番目の振動周期における最小値 $R_{j,\min}$ と最大値 $R_{j,\max}$ によって決定されるVisibility ($R_{j,\max} - R_{j,\min}$) / ($R_{j,\max} + R_{j,\min}$)が0.3程度に達することから、2つの反射面は同程度の反射率を持つことがわかる。

Fig. 2 はS, P偏光の反射率を比べたものである。S偏光の反射率が高いのはフレネル反射によるものである。S偏光はP偏光に比べてVisibilityこそ小さいものの、振幅 $R_{j,\max} - R_{j,\min}$ は3%前後とP偏光に比べてはるかに大きい。

4. 考察

アブレーション閾値をわずかに上回る 0.5 J/cm^2 程度のフェムト秒レーザー光を照射した半導体や金属の時間分解反射率イメージング測定において、生成する気液混合相表裏面の反射による干渉縞(ニュートンリング)が報告されている。干渉縞のパターン変化から、気液混合相

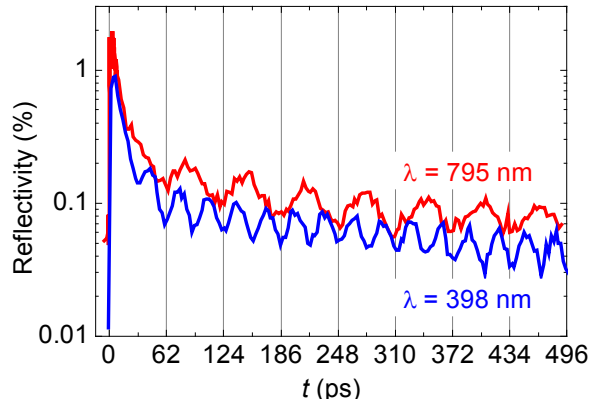


Fig. 1 Reflectivity of *p*-polarized light with $\lambda = 795$ and 398 nm .

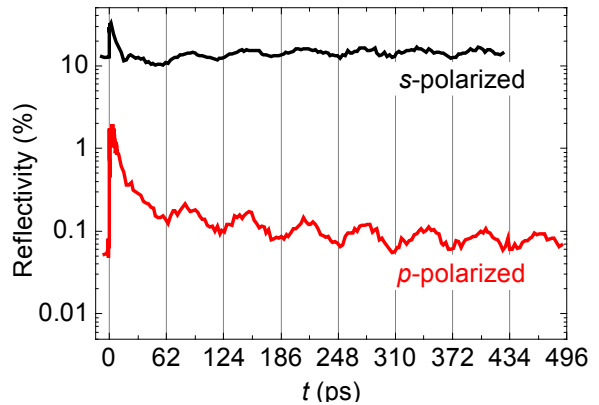


Fig. 2 Reflectivity of *s*- and *p*-polarized light with $\lambda = 795 \text{ nm}$.

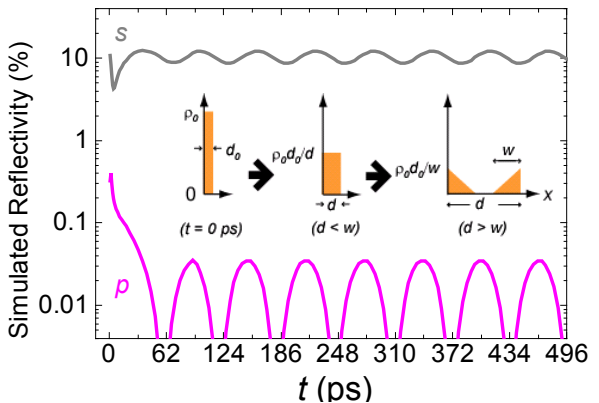


Fig. 3 Simulated reflectivity with $\lambda = 795 \text{ nm}$, $d_0 = 30 \text{ nm}$, $N_e/N_c = 2$, $w = 500 \text{ nm}$, and $v = 11100 \text{ m/s}$.

表裏面間の分離速度は約 1000 m/s と求まっている [4]。

我々は、石英試料においても同様に気液混合相が生成され、その表裏面における反射の干渉が時間分解反射率における振動として観測されたのではないかと推察した。Fig. 3 は、気液混合相内における石英の密度 $\rho(x)$ が表面からの距離 x に対して挿入図のように変化する時の反射率をシミュレートしたものである。ここで、 $t = 0$ ps における気液混合相の厚さを d_0 、密度は励起前の石英の密度 ρ_0 、キャリア密度 N_{e0} はプラズマ振動を起こす閾値 ($N_c = 1.2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$) の 2 倍とした。表裏面間距離 d が閾値 $w = 500$ nm 以下では均等に膨張し、それ以上では挿入図左のような密度分布を持って 2 つに分裂することを仮定した。このモデルは、フェムト秒レーザー光を照射によって半導体や金属表面に生成した気液混合相が希薄波によって 2 つに裂けるという結果を模したものである。この計算結果は Fig. 2 の実験結果を大変よく再現している。

この結果は、石英試料においても半導体や金属などと全く同様にアブレーションが進行することを示している。石英と半導体材料であるシリコンを比べると、バンドギャップは約 8 倍、アブレーションを引き起こすフェムト秒レーザーの閾強度は 10 倍であり、閾強度直上同士の比較において、石英はシリコンよりも 10 倍もしくはそれ以上に大きな熱流入があるものと考えられている。実際に我々が求めた気液混合相の解離速度 (約 10000 m/s) は、半導体や金属の報告値の 10 倍に達している。一方で、石英の融点 (1650 °C)・沸点 (2230 °C) はシリコンのそれ (1410 °C, 2355 °C) と同程度である。なぜこのような桁違いに大きな熱流入がありながらも、石英はクラスターや分子となって吹き飛ばすことなく、気液混合相が希薄波によって剥離するというシリコンなどとまったく同様の過程で解離するのであろうか？

我々は、融点・沸点近傍における石英の非常に高い粘性率にその答えがあるのではないかと考えた。石英の融点 1600 °C における粘性 (10^7 Pa s) はシリコンの値 ($7 \times 10^{-4} \text{ Pa s}$) 比べて 10^{10} 倍も大きい。石英は沸点以上においても液体が残存し、その粘性 (2482 °C で 340 Pa s) はなおもシリコン液体のそれを大きく上回る。このような高い粘性は SiO_2 分子が単体で存在できないことに起因している。それゆえ、フェムト秒レーザー光による非常に大きな熱入力があっても、石英はクラスターや単体分子に解離することなく、気液混合相を維持するのであろう。

参考文献

- [1] S. K. Sundaram and E. Mazur, Nat. Mater., **1**, 217 (2002).
- [2] D. Perez and L. J. Lewis, Phys. Rev. B, **67**, 184102 (2003).
- [3] P. Lorazo, L. J. Lewis, and M. Meunier, Phys. Rev. B, **73**, 134108 (2006).
- [4] D. von der Linde and H. Schüler, J. Opt. Soc. Am. B, **13**, 216 (1996).

4. 14 4 パルス分子整列による同位体選択的イオン化 Isotope-selective Ionization Using Four-pulse Alignment

赤木 浩、笠嶋 辰也、熊田 高之、板倉 隆二、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

長谷川 宗良

東京大学大学院 総合文化研究科

大島 康裕

大学共同利用機構法人 自然科学研究機構 分子科学研究所

Hiroshi AKAGI, Tatsuya KASAJIMA, Takayuki KUMADA, Ryuji ITAKURA, Atsushi YOKOYAMA,

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Hirokazu HASEGAWA

Department of Integrated Sciences, Graduate School of Arts and Sciences, The University of Tokyo

and

Yasuhiro OHSHIMA

Institute for Molecular Science, National Institutes of Natural Sciences

We have proposed a laser isotope separation method utilizing molecular alignment and non-resonant multiphoton ionization [Akagi *et al.*, *APB* 2009], and demonstrated isotope-selective ionization of $^{14}\text{N}_2$ and $^{15}\text{N}_2$ isotopomers, using one-pulse alignment [Akagi *et al.*, *APB* 2012]. In the present work, we used a train of four identical pulses, instead of one pulse, to obtain the higher selectivity.

Keywords: Molecular Laser Isotope Separation, Non-resonant Intense Laser Field, Molecular Alignment, Non-resonant Multiphoton Ionization

1. Introduction

We have proposed a laser isotope separation (LIS) method utilizing isotope selective alignment and non-resonant multiphoton ionization, and demonstrated isotope-selective ionization of $^{14}\text{N}_2$ and $^{15}\text{N}_2$ isotopomers [1]. A linearly-polarized short laser pulse created rotational wave packets in the two isotopomers, which periodically revived as aligned and anti-aligned distributions. After a specific time delay, one isotopomer was aligned and the other was anti-aligned because of their different revival times [2]. Another linearly-polarized short laser pulse at the time delay ionized the aligned isotopomer preferentially, due to angular dependence of the ionization probability [3]. In the present work, we use a train of four identical pulses for the alignment [4], instead of one pulse alignment [1], to obtain the higher selectivity.

2. Experimental method

In a vacuum chamber, molecular beam including $^{14}\text{N}_2$ and $^{15}\text{N}_2$ was intersected by a train of four identical laser pulses ($\lambda \sim 795$ nm, $\Delta\tau \sim 60$ fs, $I_0 \sim 1 \times 10^{13}$ W/cm²) and another laser pulse for ionization ($\lambda \sim 795$

nm, $\Delta t \sim 60$ fs, $I_0 = 1 \sim 3 \times 10^{13}$ W/cm²). Ions produced by the ionizing pulse were mass-selected with a Wiley-McLaren type time-of-flight mass spectrometer, and detected with a micro-channel plate. To obtain the isotope selectivity, ion yields of the isotopomers, $I(^{14}\text{N}_2^+)$ and $I(^{15}\text{N}_2^+)$ were measured as a function of the time delay t between the pulse train and the ionizing pulse.

3. Results and Discussion

At first, we set the pulse interval of the four-pulse train to be 8.38 ps ($= T_{14}^{\text{rot}}$). Ion yield $I(^{14}\text{N}_2^+)$ as a function of t showed higher peaks and deeper dips, but the peaks and dips in $I(^{15}\text{N}_2^+)$ were weaker than those in the one-pulse alignment case. These results indicate that the alignment and anti-alignment of $^{14}\text{N}_2$ were enhanced, whereas those of $^{15}\text{N}_2$ were suppressed by the pulse train with the T_{14}^{rot} interval. As a result, the isotope selectivity was not improved significantly. For a pulse train with the T_{15}^{rot} interval ($= 8.98$ ps), the selectivity was not improved again.

The next, we changed the pulse interval to 125.7 ps, which corresponds to the fifteenth full revival of $^{14}\text{N}_2$ and the fourteenth full revival of $^{15}\text{N}_2$. In this case, $I(^{14}\text{N}_2^+)$ and $I(^{15}\text{N}_2^+)$ as a function of t showed higher peaks and deeper dips than those in the one-pulse alignment case, indicating that higher alignment and anti-alignment were realized for both isotopomers [Fig. 1]. Consequently, we obtained ca. two-times higher selectivity than that in the one-pulse alignment case.

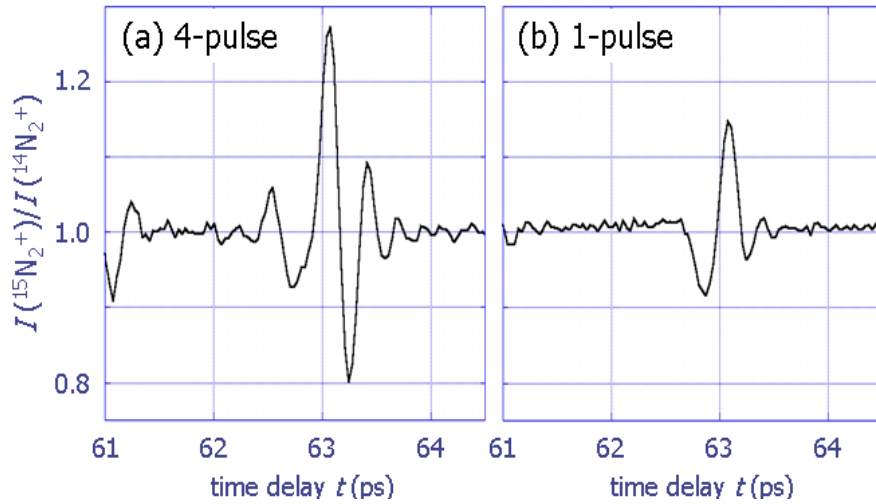


Fig. 1. (a) Ion yield ratio $I(^{15}\text{N}_2^+)/I(^{14}\text{N}_2^+)$ for four-pulse alignment as a function of time delay t . (b) Ion yield ratio for one-pulse alignment.

References

- [1] H. Akagi, T. Kasajima, T. Kumada, R. Itakura, A. Yokoyama, H. Hasegawa, Y. Ohshima, *Appl. Phys. B* **109**, 75 (2012).
- [2] H. Akagi, H. Ohba, K. Yokoyama, A. Yokoyama, K. Egashira, Y. Fujimura, *Appl. Phys. B* **95**, 17 (2009).
- [3] D. Pavičić, K.F. Lee, D.M. Rayner, P.B. Corkum, D.M. Villeneuve, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 243001 (2007).
- [4] J.P. Cryan, P.H. Bucksbaum, R.N. Coffee, *Phys. Rev. A* **80**, 063412 (2009).

4.15 Narrow-band Laser Amplifier System for Tunable UV Light Generation

Leo MATSUOKA, Masashi HASHIMOTO, Keiichi YOKOYAMA
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

We developed a Ti:Sapphire narrow-band laser amplifier system for efficient third harmonic generation. The amplifier system was composed of a wavelength tunable narrow-band regenerative amplifier and a broadband multi-pass amplifier. With a pumping of ~ 17 mJ by the second harmonics of a Nd:YLF laser, mode-locked seed pulses were amplified to ~ 1.0 mJ at 1-kHz repetition. We obtained the third harmonic wave of ~ 208 - μ J pulse energy after the wavelength conversion by two β -BBO crystals.

Keywords: Ultraviolet Laser, Picosecond Laser, Alkali Halide, Molecule, Dissociation

1. Introduction

Isotope separation is indispensable to treat some long-lived fission products by nuclear transmutation. We have recently proposed a new laser isotope selection scheme that can be applied for the gas-phase diatomic molecules in a thermal distribution [1, 2]. We are planning a demonstration of the isotope separation scheme using the alkali halide molecules, aiming for the isotope separation of CsI molecules in the near future. For the demonstration, the method for probing rotational distribution is necessary. Now we are developing the apparatus of the photo-dissociation spectroscopy of the alkali halide molecules.

The narrow-band UV laser is necessary for the photo-dissociation of the alkali halide molecules. The forth harmonic wave of a Nd:YAG laser (266 nm) is often used for this purpose [3]. However, its wavelength is generally difficult to be tuned. The tunable wavelength is useful in the energy calibration or for the step-wise ionization via Rydberg states. Recently, we had constructed a wavelength tunable Ti:Sapphire narrow-band regenerative amplifier for the photo-dissociation spectroscopy of the lithium dimer [4]. The third harmonics of the output would be applicable for the photo-dissociation spectroscopy of the alkali halide molecules; however, the output pulse energy of ~ 20 μ J was too small for the third harmonic generation. In the previous system, the pulse energy amplification was limited by the damage threshold of the Pockels cell. In this study, we have developed an additional multi-pass amplifier after the regenerative amplifier, and obtained sufficient pulse energy for the third harmonic generation.

2. Experiment & Results

The amplifier system was composed of a wavelength tunable narrow-band regenerative amplifier and a broadband multi-pass amplifier (Fig. 1a). Because we have already reported about the wavelength tunable narrow-band regenerative amplifier in the previous report [4], here we briefly describe about it. The mode-locked seed femtosecond pulses were introduced into the regenerative amplifier without pulse stretching, and amplified to ~ 20 μ J with a pumping of 1.54 mJ by the second harmonics of a Nd:YLF laser. The linewidth was narrowed to ~ 1.0 cm^{-1} by three birefringent filters and a plate of etalon in the cavity. The wavelength was tuned to 800 nm for the test measurement, and that was able to be tuned in the range from 790 nm to 860 nm by rotating the birefringent filters and tilting the incident angle of the etalon.

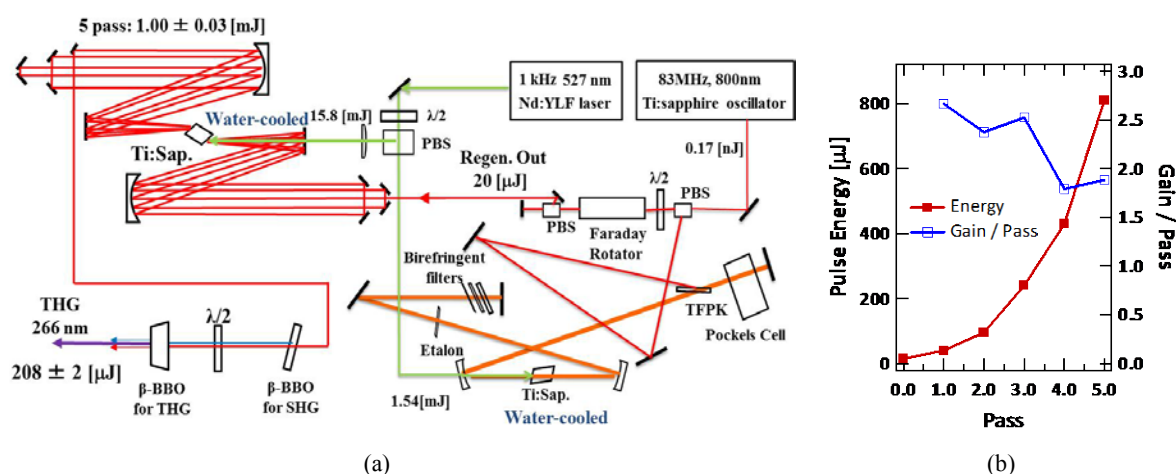


Fig. 1 (a) Schematic of the narrow-band laser amplification system and the wavelength conversion. Inserted pulse energies are typical values at 800 nm. (b) Transition of the pulse energy and the gain during multi-pass amplification at 800 nm.

Next, the amplified pulses were introduced into the multi-pass amplifier. The design of the multi-pass amplifier is based on a previous report [5]. The Ti:Sapphire crystal was cooled by water, and pumped by the Nd:YLF laser of 15.8 mJ. The output pulses from the narrow-band amplifier were introduced into the crystal by the concave mirror with the focal length of 1.0 m, and amplified to ~ 1.0 mJ after the five times passage of the crystal (Fig.1 b). The gains were gradually decreased due to the thermal lensing effect as the number of the passage increased. Also, because we used the same pump laser for both the regenerative amplifier and the multi-pass amplifier, the energy loss by the spontaneous emission of the Ti:Sapphire crystal in the multi-pass amplifier was remarkable. The pulses arrived ~ 1 μ s late from the pump pulse, whereas the lifetime of the Ti:Sapphire excitation was 3.2 μ s. After the amplification, the third harmonic wave was generated by two β -BBO crystals and a half wave plate inserted between the crystals (Fig.1 a). We did not use any lenses for the wavelength conversion because the beam diameter was compressed below 1-2 mm due to the thermal lensing effect. The pulse energy of the third harmonic wave was ~ 208 μ J at 266 nm, which was sufficient for the photo-dissociation spectroscopy of the alkali halide molecules.

3. Concluding remarks

We developed the wavelength tunable UV light source by the Ti:Sapphire narrow-band laser amplifier system and its third harmonic generation. The obtained pulse energies were sufficient for the photo-dissociation spectroscopy of the alkali halide molecules. In the present system, we can tune not only the wavelength but also the pulse duration by replacing the etalon in the cavity of the regenerative amplifier. The duration of the pulse is important for the selection of the excitation process in the molecules. We have already obtained preliminary results of the photo-dissociation spectroscopy of the KCl molecules by using the present light source.

References

- [1] K. Yokoyama, L. Matsuoka, T. Kasajima, M. Tsubouchi, and A. Yokoyama, *Advances in Intense Laser Science and Photonics*, J. Lee et al. eds. Hanoi: Publishing House for Science and Technology, pp. 113-119 (2011).
- [2] L. Matsuoka, A. Ichihara, M. Hashimoto, and K. Yokoyama, *Proc. Int. Conf. on Toward and Over the Fukushima Daiichi Accident (GLOBAL 2011)*, CD-ROM (2011).
- [3] T. -M. R. Su, and S. J. Riley, *J. Chem. Phys.*, **72**, pp. 6632-6636 (1980).
- [4] L. Matsuoka, M. Hashimoto, and K. Yokoyama, *AIP Conference Proceedings*, **1465**, pp. 58-62 (2012).
- [5] S. Adachi, N. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and S. Watanabe, *Optics Express*, **16**, pp. 14341-14352 (2008).

4.16 Theoretical Study on Isotope-Selective Rotational Excitation of Diatomic Molecules in an Optical Frequency Comb

Akira ICHIHARA, Leo MATSUOKA, Yuzuru KUROSAKI, Keiichi YOKOYAMA

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Evolution of rotational population distribution was calculated for the ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ and ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ molecules in the optical frequency comb. The populations were evaluated by the close-coupling method. The isotope selectivity decreases with the increase of the intensity of the comb electric field. The vibrational excitation is not induced by the combs employed in this study. The rotational distribution can be reproduced in the range $10 \leq J \leq 40$ by an analytic formula derived from the delta-kicked rigid rotor model.

Keywords: Optical Frequency Comb, LiCl, Close-coupling, Rotational Distribution

1. Introduction

Optical frequency combs have been applied to various fields of atomic and molecular physics such as atomic clocks, high resolution spectroscopy, and atomic coherent control. The combs may be defined in the time domain as periodic trains of phase-locked laser pulses, and in the spectral domain they may be defined as sets of regularly spaced spectral lines. In order to separate diatomic molecular isotopes in the gas phase, we consider adopting the frequency comb to induce cascaded rotational excitations.[1] The selected molecule will be excited to high rotational state by the comb, which includes spectral frequencies consistent with the transition frequencies of the molecule. In this study, we tried to select the LiCl molecular isotopes by the rotational excitations, and investigated how the intensity of the comb's electric field affects the transition probability. We also compared obtained rotational distribution with that from analytic expressions formulated on the basis of the delta-kicked rigid rotor model.

2. Computational method

The optical frequency comb was assumed to be linearly polarized, and the electric field was defined as a form of a periodic delta function by $\varepsilon(t) = \gamma/\mu(1 + 2 \sum_j \cos \omega_j t)$, where γ is the scaling factor, μ is the molecular permanent dipole moment, and ω_j is the transition frequency. Interaction was defined by the product of the electric field and the molecular transition dipole moment. The rotational distributions of ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ and ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$ were calculated using the close-coupling (CC) method with the fourth order Runge-Kutta technique. The rovibrational states and transition dipole moments were evaluated on the recently published accurate ab initio potential.[2] In CC, 2 vibrational and 200 rotational states were considered. Also, the wave packet (WP) computations were carried out in several cases in order to confirm the numerical accuracy of CC. In WP, the split operator technique was employed, and there 1024

radial and 256 angular meshes were employed. The accuracy was checked by comparing obtained rotational distributions by the CC and WP computations.

3. Formulation

To gain our understanding of the transient rotational dynamics of diatomic molecules in the optical frequency comb, we formulated the probability amplitude on the basis of the delta-kicked rigid rotor model. The angle integrals $\langle J \pm 1 | \cos \Theta | J \rangle$ are approximated to be 1/2. The transition probability $P_{rs}(t)$ from the initial r -th state to the final s -th state after time t is given by the square of the amplitude $C_{rs}(t)$. The amplitude can be written with the rotational constant B (in atomic units) as follows.

$$\begin{aligned}
 P_{rs}(t) &= |C_{rs}(t)|^2 \\
 C_{rs}(t) &= \sum_{m=0}^{\infty} \sum_{k=1}^N i^m \frac{\{\gamma \cdot \lambda_k \cdot F_{rs}(t)\}^m}{m!} y_{sk} \cdot y_{rk} \\
 \lambda_k &= 2 \cos\left(\frac{k \cdot \pi}{N+1}\right) \quad y_{jk} = \sqrt{\frac{2}{N+1}} \sin\left(\frac{j \cdot k \cdot \pi}{N+1}\right) \quad (J_{\max} = N(N-1)/2) \\
 F_{rs}(t) &= f_{rs}(t) - f_{rs}(0) \\
 f_{rr}(t) &= \frac{t}{2} + \frac{1}{2 \cdot \pi \cdot B} \sum_{j=1}^{J_{\max}} \frac{\sin(4\pi \cdot B \cdot j \cdot t)}{2j} \\
 f_{rs}(t) &= \frac{t}{2} + \frac{1}{4\pi \cdot i \cdot B_{rs}} \{\exp(2\pi \cdot i \cdot B_{rs} \cdot t)\} + \frac{1}{2} \exp\{4\pi \cdot i \cdot B_{rs} \cdot t\} \quad (r \neq s) \\
 &+ \sum_{j=0, j \neq \frac{s(s-1)-r(r-1)}{2}}^{J_{\max}-1} \frac{\exp(2\pi \cdot i \cdot B_{rs} \cdot t)}{(4\pi \cdot B_j)^2 - (2\pi \cdot B_{rs})^2} \quad \left(\begin{array}{l} B_{rs} = B\{s(s-1) - r(r-1)\} \\ B_j = B(j+1) \end{array} \right) \\
 &\times \{ 2\pi \cdot i \cdot B_{rs} \cdot \cos(4\pi \cdot B_j \cdot t) + 4\pi \cdot B_j \cdot \sin(4\pi \cdot B_j \cdot t) \}
 \end{aligned}$$

The factor N represents the number of rotational states considered.

It should be noted that if only the first term $t/2$ is taken into account in f_{rs} , the amplitude corresponds to the Bessel function of the first kind $B_{|r-s|}(\gamma \cdot t)$. Therefore, our analytic expressions are constructed from the Bessel function of the first kind, and other oscillating functions.

4. Results and discussion

Figure 1 shows the rotational population distributions as a function of J , calculated with (a) $\gamma = 2B$ and the irradiation time of $T = 40/B$, (b) $\gamma = 16B$, $T = 5/B$, and (c) $\gamma = 32B$, $T = 2.5/B$. The maximum of J considered in the field $\varepsilon(t)$ is 199.

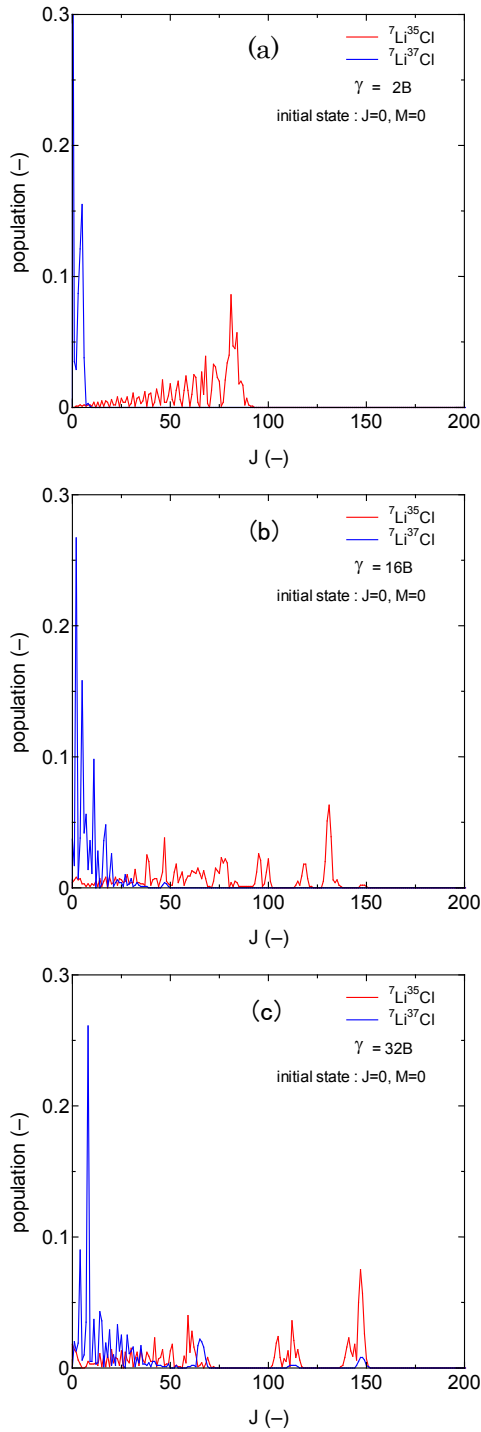


Fig.1. Rotational population distribution of LiCl:

- (a) $\gamma = 2B$ and the irradiation time of $T=40/B$,
 (b) $\gamma = 16B$, $T=5/B$, (c) $\gamma = 32B$, $T=2.5/B$.

The distributions were obtained with $B=3.238 \times 10^{-6}$ au and $\mu=2.946$ au. Initially, LiCl was assumed to be in the $(v=0, J=0)$ state. Since most LiCl molecules are in the $J < 70$ states at the boiling point of 1630 K, we tried to excite ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ isotope-selectively to high rotational states with $J > 80$.

From Fig.1(a) and (b), we see that ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ is excited isotope-selectively. In Fig.1(b), ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ is excited to the state with $J > 100$. In Fig.1(c), highly excited states with $J > 100$ were produced also in ${}^7\text{Li}^{37}\text{Cl}$, so that isotope selectivity is not expected for $\gamma \geq 32B$. The isotope selectivity decreases with the increase of the factor γ which is the scaling of the interaction. Also, in these calculations, we confirmed that the vibrational excitation is not induced by the combs employed here.

Figure 2 shows the population of rotational states of ${}^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ as a function of time. The initial state is selected as $(v=0, J=20, M=0)$. The unit of time is given by $1/2B$. Arrows indicate the time when pulses are introduced. Dots show the CC computations in which 400 rovibrational states were taken into account. The solid lines give the numerical results obtained from our analytic expressions. We can observe that the population changes discontinuously as the pulses are irradiated.

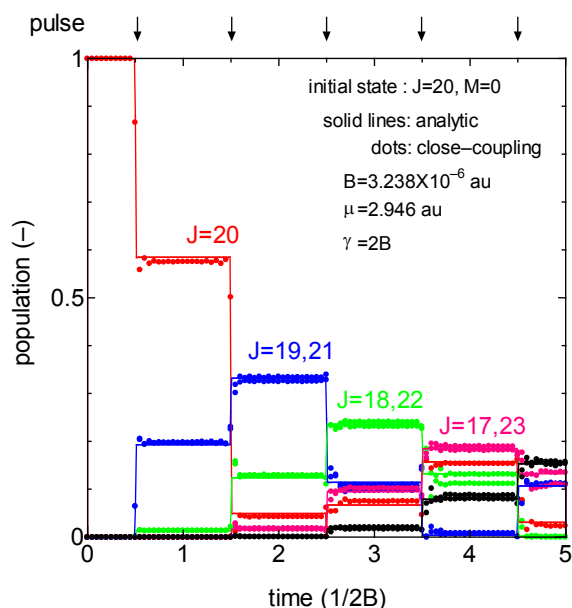


Fig.2 Population of rotational states as a function of time

In Fig.2 the populations for $J=17-23$ are given. We see that our analytic expressions can reproduce the CC computations. Both the $J=19$ and 21 (18 and 22, 17 and 23) states have nearly the same populations. We expect that our analytic expressions are applicable in the range $10 \leq J \leq 40$. The limitation of $J \geq 10$ comes from the fact that the angle integrals are approximated to $1/2$. The J -dependence of angle integrals can't be neglected in low J states. The limitation $J \leq 40$ comes from that our formulation is based on the rigid rotor model. In the rigid rotor, the transition frequencies are assumed to be the multiples of $2B$. However, in the rovibrational states of the CC method, the effect of centrifugal force is included. As a result, the deviation from the multiple of $2B$ is appreciable for $J \geq 50$. Therefore, our analytic expressions can't be applicable to $J \geq 50$.

5. Summary and concluding remarks

The isotope-selective rotational excitation was studied theoretically for LiCl in the optical frequency comb. The rotational distributions were calculated using the close-coupling methods. The rotational state of $^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ could be excited to the $J > 80$ state isotope-selectively by the comb, and our calculation shows that the isotope selectivity decreases with the increase of the field intensity. The vibrational excitation was not induced by the combs employed here. Moreover, the rotational distribution may be described by our analytic expressions if $10 \leq J \leq 40$. We will attempt to dissociate rotationally highly excited $^7\text{Li}^{35}\text{Cl}$ by another pulse. By adjusting pulse parameters, the dissociation may be induced adiabatically.

References

- [1] L. Matsuoka, A. Ichihara, M. Hashimoto, and K. Yokoyama, Proc. Int. Conf. on Toward and Over the Fukushima Daiichi Accident (GLOBAL 2011), CD-ROM (2011).
- [2] Y. Kurosaki and K. Yokoyama, J.Chem.Phys. **137**, 064305 (2012).

4. 17 水中の固体を対象とした LIBS 技術の開発

Development of Remote Laser-induced Breakdown Spectroscopy for Samples Submerged in Water

利光 正章¹、佐伯 盛久¹、大場 弘則¹、Blair Thornton²、作花 哲夫³

¹ 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

² 東京大学 生産技術研究所

³ 京都大学大学院 工学研究科

Masaaki Toshimitsu¹, Morihisa Saeki¹, Hironori Ohba¹, Blair Thornton² and Tetsuo Sakka³

¹Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

²Institute of Industrial Science, the University of Tokyo

³Graduate School of Engineering, Kyoto University

A laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) technique for element analysis of samples submerged in water using a fiber optic light delivery set-up has been developed. The set-up delivers air to the sample surface via a tube and uses the same fiber optic for laser light delivery, and for observation of the light emitted by the micro-plasma generated for analysis. The emission spectra from metals, alloys and oxide samples such as Fe, SUS304, zircaloy-2, ZrO₂ can be clearly observed at wavelengths ranging from 730 nm to 870 nm. The double pulse LIBS approach provides a significant enhancement in the intensity of LIBS emission lines up to two orders of magnitude greater than a conventional single pulse LIBS.

Keywords: Laser-induced Breakdown Spectroscopy, Fiber Optic Cable, Underwater Detection, Gas-purged Probe, Double Pulse Irradiation

1. はじめに

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災において、東京電力株式会社の福島第一原子力発電所 1～4 号機が事故に見舞われた。この事故に伴い原子炉の廃炉が決定し、廃炉措置に向けた原子炉圧力容器内外の調査を行うことが政府による中長期計画において策定された。廃炉措置では事故により溶融落下した燃料デブリを取り出すことが考えられており、原子炉内部の調査として、特に冷却水中に存在する燃料デブリの位置や成分等の状況を調べるのが不可欠となっている。しかしながら、原子炉内は高放射線量、高温多湿、含海水冷却水の存在、材料の腐食等過酷な環境下にあり、状況調査が困難であることは想像に難くない。

レーザー誘起ブレイクダウン分光法(Laser-induced breakdown spectroscopy, LIBS)は測定対象の前処理を必要としないため、迅速・遠隔・その場分析が可能であり、高放射線環境における分析方法として有効である[1]。LIBS では測定対象試料にレーザー光を集光照射してプラズマを発生させて、その発光プラズマを検出して試料のスペクトルを測定することにより元素を特定することができる。原子炉内は海水を含んだ冷却水に浸されており、測定対象部はアクセスポートからは入り組んだ場所にあるので、液中の固体の組成分析を行うためにはレーザー光を固体近傍にファイバー伝送してプラズマ発光と検出を行う必要がある。一般的に、液体中ではレーザーを試料に照射して生成したプラズマのエネルギーが液体に

より失われるため、試料から十分な発光強度が得られず、またプラズマの拡散が抑制されて自己吸収現象が生じるため、スペクトル幅が広がって元素の同定が困難となる。これを解決する方法として、液体中でも空気中と同様の条件で測定できるようにする、液体中の試料表面に空気を吹き付ける(ガスパージ)方法や[2]、試料にレーザーパルスを照射して液体中に気泡を生成し、そこに続けて次のパルスを照射する(ダブルパルス)方法などが試みられている[3,4]。

高放射線環境下では、光ファイバーは劣化して透過率が著しく低下し、特に紫外から可視波長域にかけてはほとんど光が透過せず、690 nm 以上の波長域での使用に限定される[5]。本研究では、これまでに報告されているガスパージ方式に加え、新たにガスパージとダブルパルス照射を併用したファイバー伝送 LIBS 装置を開発し、ファイバーの透過波長を考慮した条件において水中の金属および金属酸化物に適用して発光スペクトルの観測状況を調べた結果の一例を報告する。

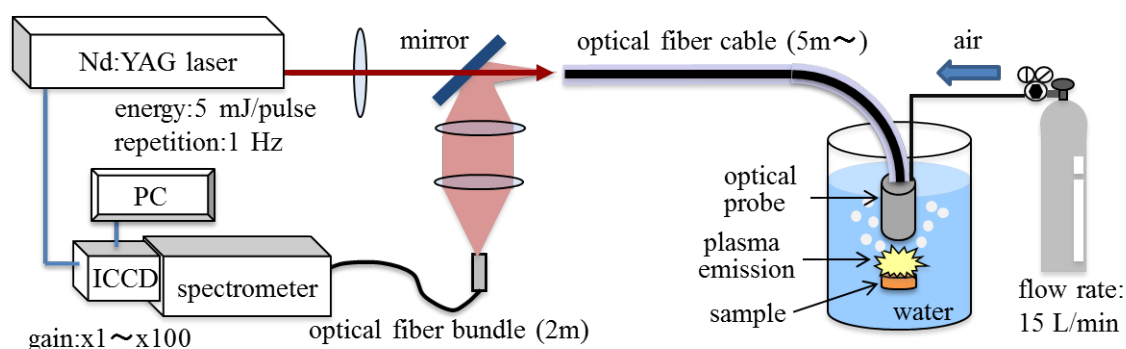


Fig.1 Schematic of remote underwater LIBS system

2. 実験方法

本研究において開発したガスパージ型ファイバー伝送 LIBS 装置を Fig.1 に示す。Nd:YAG レーザー (Continuum 社製 SLII-10) の基本波(1064 nm)を繰り返し周波数 1 Hz で発振させ、レンズおよび穴付きミラーを通した後長さ 5 m の光ファイバー(Fiberguide Industries 社製 HP-10-05-12H)に集光導入した。レーザーのエネルギーは 5 mJ とした。光ファイバーを透過したレーザー光はプローブにより集光して、水中の試料に照射した。プローブ先端から空気を流量 15 L/min で流して試料表面に吹き付けた。なお、このときの空気の圧力は 1.1 気圧であった。試料からの発光はプローブにより集光して光ファイバーに戻し、穴付き平面ミラーによりレーザー光と分離して検出光学系によりバンドルファイバーに集光して分光器 (Princeton Instruments 社製 Acton SP2300、回折格子 300 gv/mm) および ICCD (Princeton Instrument 社製 PI-MAX3:1024i) に導入してゲート付き ICCD により時間分解分光測定を行った。ICCD ゲートのタイミングはレーザーパルスから 150 ns ~ 1150 ns とし、計測積算を 1 ~ 10 回、ICCD 利得を 1 ~ 100 とした。また、ガスパージとダブルパルスを併用した LIBS では、2 台の Nd:YAG レーザー (Continuum 社製 SLII-10 および SLI-10RS) のレーザー発振の間隔を遅延発生回路 (Stanford Research Systems 社製 DG535) で調整した。その他の条件はシングルパルスの場合と同様とした。試料は、燃料デブリに含まれていると思われる、ジルコニウム合金、圧力容器構造材であるステンレス鋼を模擬して、純鉄 (>99.99%)、ステンレス鋼 (SUS304)、酸化ジルコニウム、ジルカロイ-2 (日本原子力研究所製 JAERI-Z22, Sn 1.43%, Fe 0.144%, Cr 0.096%, Ni 0.050%) とした。

3. 結果および考察

3.1 シングルパルスレーザー照射

水中で空気を吹き付けけない場合、試料の表面での発光は目視ではわずかに確認できるものの、シングルパルス照射ではスペクトル観測には至らなかった。プローブ内の光学系の調整で改善するものと思われる。これに対して水中で空気を吹き付けた場合では、空気中と同程度の強度で試料からのブレイクダウン発光スペクトルを観測することができた。

Fig.2は純鉄とステンレス鋼の発光スペクトルの観測例で 790 nm 中心に取得した。本研究で用いた回折格子や ICCD は紫外から可視波長域に良好な感度を示すタイプであるが、近赤外波長領域のスペクトルが明瞭に確認できる。元々、鉄の発光線は紫外から可視波長域に集中しており、強い発光線は特に紫外波長域に多い[6]。にもかかわらず、近赤外波長域において組成分析に十分なスペクトルが取得できることは炉内状況調査にとっては朗報である。さらに近赤外波長域では光学的遷移が少ないためにスペクトルピークの間隔が広く、多元素分析時に問題となるピーク干渉が少なくなる可能性がある。Fig.2(b)に示したステンレス鋼では、主成分である鉄の他に 18~20%含まれるクロムのピークが確認できる。8%程度含まれるニッケルは検出されなかった。生成したプラズマの温度や振動子強度などが影響していると思われる。これらの図から水中の鉄とステンレス鋼とを区別できることがわかった。しかしながら、ステンレス鋼での 750 nm 近傍の鉄のピークは純鉄のそれに比べて明らかに低い。合金の LIBS の特性なのか、クロムの影響なのか調べる必要がある。

水中の酸化ジルコニウムおよびジルカロイ-2の LIBS の結果を Fig.3(a)、(b)に示す。ジルコニウム原子の発光線も鉄と同様に紫外から可視波長域に集中している。Fig.3 の波長範囲で観測される強い発光線は 800nm 近傍の3本(807.01, 813.30, 821.26 nm)とされている[6]が、近赤外波長域において分析に十分な多くの発光線が観測されることがわかった。また、本スペクトルは、シングルパルスを 1 ショット照射して取得しており、迅速分析が可能なことを示している。なお、図からは酸化物と合金の明確なスペクトルの違いは

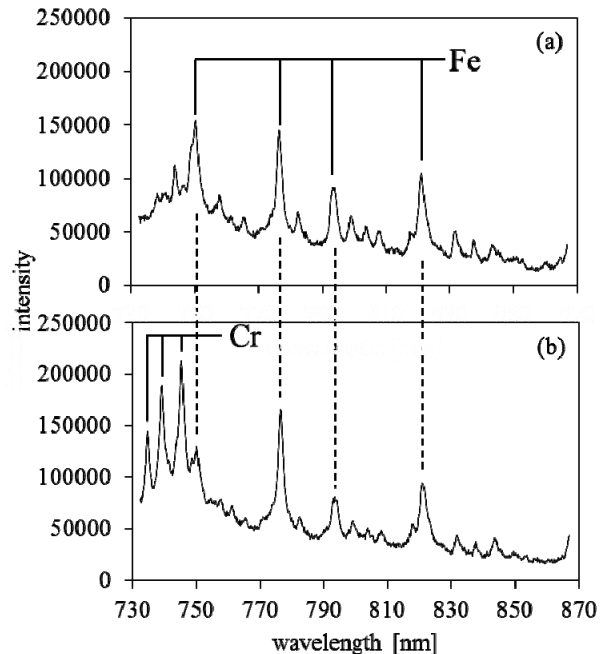


Fig.2 Emission spectra of (a) pure iron and (b) SUS304
accumulations:10 gain:10

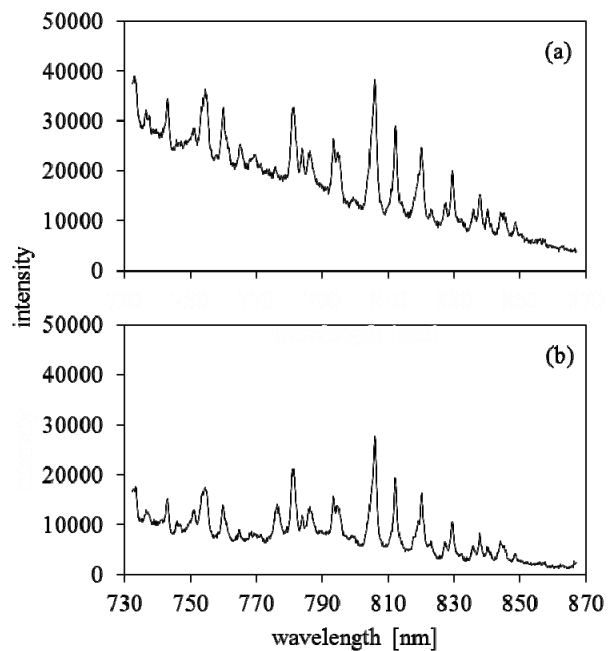


Fig.3 Emission spectra of (a) zirconium dioxide and (b) zircaloy
accumulations:1 gain:5

確認できなかった。燃料デブリは、核燃料であるウラン酸化物と、被覆管材料が酸化した酸化ジルコニウムの混合物であると推定されている。本計測においてジルコニウム酸化物の発光スペクトルが容易に取得できることを確認したが、ジルコニウムの発光線はウランの発光線と近い可能性があり、分解能の低い分光器ではスペクトルが干渉してしまいウランとジルコニウムの組成比を分析することは難しい。今後、高分解能型エシエル分光器を用いて模擬燃料デブリの観測を行う必要がある。

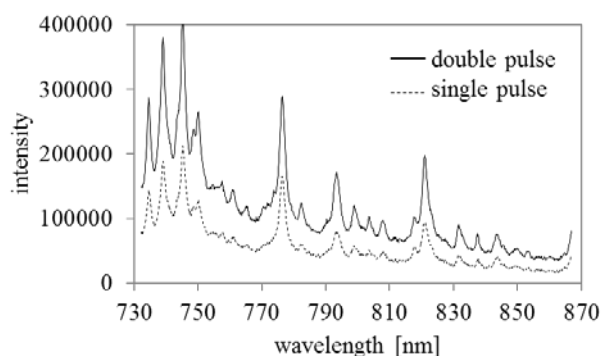


Fig.4 Comparison between double pulse LIBS with gas purge (solid line) and single pulse LIBS with gas purge (dashed line)
accumulations:10 gain:10 sample:SUS304

3.2 ダブルパルスレーザー照射

水中のステンレス鋼を対象にガスパージ方式によるシングルパルス照射およびダブルパルス照射で取得した発光スペクトルの観測例を Fig.4に示す。ダブルパルスの発振の間隔は 20 μs とした。ダブルパルスの発光強度は、シングルパルス照射に比べ、スペクトル形状がそのままではほぼ 2 倍となった。大気中 LIBS においてダブルパルスレーザー照射を行うと、発光強度が数倍から数十倍程度強くなることが知られている[7]。試作した本装置でのスペクトル取得の再現性は比較的良いものの、ダブルパルス照射による発光強度が増大する変化の割合がばらついた。より良好なスペクトル取得の再現性を得ることや観測条件の最適化のためにレーザーのエネルギー、ダブルパルスの発振の間隔、試料に吹き付ける空気の流量・圧力、および測定波長などについて、詳細に調べるのが今後の検討課題である。

4. まとめ

水中の試料の組成分析を行うためにファイバー伝送 LIBS 装置を開発し、水中の金属および金属酸化物の分析を実施した。その結果、1)ガスパージ型 LIBS にて大気中と同等の発光スペクトル強度を得ることができる、2)ファイバーの放射線の影響を受けにくい波長域にて 1 ショットで発光スペクトルが取得できる、3)ダブルパルス照射で発光強度が増大することを示した。今回は、福島第一原発の廃炉措置に向けた炉内状況調査のために、レーザーモニタリング装置の技術開発という位置付けで研究を進めているが、本研究成果は現存する原子炉等の健全性評価にも適用可能な技術である。今後、今回開発した装置の耐放射線性を調べ、原子炉内遠隔調査への適用可能性を検討する。

参考文献

- [1] "Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) Fundamentals and Applications" edited by A. W. Miziolek et al, Cambridge University Press, NEW York (2008).
- [2] D. C. S. Beddows, et al, Spectrochim. Acta, Part B **57** pp. 1461-1471 (2002).
- [3] R. Nyga, et al, Opt. Lett. **18** pp. 747-750 (1993).
- [4] A.E. Pichahchy, et al, Spectrochim. Acta Part B **52** pp. 25-39 (1997).
- [5] H. Sato et al, JAEA-Technology 2012-019 (2012).
- [6] "NIST Atomic Spectra Database ver.5", <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>
- [7] V.I. Babushok, et al, Spectrochim. Acta Part B **61** pp. 999-1014 (2006).

4. 18 非断熱遷移過程を含む異性化反応の量子最適制御

Optimal Quantum Control for Isomerization Including Nonadiabatic Processes

黒崎 譲

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

Yuzuru KUROSAKI

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Quantum optimal control calculations are carried out for an isomerization process on two potential curves having an avoided crossing. We obtain an optimal field that gives high final yield and has much lower intensity than that when only ground-state potential curve is considered.

Keywords: Quantum Optimal Control, Nonadiabatic Process, Isomerization

1. 序

本研究では、最適制御理論(optimal control theory, OCT)を用いて、遷移状態(transition state, TS)近傍での非断熱遷移過程が重要となる異性化反応の量子制御について考察する。例としてオゾン分子(O_3)の open-ring 異性化反応を対象とし、open 体を ring 体へ効率的に異性化させるレーザー場を理論的に見出すことを試みる。先に著者ら[1]は同じ系の制御について、基底状態のポテンシャル曲線のみを考えて検討した。その結果、100%近い遷移確率を与える最適レーザー場が得られたものの、その強度はイオン化が懸念されるほど大きなものであった。今回、励起状態のポテンシャル曲線を考慮することで、より強度の小さい最適レーザー場が得られることが期待される。

2. 理論と計算

Fig. 1 に、本計算で用いた異性化の Intrinsic Reaction Coordinate (IRC)に沿った diabatic ポテンシャルの対角項(V_{11}^d, V_{22}^d)及び非対角項(V_{12}^d)を示す。Fig.2 に IRC に沿った diabatic 双極子モーメント μ^d の頂角の 2 等分線上への射影値を示す。OCT 計算においては、以下に与えられる汎関数 J

$$J = \left| \langle \psi(T) | \Phi \rangle \right|^2 - \alpha_0 \int_0^T dt \varepsilon(t)^2 - 2 \operatorname{Re} \left[\langle \psi(T) | \Phi \rangle \int_0^T dt \langle \chi(t) | \frac{\partial}{\partial t} + i(H_0 - \mu \varepsilon(t)) | \psi(t) \rangle \right] \quad (1)$$

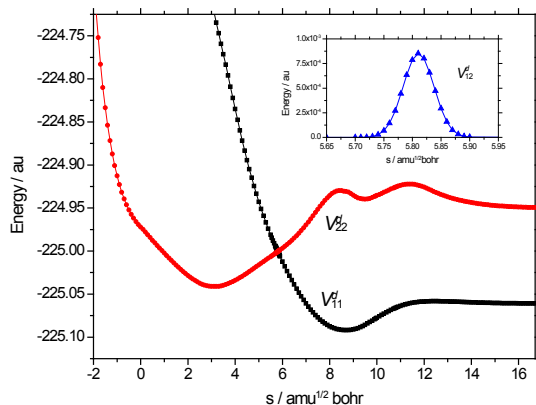


Fig. 1. Diabatic potential curves along the IRC.

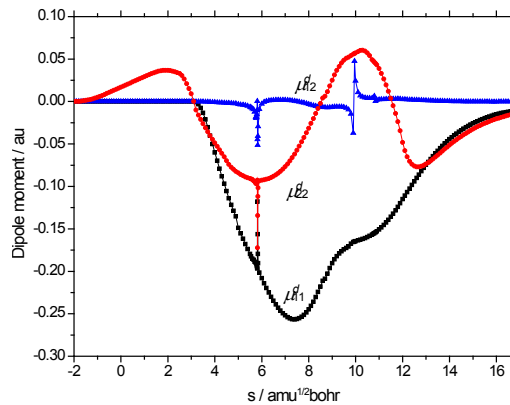


Fig. 2. Diabatic dipole moments along the IRC.

を考え、これを最大にするレーザー場 $\epsilon(t)$ を求める。 $\epsilon(t)$ は直線偏光しているとし、その向きはオゾン分子の頂角の2等分線と平行に固定する。式(1)において Φ は target 状態、すなわち ring 体の振動基底状態を表す。 α_0 は正の整数であり、第2項はレーザーのフルエンスを表す。 $\chi(t)$ は Lagrange の未定乗数である。wave packet の時間発展は行列形式の Schrödinger 方程式

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \mathbf{H} \Psi \quad (2)$$

に従う。ここで、 $\Psi = {}^t(\psi_1(t) \ \psi_2(t))$ であり、 $\psi_1(t)$ 、 $\psi_2(t)$ はそれぞれ wave packet の diabatic ポテンシャル V_{11}^d 、 V_{22}^d 上の成分である。Hamiltonian 行列は

$$\mathbf{H} = \mathbf{T} + \mathbf{V} = \begin{pmatrix} T_1 & 0 \\ 0 & T_2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} V_{11} & V_{12} \\ V_{21} & V_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_1 & 0 \\ 0 & T_2 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} V_{11}^d - \mu_{11}^d \epsilon(t) & V_{12}^d - \mu_{12}^d \epsilon(t) \\ V_{21}^d - \mu_{21}^d \epsilon(t) & V_{22}^d - \mu_{22}^d \epsilon(t) \end{pmatrix} \quad (3)$$

と書ける。したがって、この系では2つの diabatic ポテンシャル間の遷移は diabatic coupling と dipole coupling の両方により起こり得る。wave packet の時間発展計算は split-operator 法により行う：

$$\Psi(t + \Delta t) = \exp(-i\mathbf{V}\Delta t/2) \exp(-i\mathbf{T}\Delta t) \exp(-i\mathbf{V}\Delta t/2) \Psi(t) + O(\Delta t^3) \quad (4)$$

ポテンシャル行列 \mathbf{V} は非対角的であるが、Broeckhove ら[2]による diabatic ポテンシャルを直接利用する方法により式(4)を計算する。

3. 結果

OCT 計算により得られた最適レーザー場を Fig. 3 に、そのスペクトルを Fig. 4 に示す。このレーザー場は target への遷移確率 0.982 を与える。その振動数は時刻 $t = 20000$ au 付近を境に減少し (Fig. 3)、スペクトルは $\omega = 0.15$ および 0.01 hartree 付近に主な成分を持つ (Fig. 4)。よって、このレーザー場による異性化の機構は、先ず wave packet が基底状態から励起状態に励起され、次にポテンシャルの坂を下って交差点を経由し最終的に target に至るものであると理解できる。レーザー場の最大振幅は 0.212 au であり、基底状態のポテンシャルのみを考慮した場合[1]の2割程度の大きさである。このように、励起状態のポテンシャルを考慮することでより強度の小さな最適レーザー場を得ることができた。

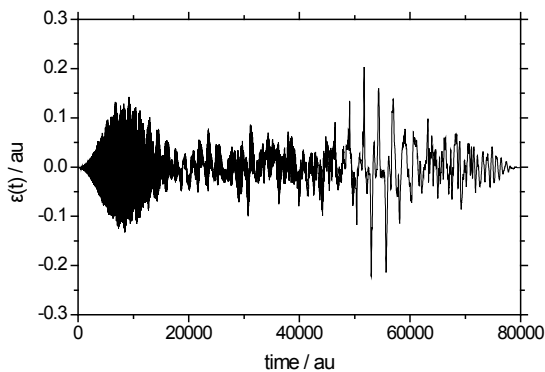


Fig. 3. Optimal electric field.

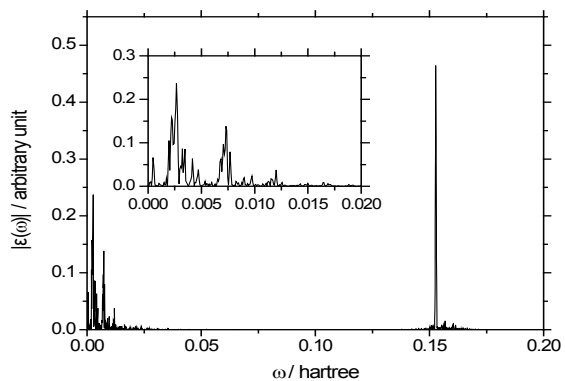


Fig. 4. The spectrum of the optimal field.

参考文献

- [1] Y. Kurosaki, M. Artamonov, T-S. Ho, and H. Rabitz, J. Chem. Phys. **131**, 044306 (2009).
- [2] J. Broeckhove, B. Feyen, L. Lathouwers, F. Arickx, and P. Van Leuven, Chem. Phys. Lett. **174**, 504 (1990).

4. 19 酸化チタン微粒子を使った高レベル放射性廃棄物からの

高融点金属および白金族金属の選択的分離

Selective Separation of Refractory and Platinum-group Metals from HLRW by TiO_2 Nanoparticles

佐伯 盛久、利光 正章、大場 弘則

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

Morihisa SAEKI, Masaaki TOSHIMITSU and Hironori OHBA

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Titanium oxide (TiO_2) nanoparticle recovers some metals by ion-exchange and photocatalyst functions. In this work, we attempted to separate the refractory and platinum-group metals from simulated solution of high-level radioactive waste (HLRW) by using TiO_2 nanoparticles, and investigate dependence of recovery efficiency on the particle size.

Keywords: TiO_2 Nanoparticle, Ion Exchange, Photocatalyst, Refractory Metals, Platinum-group Metals, Particle-size Dependence

1. 序

原子力発電施設から取り出した使用済核燃料の処理工程では、マイナーアクチノイド、ランタノイド、モリブデン Mo などの高融点金属や白金族金属（パラジウム Pd、ロジウム Rh、ルテニウム Ru）など数多くの核種が溶解した高レベル放射性廃液が発生する。高レベル放射性廃液（HLRW）は最終的にはガラス固化後、埋設処分されることが計画されているが、その中に含まれる高融点金属や白金族金属はガラス固化体の物性を大きく変化させるので、ガラス溶融炉内での均一な加熱を阻害したり、またガラス固化体の本数を増大させる原因になる。高融点金属や白金族金属を HLRW から分離・回収することができれば廃棄物処理工程を円滑に進めることができる。この目的のため我々は高放射線場に対応した遠隔操作が可能な、光還元反応を利用した金属分離法の研究を進めてきた。

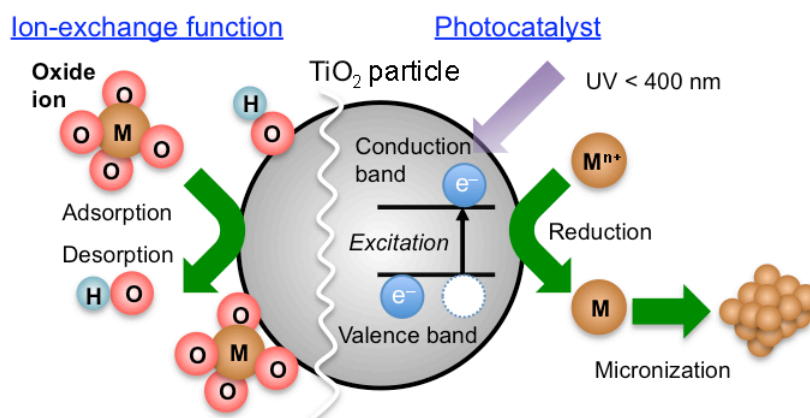


Fig.1 Recovery of metals by ion-exchange and photocatalyst functions of the TiO_2 particle

一方、酸化チタン(TiO_2)微粒子は Fig. 1 に示すように、イオン交換および光触媒作用を併せ持ち、これらの機能により様々な金属を回収することができる。イオン交換作用では、酸化物イオンを共存させると TiO_2 微粒子表面を修飾しているOH基が脱離し、その代わりに酸化物イオンが吸着する[1]。また、光触媒作用では、白金族金属イオンと TiO_2 微粒子が共存した系に 400nm よりも短波長の紫外光を照射すると、光還元反応により白金族金属イオンが電氣的に中性化する[2]。中性になった白金族金属は自発的に凝集し、微粒子を形成するので、遠心分離などの方法により回収することができる。本研究ではこの TiO_2 微粒子の金属回収作用に着目し、HLRW の模擬溶液に適用した時にどのような金属が分離・回収されるか、また TiO_2 微粒子の粒径により回収効率がどのように変化するかを調べたので、報告する。

2. 実験

各々が 0.4–1.8mM の濃度になるように調整した Sr, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Cs, Ba, Nd イオンの 0.3M 硝酸溶液を HLRW の模擬溶液として準備した。模擬溶液に粒径 7–200nm の TiO_2 微粒子(アナターゼ型)および等体積量のエタノールを添加した試料溶液を石英セルに入れ、攪拌してイオン交換作用により金属酸化物を回収した。また、光触媒作用を調べる時には、同様の手順で調整した試料溶液に、攪拌しながら 1W に調整した水銀キセノンランプ光(定格 200W、溶融石英窓)を照射し、光還元反応により試料溶液中の白金族金属を微粒子化した。Fig. 2 に今回使用した TiO_2 微粒子の吸収スペクトルと水銀キセノンランプの発光スペクトルを比較して示す。これより、 TiO_2 微粒子は 400nm よりも短波長側に強い吸収を持ち、水銀キセノンランプの 313 および 365nm の発光線を吸収することがわかる。5–60 分間攪拌またはランプ光照射をした後、試料溶液を遠心分離にかけ、金属が吸着した TiO_2 微粒子および生成した白金族金属微粒子を回収した。金属回収後、上澄に残存するイオンの濃度を誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS)装置により定量し、次の定義式に基づき、このプロセスにおける金属イオン回収率を算出した。

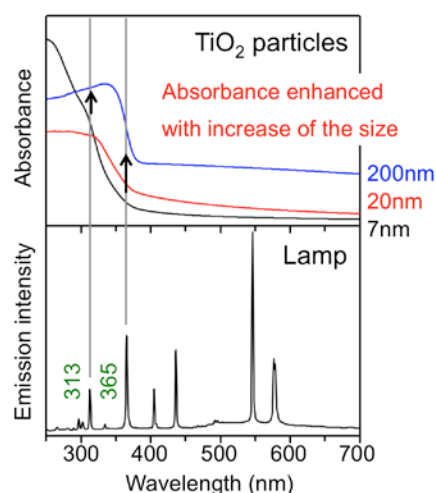


Fig.2 Absorption spectra of the TiO_2 particle and emission spectrum of Hg-Xe lamp

$$\text{回収率(\%)} = \frac{\text{イオン濃度(金属回収前)} - \text{イオン濃度(金属回収後)}}{\text{イオン濃度(金属回収前)}}$$

また、遠心分離による回収物を X 線回折(XRD)や走査透過電子顕微鏡によるエネルギー分散型 X 線(STEM-EDS)分析により観察した。

3. 結果と考察

Fig. 3 は模擬溶液に粒径 200nm の TiO_2 微粒子を 5g/L 添加し、60 分間攪拌および攪拌+ランプ照射した時の、各金属イオンに対する回収率を棒グラフで表したものである。なお、回収率の実験誤差は<5%である。Fig. 3 では、模擬溶液と TiO_2 微粒子の混合溶液を攪拌しただけで、Mo が 30%、Zr も 10%程度回収されており、イオン交換作用によりこれらの金属を分離できることがわかった。Mo は pH1 以上では一部が $\text{Mo}_7\text{O}_{24}^{6-}$ 等の形態で存在することが知られており[3–5]、試料溶液中に酸化物負イオンとして溶解

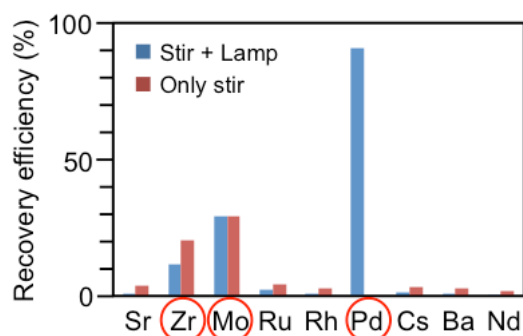


Fig. 3 Recovery efficiency of metals

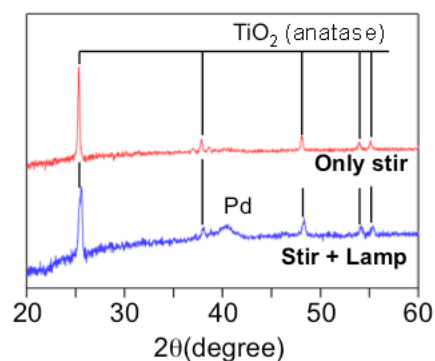


Fig. 4 XRD pattern of the precipitation

するMoおよびZrがTiO₂微粒子により回収されたものと考えられる。一方、攪拌+ランプ照射時にはMo, Zrに加えて90%程度のPdを回収できていることがわかる。回収物をXRDで調べた結果、攪拌のみの場合にはTiO₂微粒子由来の回折ピークしか見えないのに対し、攪拌+ランプ照射時にはPd微粒子由来のピークが42°付近に観測された(Fig. 4)。このピークはTiO₂微粒子よりも幅が広がっていることより、ナノサイズのPd微粒子が生成していると考えられる。さらに、攪拌+ランプ照射時の回収物をSTEMで調べたところ、Fig.5(a)に示すように200nm程度の微粒子に混じって、粒径10-20nmのナノ微粒子が生成している様子が観察された。さらにFig.5(b)–(c)に示すように、Ti, Pd, OについてEDS分析に基づく元素マッピングをした結果、200nm程度の微粒子はTiO₂微粒子、ナノ微粒子はPd微粒子に帰属することができ、両者は別々に分布していることがわかった。

次に、金属回収効率に対するTiO₂微粒子の粒径依存性を調べるため、質量濃度を一定(0.2g/L)にしたままで添加するTiO₂微粒子の粒径のみを変えた時の元素回収率の変化を調べた。その結果、Table 1に示すように、粒径が大きくなるにつれてPdの回収率は増大するのに対し、Moの回収率は減少することがわかった。同じ質量濃度条件下では微粒子のサイズが大きくなれば表面積の総和は減るので、触媒としての反応効率は粒径の増大とともに減少するはずであり、Moの回収率の変化はこの傾向と一致している。一方、Pdでは逆の変化をしており、表面積の変化では説明できない。TiO₂微粒子の吸収スペクトルの粒径依存性を見ると(Fig. 2)、粒径が大きくなるにつれて光還元反応に大きく寄与している313および365nmにおける吸光度が増加していることがわかる。よって、Pdの回収効率の変化はTiO₂微粒子の吸光度の増加に由来するものと考えられる。

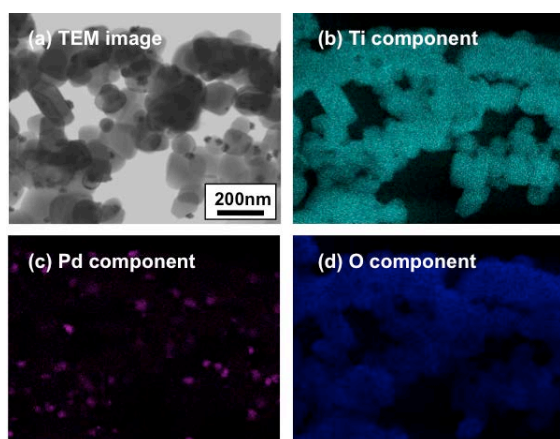


Fig. 5 STEM-EDX analysis of recovered materials in the photo irradiation

Table 1 Dependence of recovery efficiency on TiO₂ particle size

Concentration of TiO ₂	Recovery efficiency (%)		
	7nm	20nm	200nm
0.2g/L			
Mo	13	0	4
Pd	59	71	78
2.0g/L			
Mo	59	45	14
Pd	92	96	95

謝辞

微粒子の STEM-EDX 観察に際しては、野際公宏研究員(安全研究センター高経年化評価・保全研究グループ)に協力して頂きました。ここに謝意を表します。

参考文献

- [1] Miyai, Y. et al., Bulletin of the Society of Sea Water Science, Japan, **36** pp. 240-244 (1982).
- [2] T. Kitamori, et al., Process and apparatus fot oxidizing or reducing dissolved substance. U. S. Patent. United States, Hitachi, Ltd., Tokyo. Japan. **4**, 774, 026. (2006).
- [3] J. J. Cruywage an J. B. Heyns, Inorg. Chem. **26**, pp. 2569-2572 (1987).
- [4] K. Murata et al., J. Inorg. Nucl. Chem., J. Inorg. Nucl. Chem., **32**, pp. 267-275 (1970).
- [5] W. M. Carmichael and D. A. Edwards, J. Inorg. Nucl. Chem., **32**, pp. 1199-1207 (1970).

4.20 液体フローを用いたレーザー誘起ブレイクダウン分光 による溶存元素の分析

Analysis of Elements in Aqueous Solution Using Laser-induced Breakdown Spectroscopy with Two Types of Liquid Flows

太場 弘則¹、利光 正章¹、佐伯 盛久¹、田邊 里枝²、伊藤 義郎²、若井田 育夫¹

¹ 日本原子力研究開発機構、² 長岡技術科学大学

Hironori Ohba¹, Masaaki Toshimitsu¹, Rie Tanabe², Yoshiro Ito² and Ikuo Wakaida¹

¹Japan Atomic Energy Agency, ²Nagaoka University of Technology

We investigated the feasibility of laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) for the determination of elements in a liquid solution in the form of a jet flow and using nanosecond laser pulses. A comparison of LIBS sensitivity between two types of flows for liquid analysis was performed. A pipette nozzle tip was used to create a columnar flow of 520- μ m diameter, whereas a trapezoidal-shaped groove nozzle tip produced an ultrathin sheet flow of 5~20- μ m thickness. The limit of detection of Na atoms was estimated to be about 14 ng/mL by use of the columnar flow, whereas 1.1 ng/mL in the case of the sheet flow.

Keywords: Laser-induced Breakdown Spectroscopy, Aqueous Solution, Liquid-flow Jet, Sodium

1. はじめに

液体を対象にしたレーザー誘起ブレイクダウン分光分析(LIBS)において、気液界面あるいは石英セル等を用いた閉鎖系溶液試料を用いる場合、自由表面での溶液の波立ちによるプラズマの不安定性や液中でのプラズマ発光の短寿命性[1]、セルからの発光あるいはセルの損傷等が問題となる。この問題の解決策として、ノズルから噴出するフロー液柱を LIBS に適用する方法が考えられている。通常、フロー液柱を適用する場合は飛沫によるレーザー光及び蛍光の減衰が生じる。これを防ぐために不活性ガス等をフローと同方向に導入するが[2]、ガスの発光による背景信号の上昇や装置の複雑化を招く。本研究では、核燃料再処理工程管理や物質移動検認に適用できる溶存元素モニタリング技術の開発につなげるために、液柱フロージェットと液体シートフロージェットについて、発光スペクトルとレーザー照射時のフロー液体形状変化を観測してそれぞれの LIBS 特性を比較したので、その結果について報告する。

2. 液体シートフローの形成

液体シートは流体を加圧導入して液柱を交差させて液柱間の表面張力により薄膜を形成させる[3]。Fig.1 に精製水を送液ポンプで循環し、外径 4 mm のステンレス製ノズルから噴出させて液体薄膜を形成している様子を示す。送液ポンプを用いると、液体薄膜にはポンプ回転数に起因する脈動が発生する。これを抑制するためにポンプ出口側に圧力計付パルスダンパー（液溜め）を設けている。瞬時流量はパルスダンパーとノズルの間に流量計を取り付けて測定した。流量を変化させて液体薄膜の形状を観察すると、ここで用いたノズルでは、100~150 mL/min 時に薄膜が安

定して形成されることがわかった。ポンプ速度を調節して流量を変化させると液体薄膜の長さとも最大幅はともに流量に比例して変化するが、長さとも最大幅の比は流量の変化に対してほぼ一定となった。液体薄膜の膜厚はハロゲン白色光源を用いた分光干渉法により反射スペクトルを分光して測定した。Fig.2 にノズル出口からの距離に対する中心軸方向の膜厚を示した。下方写真は流量 131 mL/min 時の薄膜形成状況であり、ノズル出口をグラフの 0 点に合わせている。この時の流速はノズル開口部断面積から 12 m/s と見積られる。薄膜長さ 5~45 mm に対して膜厚は 37~5 μm となって反比例関係にあり、流量には依存しないことがわかる。



Fig.1 Photo of liquid sheet

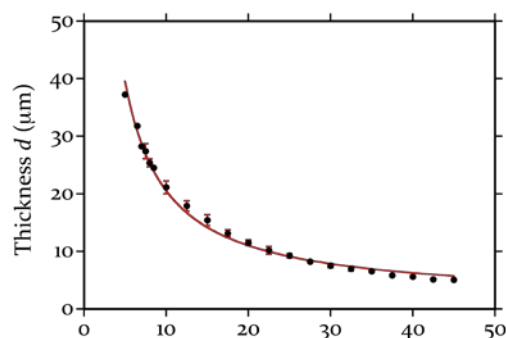


Fig.2 Thickness distribution of liquid sheet

3. 実験方法

ブレイクダウンプラズマ発光観測は、ナトリウム水溶液を用いて行った。Fig.3 に循環装置ノズルフローを利用した LIBS 実験装置の概略図を示す。液柱フロー形成には内径 0.52 mm のピペットチップを用いた。Nd:YAG パルスレーザーの基本波を焦点距離 100 mm の平凸レンズで水溶液気液界面近傍に集光してブレイクダウンプラズマを生成させた。プラズマ発光部を焦点距離 100 mm の平凸レンズペアを用いてバンドルファイバに集光し、焦点距離 0.3 m のツェルニーターナー型分光器に導入後、ICCD 検出器を用いて分光計測した。レーザーエネルギー、液体流速、フロージェットへの照射位置、ICCD 測光ゲート幅および測光遅延時間について、発光スペクトル信号強度とバックグラウンド信号強度の比の優れた条件を、濃度 1 ppm の水溶液で探索した後、最適条件下で発光スペクトルの濃度依存性を調べた。なお、レーザーショット数は、最適条件探索では 100、濃度依存性では 500 とした。

また、液体フロージェットへのレーザー照射から時間差を設けてフロージェットの側面から発光部に向けて Nd:YAG パルスレーザーの第 2 高調波をビームエキスパンダで拡大して投光

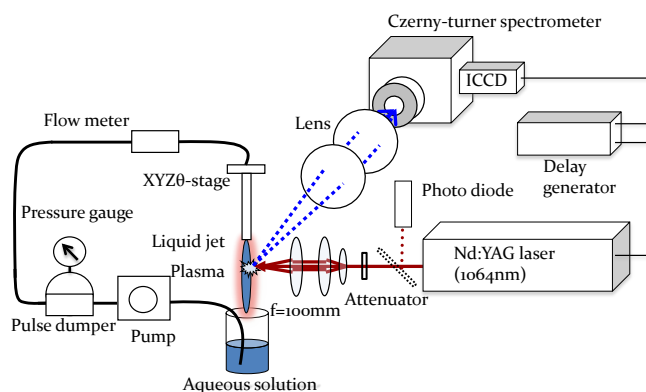


Fig.3 Schematic drawing of LIBS set-up

し、レーザー照射部のシャドウグラフが撮影できることを利用して、ブレイクダウンプラズマ生成時のフロージェット形状変化の時間空間分解観測を行った[4]。投光するレーザーショットごとにブレイクダウン用レーザーの発振と ICCD 検出器あるいは毎秒 100 万コマで撮影できる高速度ビデオカメラのゲートのタイミングを変えながら行い、フロージェット形状の動的過程を調べた。

4. 結果および考察

Figure 4 は最適条件下でのナトリウム発光スペクトル強度の濃度依存性を示す。スペクトル観測条件はレーザーエネルギーがそれぞれ 75 mJ、125 mJ、ICCD ゲート幅、測光ゲート遅延時間はともにそれぞれ 20 μ s、35 μ s とした。液柱フローおよび液体シートフローいずれの場合も良好な直線性が得られ相関係数は >0.99 であった。液柱フローと液体シートフローとで直線の傾きは 5 倍以上であり、感度に大きな差があることが示された。さらに液体フローへのレーザー照射位置を最適化して検量線

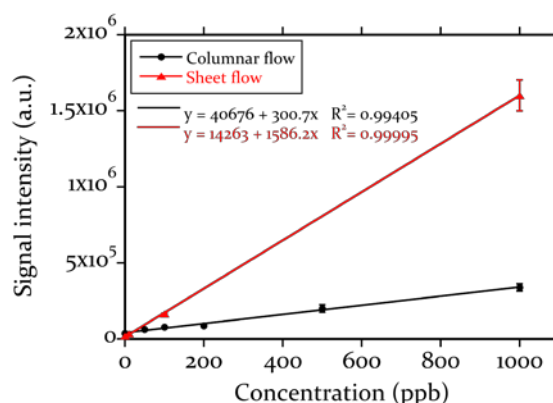


Fig.4 Relation between signal intensity and concentration of Na aqueous solution.

を作成したところ、液柱フローで 14 ng/mL、液体シートフローでは 1.1 ng/mL の検出下限を得た。検出下限 1.1ng/mL は市販の誘導結合プラズマ発光分光装置と同等の性能である。

Figure 5 は液体フロージェットの形状について、エネルギーが 25 mJ のレーザー光を照射した直後から 15 μ s までを ICCD 検出器で観測したシャドウグラフである。照射後直ちにレーザー入射の後方に向かう衝撃波が発生し伝播する。レーザー入射前方にも衝撃波は形成されるが、液体シートフローでは小さく、液柱フローでは比較的大きい。

衝撃波の伝播の後、フロージェットから飛沫が噴出する様子が確認できる。また、飛沫噴出の形態が液柱フローと液体シートフローとでは大きく異なっているのがわかる。液柱フロージェットではレーザー入射の前後双方向に多量の飛沫が噴出飛散する。一方液体シートフロージェットではレーザー入射前方のみ飛沫が噴出し、その量も少ない。多量の飛沫の

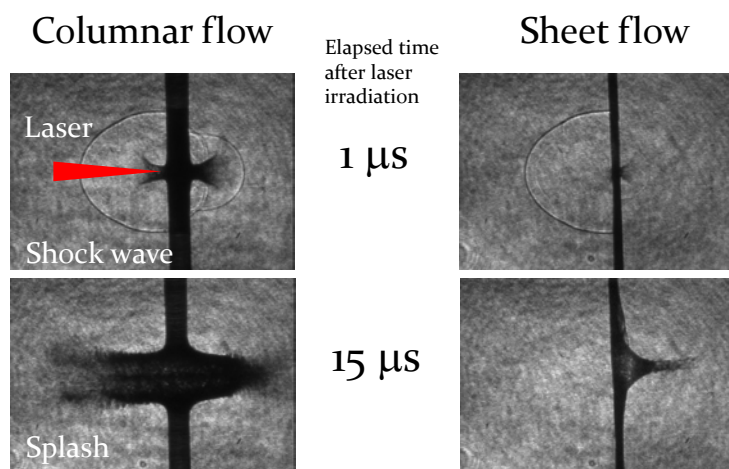


Fig.5 Time evolution of change of the flowing jet shape after laser irradiation

存在は、プラズマ発光の検出系への導入を遮るだけでなく、プラズマの吸収も引き起こすために正確なプラズマ発光スペクトルが観測できていない可能性がある。液体シートフローでは液体の量が多いために飛沫も多量に発生する。その結果、感度は液体シートに比べて劣ると考えられる。しかし、液体シートフロージェットでは何故このようにプラズマ発光強度が強いのかは不明である。今後より詳細にプラズマおよび飛散飛沫の挙動を調べる必要がある。

5. おわりに

溶存元素の高感度分析を行うために溶液循環型フロージェットタイプの LIBS 装置を構築し、液柱フローと液体シートフローの2つのタイプのジェットノズルを用いて比較した。LIBS 発光スペクトル取得特性測定およびフロージェット形状の時間分解観測を行った結果、液体シートフローを用いることにより高感度の分析が可能になったことがわかった。

謝辞

本報告は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本原子力研究開発機構が実施した平成22、23、24年度「次世代燃料の遠隔分析技術開発と MOX 燃料による実証的研究」の成果を含みます。また、本研究の一部は、文部科学省科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金(24560068)によって実施されたものです。

参考文献

- [1] A. DeGiacomo, M. Dell'aglio, O. Depascale, Appl. Phys. A79 1035 (2004).
- [2] Y. Ito, O. Ueki, S. Nakamura, Anal. Chim. Acta 299 401 (1995).
- [3] A. Watanabe, H. Saito, Y. Ishida, M. Nakamoto, T. Yajima, Optics Comm. 71 301 (1989).
- [4] R.Tanabe, H.Kusano and Y.Ito, SPIE 7126, 71260M-1-9 (2009).

4. 21 低温冷却型 Yb:YLF チャープパルス再生増幅レーザーの開発

Development of Cryogenically-cooled Yb:YLF Chirped-pulse Regenerative Amplification Laser

赤羽 温、小川 奏、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 and Koichi Yamakawa

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

As a pump source for picosecond optical-parametric chirped-pulse amplification (OPCPA), we have been developing cryogenically-cooled Yb:YLF chirped-pulse regenerative amplification laser. Currently over 100 mJ output have been obtained from regen at 10 Hz operation, which is, to our knowledge, the highest output from single-stage regenerative amplifier in the world. The output pulse is confirmed to be compressed to 2 ps in duration without pedestals. Upgrading of this regen for 100 Hz operation is underway, which will enable us to apply to a powerful pump laser for not only OPCPA but also many kinds of nonlinear processes in near future.

Keywords: Chirped-pulse Amplification, Regenerative Amplification, Ytterbium-doped Laser Material Self-focusing, Self-phase Modulation

1. はじめに

近年光パラメトリックチャープパルス増幅 (OPCPA) を用いた数サイクル高強度レーザーシステムの励起光源として、高エネルギーの繰り返しピコ秒レーザーが脚光を浴びている[1,2]。イッテルビウム(Yb)添加レーザー媒質はその高い量子効率 (90%以上) と半導体レーザー (LD) 励起が容易であることから高エネルギーピコ秒レーザーの利得媒質として最適である。従来常温の Yb 添加媒質では熱的励起準位における発振レーザー光の再吸収が存在するため、高効率動作が阻害されていた。この問題に対して我々はレーザー結晶を液体窒素温度まで冷却することにより再吸収を抑制し、高効率動作を可能にする手法を確立した[3,4]。本研究では広帯域 (蛍光バンド幅 18nm 以上) 長励起寿命 (1.8 ms) である低温冷却 Yb:YLF 結晶をレーザー媒質に用いて高エネルギー出力が可能なピコ秒チャープパルス増幅レーザー装置の開発を行った。

2. 実験・結果

開発した低温冷却型 Yb:YLF 再生増幅器の構成を Fig. 1 に示す。再生増幅器のモードサイズは 2.3 mm で、全長 4.3 m のキャビティは 2 枚の長焦点凹面ミラーで構成され、高エネルギー増幅時の自己収束に強い設計になっている。この再生増幅器へモードロック発振器 (中心波長 1020 nm、パルス幅 57 fs) からの出力を回折格子対パルス伸張器により 2ns (チャープレート 100 ps/nm) までパルス伸張させシード光として入力し、Fig. 1 中の 4 台のファイバーカップル LD (パルス幅 4 ms、合計出力パワー590W) の励起により増幅した。再生増幅器の 10 Hz 動作時の増幅特性を Fig. 2 に示す。実験では 570W の入力 LD パワー時に最大 107 mJ の出力パルスが得られた。この

エネルギー及び増幅利得 10^9 は再生増幅器 1 台で得られる利得としては世界最大である。

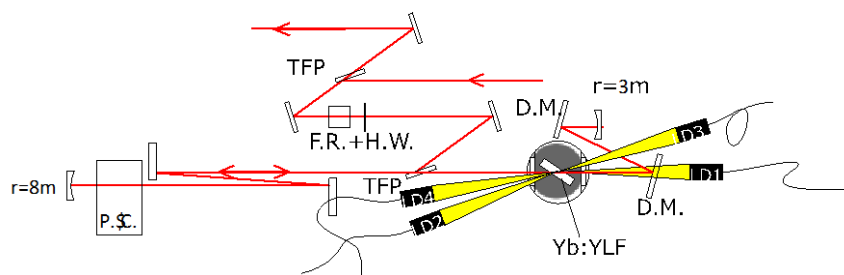


Fig.1 Layout of cryogenically-cooled Yb:YLF regenerative amplifier. D.M.: Dichroic mirror, F.R.: Faraday rotator, H.W.: Half waveplate, LDs : Fiber-coupled laser diode, P.C.: Pockels cell, TFP: Thin-film polarizer.

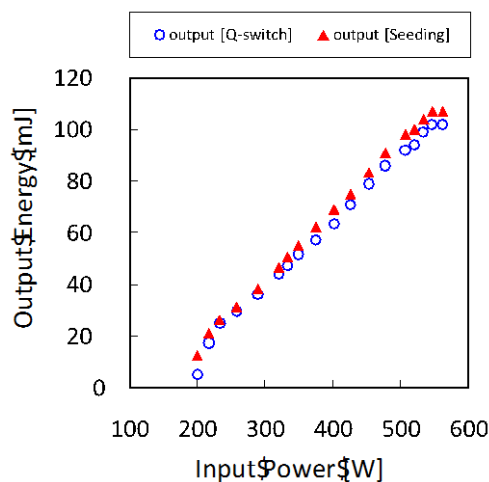


Fig.2 Output performance of Yb:YLF regen.

通常再生増幅器の様な小さな結晶領域で高利得の増幅を行うと自己位相変調が起こり、増幅光のパルス圧縮時にペDESTAL等々の要因となる。この問題に対処するため本研究では増幅前のシード光を前述の回折格子対パルス伸張器に加えてファイバーストレッチャーでパルス伸張することによりチャープレートに 150 ps/nm まで大きくし、 100 mJ 増幅時と同等の非線形効果が発生する増幅条件で自己位相変調の抑制を試みた。その結果 Fig. 3 の赤丸線に示す自己相関波形の様に 100 mJ 増幅時にもクリーンな時間波形の 2 ps パルスが発生可能であることを確認した。

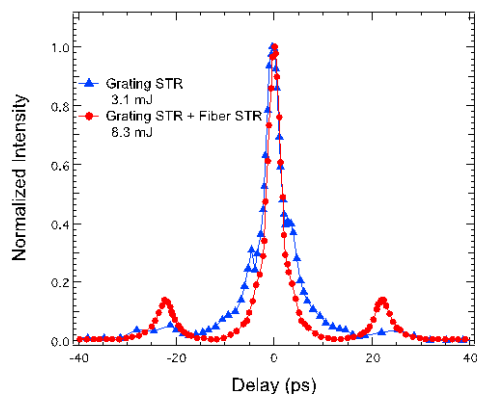


Fig.3 Autocorrelation traces of compressed output pulses

また本研究ではLD励起のメリットを活かして100 Hz繰り返しでの高エネルギー動作も目指している。現在までに結晶の熱除去に最も有効な結晶サイズ及び Yb ドープ量、結晶ホルダーを設計開発し、熱レンズ効果に強いキャビティを構築することで 35 mJ 出力が達成されている。

3. まとめ

数サイクル高強度 OPCPA レーザーシステムの励起光源として、ピコ秒パルス幅の低温冷却型 Yb:YLF チャープパルス再生増幅レーザーの開発を行った。再生増幅器からは最大 107 mJ の増幅パルスが得られ、この増幅エネルギー及び増幅利得は単体の再生増幅器で得られるものとしては世界最大である。シード光のチャープレートを大きくすることで増幅パルスは自己位相変調の影響を受けず、ペDESTALの発生を伴わないクリーンなパルス圧縮が可能である。この様な高エネルギーピコ秒レーザーはOPCPAのポンプ光としてだけでなく和・差周波発生等の非線形効果の誘起光として今後様々な形での応用が期待される。

参考文献

- [1] N. Ishii et al., Opt. Lett., **30** pp. 567-569 (2005).
- [2] S. Witte, et al., Opt. Express, **14** pp. 8168-8177 (2006).
- [3] J. Kawanaka, et al., Opt. Lett., **28** pp. 2121-2123 (2003).
- [4] Y. Akahane, et al., Opt. Lett., **32** pp. 1899-1901 (2007).

4.22 福島原子力発電所事故のための内部検査技術開発

Development of Internal Inspection Technology for the Seriously Damaged Fukushima BWRs

富吉 健太郎, 西村 昭彦, 伊東 富由美

独立行政法人日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門 光量子融合研究グループ

K. TOMIYOSHI, A. NISHIMURA, F. ITO

Quantum Beam Science Directorate, Applied Laser Technology Development Group

Japan Atomic Energy Agency

TEPCO is now investigating the Fukushima BWRs. However the nuclear fuel molten debris in the RPV has not been found yet. Our group has started to develop a new probing system to find it since April, 2012. The probing system can be used underwater and in the high radiation dose area. It would have a visual sensing function which consists of a waterproof scope, an image fiber, a CCD camera and so on.

Keywords: Endoscope, Image Fiber, Predictive Maintenance

1. はじめに

現在、福島原子力発電所事故により、格納容器及び圧力容器内部を観察する技術の確立が喫急の課題である[1]。遠隔の画像を取得する方法として、内視鏡カメラがある。現在の小型高解像度 CCD カメラをスコープ先端に取り付けた場合、高線量かつ水中または高湿度環境下では CCD カメラが破損してしまい、画像の取得は困難である。

私たちのグループでは、これまで複合型光ファイバを用いた FBR 熱交換器伝熱管の保守保全技術の開発を行ってきた[2]。原子力機構福島第一原子力発電所事故の対処に係る研究開発[3]では、これまでの技術を活かし、格納容器及び圧力容器内部を観察することが求められている。このためには、 $10^2 \sim 10^4$ Gy/hr の高線量下において、狭隘な配管内部を通過させて、水中又は高湿度環境下で可視化画像による観察が可能なファイバプローブの開発が必要となる。

今回は、映像ファイバを用いた水中観察技術の確立を目指すため、第一段階として簡易型の防水型ファイバスコープ観察装置を製作し、水中での画像の取得方法を検討したので報告する。

2. 装置概要

本研究では、映像ファイバで取得した画像を遠隔に置かれた CCD カメラまで伝送することが目的である。伝送距離は、福島原子力発電所の構造より 30m 以上必要となる。画像の精度は、使用するファイバの画素数に依存する。ここで先端のスコープ部分が重要である。これまでのスコープはレーザ加工のための微小スポットを得ることが必要であったために、使用した複合型光ファイバの直径 0.8mm (2万画素) では局所的な観察しか得られていない。そこで本研究では、超広角レンズと縮小光学系の導入により、広角の画像を捕らえることを試みた。また、CCD カメラは、30 万画素のアナログ CCD カメラを使用した。

一般的にスコープは、対物レンズと接眼レンズの2種の組み合わせから構成される[4]。色収差等の補正のために異なる材質のガラスが組み合わせられている。ここでは、超広角レンズで取得した画像を縮小光

光学系にて映像ファイバの 0.8mm まで縮小して画像を伝送する。縮小光学系は 10 倍から 100 倍までの対物レンズを用いて、超広角レンズで取得した画像を縮小して映像ファイバに伝送した。画像伝送を行わない CCD カメラ単体での画像との比較の結果、40 倍の対物レンズが最適と判断した。また、本研究の目的として、大気中のみならず、水中での撮影を可能にするため、映像ファイバ及び先端部を防水型とする必要がある。そのため、超広角レンズ、縮小光学系及び映像ファイバを一つにまとめた、防水型ファイバスコープを開発した。

取得した画像は、CCD カメラによりパソコンで記録出来るシステムとした。Fig.1 に装置概略図を、Fig2 に防水型ファイバスコープの全体図を示す。

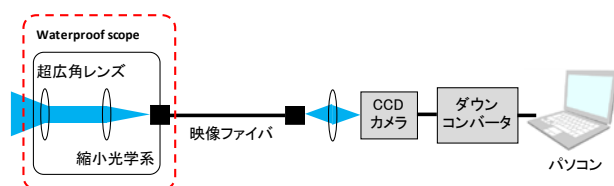


Fig.1 Equipment conceptual diagram

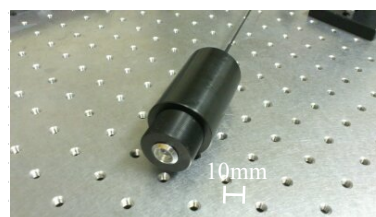


Fig.2 Waterproof scope

3. 実験結果

3. 1大気中観察

始めに防水型ファイバスコープを使用した大気中での撮影を行った。測定対象として、遠距離,600mm, 300mm,近接での撮影を行った。Fig.3 に測定結果を示す。

遠距離では山の風景を撮影した。撮影された画像より、無限遠の撮影を行えることが分かったが、画像は鮮明さを欠いており、測定できる有効距離を測定する必要が出てきた。

600mm 撮影及び 300mm 撮影では、300mm 定規の撮影を行った。画像の中心に定規の中心を合わせ、左右の距離を測定することにより視野角が求められる。

この画像より、視野角が 70 度であった。また、2 枚の

距離の異なる画像の比較から、対照物の大きさが比例していないことが分かった。超広角レンズの歪曲収差から、画像の中央よりも端の方が湾曲率は大きくなるため比例式が成り立たないと考えられる。歪曲収差は焦点距離が遠くなるほど影響が出てくるので、600mm 撮影の方がより大きい歪みが確認できる。

最後に、近接撮影を行った。近接撮影では、光学テーブルの 25mm 間隔の M6 のネジ穴内部のネジ溝が確認できた。また、1mm 間隔の定規の目盛りの画像も捕らえられた。

一般に超広角スコープ(魚眼スコープ)は、120 度から 180 度またはそれ以上の視野角を有している。上記の実験結果から、本スコープの有効距離は不明であるが、視野角度は 70 度である。有効距離は画像の画素数に依存し、これを伸ばすためには映像ファイバの画素数を改善する必要がある。また視野角度は縮小光学系に依存し、これを広げるためにはレンズの瞳径及び倍率を改善する必要がある。

これまで保守保全研究で使用されていたファイバスコープは、伝熱管内壁を観察するために最適化されていた。視野の広さは 2.4 mm、管軸中心線から伝熱管内壁までの距離は 11.5 mm である。従って視

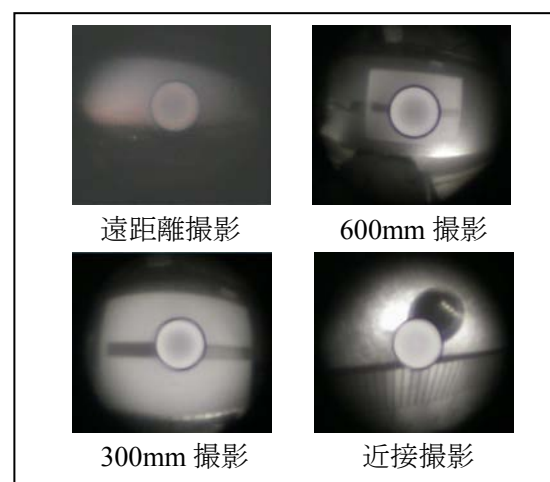


Fig.3 Photography in laboratory

野角は 12 度であった。今回開発したスコープは約 6 倍の視野を有している。

3. 2水中撮影

次に、水槽に防水型ファイバースコープを入水させ水中撮影を行った。測定対象物として、150mm のスパナを水槽の中に入れた。水槽の高さは、300mm が限界なので、最大望遠は 300mm とした。また、今回の装置には照明装置が備え付けられていないため、外部から LED ライトなどの照明を測定対象物に当てることにより撮影を行った。Fig.4 に測定結果を示す。

300mm 撮影では、スパナ全体を撮影することができた。また、画像よりスパナの先端部分の形状も判別は可能である。200mm 及び 100mm 撮影は、300mm よりも明瞭に形状を捕らえている。また、測定対象物と距離が近づけば画像に対する測定対象物の大きさも拡大する。しかし、スパナの先端部の形状を画像から算出すると、距離と比例していない。これは、超広角レンズによる歪曲収差の影響と考えられ、今後考察を行う。近接撮影では、スパナの腹部にある直径 2mm の文字を確認する事が出来た。

また、水中撮影後防水型ファイバースコープを分解し、超広角レンズ及び縮小光学系を調べた結果、水滴が侵入していない。このことから、防水機能が確認できた。以上実験から、今回製作した防水型ファイバースコープを使用した水中撮影が可能であることが分かった。

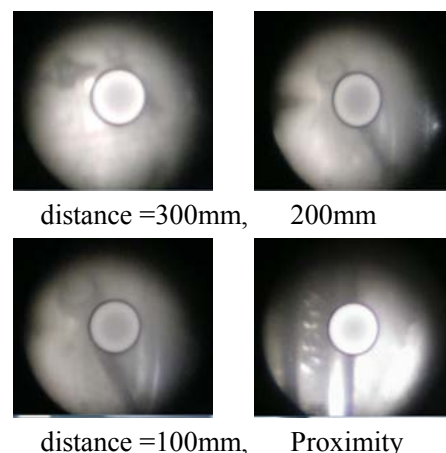


Fig. 4 The Images by fiber waterproof type.

4. まとめと今後の課題

今回の研究結果から、映像ファイバを用いた遠隔への画像伝送が可能であることが分かった。また、大気中のみならず水中での広角画像の取得が可能であることも分かった。装置は、外部照明を必要とするなど、単体での動作は未だ不完全である。今後は、装置の問題点を修正し、小型可搬な装置へ改造を施し、現地での実動作試験を試みる。

参考文献

- [1] 原子力規制委員会, 東京電力福島第一原子力発電所・事故の収束に向けた道筋当面の取組のロードマップ(改訂版), (2012) (<http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/110817c.pdf>)
- [2] A.NISHIMURA et al., "DEVELOPING MAINTENANCE TECHNOLOGIES FOR FBR's HEAT EXCHANGER UNITS by ADVANCED LASER PROCESSING" 19th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE19-43948(2011)
- [3] 日本原子力研究開発機構, 未来を拓く原子力, 成果普及情報誌編集委員会, pp. 10-11, (2012)
- [4] M. Bass, Editor in Chief, "Hand Book of Optics, Fundamentals, Techniques & Design", 2nd edition Vol. I, W. J. Smith, Chap.32, pp. 32.1-32.9, McGRAW-HILL, INC., (1995).

4.23 高経年化プラント配管内壁の検査技術の開発

Development of Inspection Technology for Inner Wall Pipe of Aging Nuclear Power Plant

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

Careful inspection should be paid on aging nuclear power plants. Due to the Fukushima BWR accident, more advanced inspection techniques are now requested in Japan. To find SCC along welded sections by Ultrasonic Testing or Eddy Current Testing is difficult due to the low S/N. Here we propose to apply Magnetic particle Testing (MT) on the inspection. MT uses magnetic particles uniting fluorescent pigment. It is a weak point of MT that uniting particles and pigment is breakable. To extend the lifetime, we developed unique capsule for the magnetic particle to coexist with fluorescent pigment. In addition, Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) used for the laser cleaning of materials, is reported in this paper as a preliminary experiment. The intensity of 621nm peak gradually decreases over time. This result will become a measure of the degree of oxide layer removal.

Keywords: Magnetic Particle Testing, Micro Capsule, Laser-Induced Breakdown Spectroscopy, Laser

1. はじめに

原子力プラントは、定期検査終了後 13 ケ月を超えない間隔で検査項目の箇所での検査が行なわれており、伝熱管内壁の欠陥検出という破損が毎年報告されている^[1]。さらに、平成 23 年 3 月 11 日の東北地方太平洋沖地震と福島原発事故を境に原子力発電プラントの存在意義および保全技術の一層の高度化が求められることとなった^[2]。

機構では原子力システム研究開発事業において、地震発生以前から検査補修技術の高度化を目指すため、FBR 伝熱管の溶接部を渦電流探傷(ECT)により検査し、発見した割れをファイバレーザ溶接により補修するシステムを開発^[3]した。熱交換器伝熱管の非破壊検査として、超音波探傷・渦電流探傷・磁粉探傷などの超音波や電磁場を用いる方法^[4, 5]があるものの、FBR 伝熱管の検査には主に高速な検査が可能な ECT が用いられる。しかしこの検査には S/N 比が低いという欠点がある。そこで、この検査方法を補完する技術として磁粉探傷(MT)を組合せる事で検査技術の高度化を目指した。MT は目視観察のため時間と技量を有するが、複雑な形状および深さが数 μm の微小欠陥を検出する事が可能であり、ECT では検出が困難な箇所を MT で観察する事により時間短縮される。しかし、MT には磁粉液を散布する必要がある、この磁粉液は時間経過により蛍光色素と磁粉に分離するという問題がある。この問題を核融合用マイクロカプセルの作製技術により解決する事を試みた。

一方、伝熱管内壁は酸化被膜(四三酸化鉄)に覆われており、MT を行なう前に酸化被膜を除去する事で検査技術が高度化する。パルスレーザ光は、材料表面上に高いエネルギーを閉じ込める事より、材料表面上で非線形効果によるアブレーションプラズマを発生させ、発光したプラズマを分光する事で、伝熱管内壁の酸化被膜のアブレーションおよび進捗状況の確認が可能となる。

本報では第2章にマイクロカプセルを用いた欠陥部の観察デモンストレーション、第3章ではパルスレーザを用いたレーザ誘起ブレイクダウン発光分光(LIBS)のデモンストレーションについて報告する。

2. マイクロカプセルを用いた欠陥部の観察デモンストレーション

2.1 実験方法

密度整合エマルジョン法を用いて市販の磁粉を内包したマイクロカプセル(MPMC)の作製を行った。MPMC は油相(O 相)/水相 1(W1 相)エマルジョンを水相 2(W2 相)に注入し、70℃で2時間加熱攪拌する事により高分子を溶解させた溶媒が蒸発し、残留した高分子がカプセル化する手法により得られる。本実験は、O 相として密度調整したベンゼンと 1,2-ジクロロエタンの混合溶媒で溶解したポリスチレン、W1 相として磁粉・界面活性剤・純水、W2 相として 5wt%ポリビニルアルコール水溶液を用いた。加熱攪拌後、W2 相を除去するため洗浄し、MPMC を乾燥させた。

2.2 結果と考察

マイクロカプセルに内包する蛍光磁粉の割合(0.1wt%、0.2wt%、2wt%、6.7wt%、10wt%、50wt%)を変化させてカプセルの作製を試みた。その結果、内包する割合が 50wt%以上の場合、球形でなく砂状に変化した MPMC が得られた。MPMC に内包した蛍光磁粉が多い場合、W1 相の密度は O 相・W2 相の密度に比べて大きくなる為加熱攪拌中に W1 相の磁粉がカプセルの下部に溜まり MC の形状が変形したと考えられる。さらに、MT に適応するため、起磁力が 100AT 以上の電磁石上に MPMC が水に浮遊したシャーレを置き、電磁石の強さによる MPMC の移動変化についての試験を行なった。その結果 0.1wt%MPMC は電磁石に引き寄せられなかった。しかし、0.2wt%~10wt%MPMC は引き寄せられる速度に違いがあるものの、電磁石に引き寄せられた。これに加え MT を暗室である伝熱管に適応する場合、UV 光により MPMC を確認する必要がある。UV 光を MPMC の横方向から照らした時、0.2wt%MPMC はカプセルの殻部分に UV 光が反射され CCD カメラに取り込まれた。2wt%、6.7wt%、10wt%MPMC カプセルの殻部分にも UV 光が反射しているものの、内部の蛍光色素が鮮明に発光した事を確認した。電磁石を用いた時の MPMC の引き寄せられ方・MPMC の形状・UV 光による観察結果からマイクロカプセルに内包する磁粉の濃度は 6.7wt%が妥当と推察した。

Fig. 1 に示す 6.7wt%MPMC を MT に適応させるため、磁束に対して垂直方向に深さ 50 μ m、幅 10mm の欠陥をつけた配管材料を用いて、6.7wt%MPMC を散布し、磁化器を用いて配管材料を磁化させた。この時、先端部

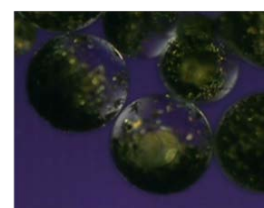


Fig. 1 Photo of the 6.7wt% MPMCs fabricated by stir method

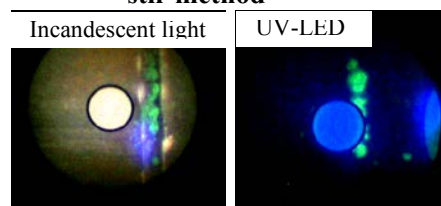


Fig. 2 Photo of the 6.7wt% MPMCs were sparged on the crack

にレーザトーチ⁶⁾を装着させた複合型光ファイバにより観察した。配管材料の欠陥形状に 6.7wt%MPMC が付着した様子を Fig.2 に示す。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。欠陥に対して磁束が垂直方向にある場合はより漏洩するため磁束密度が大きくなるが、磁束が平行方向にある場合、欠陥部に磁束が流れるため磁束密度は低くなるため、磁粉模様が形成されにくい。今回、配管内の欠陥方向は磁化器に対して垂直方向のため磁束密度が大きく、欠陥部に MPMC が集合した。Fig.2 より UV 光を照明光とした場合、より鮮明にカプセルの位置を確認する事ができた。

3. 検査システムを用いた配管材料の分光デモンストレーション

3.1 実験方法

パルスレーザによる金属表面のクリーニングを実施し、発光プラズマの同時観測を行なった。試験片は原子力発電所の配管材料の STBA24 である。レーザは Nd:YAG レーザを使用し、波長・パルス繰り返し数・パルス時間はそれぞれ、532/1064nm、10Hz、4-6ns である。複合型光ファイバへのパルスレーザ導光時におけるファイバ端面(コア径：約 200 μ m)の損傷を防ぐため、レーザエネルギーは 3mJ (2.2J/cm²)以下とした。パルスレーザのエネルギー伝達効率は 98%である。

3.2 結果および考察

Fig. 3a および Fig. 3b に Cr 単体と STBA24 の LIBS 結果を示す。分光器のゲートはレーザ照射前から開いた状態である。縦軸は Intensity[counts]、横軸は Wavelength[nm] である。Fig. 3a の緑字は Cr 単体の LIBS 結果、赤字は Cr(I)の NIST データ⁷⁾である。Fig. 3b の緑字は Fig. 3a で得られたスペクトル、赤字は NIST データ、黒字はそれ以外のスペクトルである。Fig. 3a より Cr 単体の LIBS 結果と Cr(I)の NIST データはほぼ一致している。また Fig. 3 に示すように Cr 単体および STBA24 共にスペクトルはブロードになっている。分光器のゲートをレーザ照射時から開いた状態で計測しており空気の N、O のプラズマ光も取得しているためと推察する。一方、425.58nm, 520.17nm, 530.18nm はシャープで強度の高いスペクトルである。NIST のデータより Cr(I)の強度を比較すると 425.58nm, 520.17nm, の2つのスペクトル強度は 20000 以上の高いが、530.18nm のスペクトル強度は 17 と非常に低い事が確認できる。LIBS の実験環境下は空気中であるため、空気中・水中の LIBS 結果と比較した。その結果、空気中・水中共に 530.16nm にスペクトル

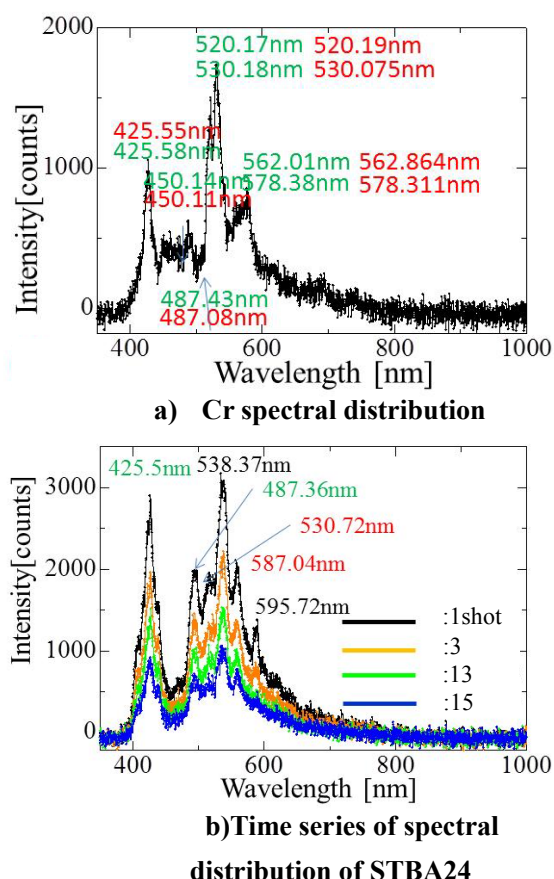


Fig.3 Spectral intensities of some kinds of metals a) Cr b)STBA24

ルが存在しており、スペクトル強度はそれぞれ 44200 と 6600 であった。このことから 530.18nm については Cr(I)と空気中の O および N のスペクトルが混在していると推察する。

Fig. 3b は、酸化被膜で覆われた STBA24 表面への定点照射時における、スペクトル分布の時系列変化を示す。Fig. 3b より全体のスペクトル強度は時間経過と共に減少している。これは照射による表面アブレーションの結果、焦点距離がずれ照射密度が減少したと考えられる。加えて 15shot 後には金属光沢が観察されていることから、表面反射により照射密度が減少したと考えられる。425.5nm, 487.36nm, 530.72nm, 587.04nm のスペクトルは Fig. 3a および NIST データより Cr のスペクトルである。STBA24 には 1.9~2.6%の Cr が含まれているため容易にスペクトルが得られたと推察する。595.75nm のスペクトルは 13shot 後には確認できない。NIST データにおいて 595.858nm に酸素 O(I)のスペクトルがあることから 13shot 後には表面の酸化被膜が除去されたと推察する事ができる。STBA24 は 90%以上の鉄が含まれている。NIST データによると 538.33nm に Fe(I)のスペクトルがあり、スペクトル強度は 30900 である。このことから 538.37nm のスペクトルは Fe(I)に起因するものと推察できる。このように、空気中においても LIBS により成分分析を行なう事が可能である。また、酸化膜の有無は酸素に起因するスペクトル強度の減少により確認が可能である。STBA24 のような合金の場合、合金の LIBS 結果とあらかじめ取得した単体金属の LIBS 結果・NIST のデータと比較する事により合金の成分の同定が可能となる。

4. まとめ

MT の欠点である磁粉と蛍光色素が分離するという問題を核融合用マイクロカプセルと組合せる事で、2 年間放置しても分離しない事を確認した。また蛍光色素と磁粉を内包した MPMC を用いた場合でも従来の磁粉分散液と同等の性能を示す事を確認した。加えて、LIBS を用いる事により酸化膜除去の目安および材料成分の同定が可能となった。欠陥が発生する可能性の高い溶接部をレーザ照射し、LIBS により酸化膜除去が確認できた後、MPMC を用いた MT と既存の ECT を組合せた検査技術を適用して欠陥部有無を確認する事で、より検査技術の高度化および配管狭窄部等の検査が容易となる。

参考文献

- [1] 経済産業省, 産業保安のお知らせ「事故・トラブル情報」
http://www.meti.go.jp/policy/safety_security/industrial_safety/itiran/trouble_2012_index.html
- [2] 原子力規制委員会 HP, <http://www.nsr.go.jp/index.html>
- [3] A. Nishimura, “Laser technologies for The Nuclear Power Plant Maintenance”, *The Review of Laser Engineering*, Vol.40, No.3, pp. 183-187 (2012)
- [4] 佐伯郎, “我が国における渦電流探傷の歴史(3)”, Vol. 57, No. 3, p. 133. (2008)
- [5] 永井辰之, “超音波法による欠陥定量化技術”, 非破壊検査協会, Vol. 57, No. 3, p. 115. (2008)
- [6] T. Terada, “Inspection and Laser Cladding Technologies in Limited Tubular Space by A Composite-type Optical Fiber System”, abstract. Photonics West (2013)
- [7] NIST Atomic Spectroscopy Databases, <http://www.nist.gov/pml/data/index.cfm>

4. 24 多機能型光ファイバスコープの医療応用

Medical Application of the Multi-functional Fiberscope System

関 健史¹, 赤津 朋宏¹, 岡 潔^{1,2}

1, 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

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

Takeshi SEKI¹, Tomohiro AKATSU¹ and Kiyoshi OKA^{1,2}

1, Applied Laser Technology Institute at Tsuruga Head Office of JAEA

2, Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

A composite-type optical fiberscope was developed for maintenance research and development of nuclear facilities by JAEA. It can coaxially deliver both a high energy laser beam for micro processing and an image from processing targets. Development of minimally invasive laser treatment devices were introduced by use of the composite-type optical fiber scope.

Keywords: Composite-type Optical Fiberscope, Laser Treatment, Minimally Invasive Procedure

1. はじめに

原子力機構において技術開発を進めてきた複合型光ファイバは、高エネルギーと映像情報の両方を扱うことができる特殊なファイバである。この複合型光ファイバは、核融合炉及び大型原子力施設における保守保全技術開発に役立つ特殊ツールとして誕生した[1]。原子炉内部の燃料集合体や熱交換器の伝熱配管など、本ファイバが役立つ狭隘箇所は数多くある。本技術は汎用性が高いため、現在では、種々の計測機器と統合された診断治療機器として医療分野への応用を積極的に推進中である。本報では、複合型光ファイバの基本構造及び医療分野への応用例について紹介する。

2. 多機能型光ファイバスコープシステム

先端部にレンズを取り付けた複合型光ファイバスコープとカップリング装置で構成される多機能型光ファイバスコープシステムの概要を Fig.1 に示す。金属材料の溶接や患部への治療のために高エネルギーのレーザー照射を行うための大口径ファイバを中心とし、その周囲にレーザー照射対象を目視確認するための映像伝送用光ファイバが同軸上に一体化した構造となっている。さらに映像伝送用光ファイバの外周部分には、照明光及び別の波長を伝送するファイバをバンドルしている。

複合型光ファイバスコープからの画像を入射させるレーザー光と分離する役割を持つのがカップリング装置で、赤外レーザー光を反射する誘電体多層膜を蒸着したダイクロイックミラーを内蔵している。光ファイバ端面の可視光による像は、誘電体多層膜を透過し、CCD カメラのセンサ面上に結像させる。これにより、対象物を観察しつつ、映像の中心にレーザー照射を可能とする。

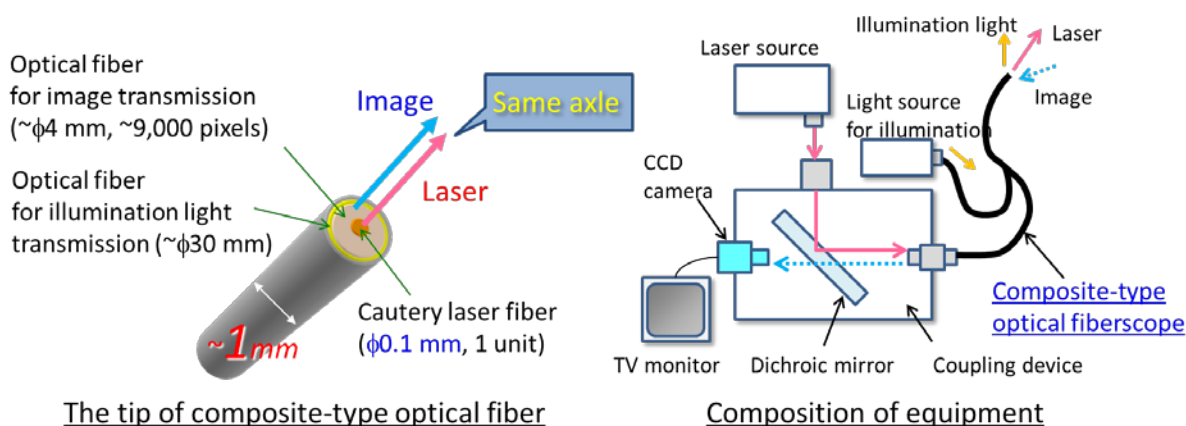


Fig.1 Composition of the multi-function fiberscope system

3. 医療応用

近年、医学と工学の融合により誕生した内視鏡下手術やロボット手術といった患者への侵襲が少ない治療(低侵襲治療)が盛んに行われている。低侵襲治療の普及は、患者の負担軽減、入院期間の短縮などにつながり、QOL(Quality of Life)の向上に大きく貢献している。“1本のファイバースコープで映像とレーザー光を同時に伝送できる”という特徴を持つ複合型光ファイバースコープは、今後更なる普及が望まれる低侵襲治療において大きなメリットであり、さまざまな領域へ適用できる可能性がある。

著者らは、まずは胎児外科治療への適用を検討した[2]。次に、多領域へ適用可能なレーザー治療器を世の中に普及させるために、複合型光ファイバースコープの細径化、可撓性(曲げ易さ)の向上、映像の鮮明化、治療装置全体の簡素化などを検討し、汎用型レーザー治療器を開発した[3]。現在、Fig.2に示す研究・医療機関と連携し、本装置はいくつかの医療領域で実用化を目指した検討を進めている。次節以降、最近の医療応用展開について紹介する。

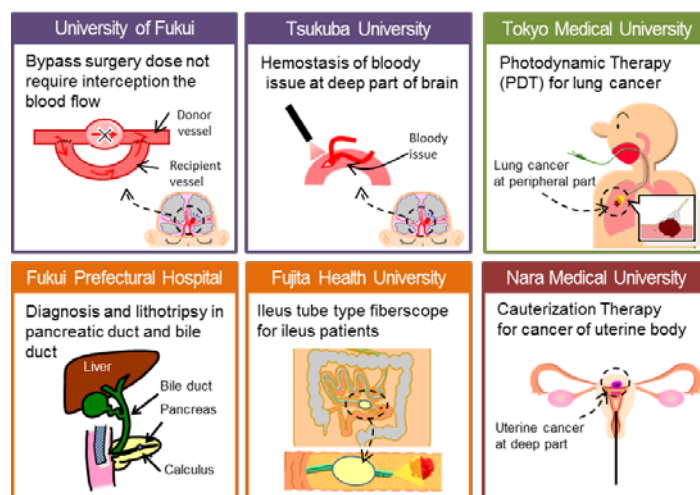


Fig.2 Application fields & Cooperative framework

3.1 脳神経外科への応用

脳血管疾患に対する治療のひとつであるバイパス術は、血流を一時的に遮断した既存血管の壁面に穴を開け、バイパス用血管と既存血管に設けた穴を隙間なく吻合し、血流を再開させることで、疾患部を迂回するように新たな血流路を再建する術式である。脳内の血管は一時的な虚血状態に陥るため脳血管障害のリスクを伴う危険な手術である。この問題を解決するため、ユトレヒ

ト大学は直径数ミリのリングとレーザーカテーテルを用いてバイパスを行う ELANA 方式を考案した。この方式は、リングを備えたバイパス用血管を既存血管に縫合し、レーザーカテーテルにより既存血管の壁面を切開することで新たな血流路を形成する方法であり、血流を遮断する必要がない。しかしながら、バイパス用血管の縫合作業の煩雑さや血管壁開存の確認方法が皆無といった課題がある。そこで著者らは、これらの問題を解決するため、①血管を補強するための吻合補助クリップと②複合型光ファイバスコープを内蔵した血管壁切開ツールで構成される新しい脳血管バイパスツールの開発を行なっている[4]。現在、動物実験を実施し、バイパス作業や血管壁の切開性能の検証について検証を続けている。

一方、脳深部にあたる下垂体腫に対して、神経内視鏡による治療が確立されている。しかしながら、脳内止血ツールはまだ十分に確立されていないことから、著者らは本装置を下垂体で適用可能な止血ツールとして適用を検討している。これまで、動物実験の実施により、直径 1~2mm の血管を選択的に止血可能であることを確認しており、止血ツールとして必要な基本性能を有していることを実証している[5]。

3.2 呼吸器外科への応用

早期非小細胞肺癌の治療法の第 1 選択は外科的切除とされているが、多発重複癌の発生があることから、呼吸器機能が低下している患者が多いことから、呼吸機能の温存を図る治療法が重要視されてきている。特に早期中心型肺癌に対して、PDT が推奨されている。一方、近年では、CT 検診の普及に伴い、「腫瘍が亜区域支よりも末梢に存在し、大きさが 2 cm 以下で、リンパ節転移や遠隔転移をみとめず、腫瘍に関連して症状を有さないもの」のような末梢型の小型の早期肺癌の発見率が増加している。現在、このような肺癌症例に対して、標準術式である肺葉切除が施行されている。しかし、今後、高齢者肺癌の増加、低肺機能による切除不可能な症例の増加、QOL を考慮した低侵襲治療の要望などにより、肺抹消癌に対する PDT の需要が増すと考えられる。このような背景の下、著者らは肺末梢癌に対して適用可能なレーザー治療器の開発を行っている。これまでに、本装置を使用し、クラウン系ミニブタを用いたファイバスコープの挿入・観察・レーザー照射試験を行い、肺末梢部までファイバスコープが挿入可能で、周辺組織の観察と局所・選択的なレーザー照射を一連の作業として行えることを確認した[6]。また、病理検査の結果、中心型肺癌に適用されている既存の PD レーザー装置及び専用プローブの組み合わせにおける治療効果と同等の能力を有する壊死領域が得られることから、治療器として必要な基本性能を備えていることを実証した。今後、臨床への適用を進める予定である。

3.3 産婦人科への応用

子宮の奥(体部)にできる子宮体癌は、初期症状であっても子宮全摘出手術が基本であり、術後の妊娠は不可能である。少子高齢化や晩婚化が進む昨今では、子宮全摘出術を行わない術式が求められる。このような背景の下、著者らは初期の子宮体癌に対して適用可能なレーザー治療器の開発を行っている。通常、子宮体部の診察・処置の際には、器具の挿入経路を確保するために頸部入口の拡張が必要であるが、外径 1.1mm の複合型光ファイバスコープは拡張することなく挿入可能であることから、患者への負担を大幅に低減できる。また、複数の波長のレーザー光を導光できる特徴を活かし、焼灼治療、光線力学的診断(PDD: Photo Dynamic Diagnosis)、光線力学的療法(PDT: Photo Dynamic Therapy)を 1 本のファイバスコープで実施するハイブリッド診断治療を行うことを構想している。これまでに、摘出子宮へのレーザー焼灼試験を実施し、体部へのアクセス性、スコープ映像の解像度や鮮明度、焼灼範囲などの基

礎データの取得および評価を行っている[7].

3.4 消化器内科への応用

口、肛門から遠く、内視鏡による診断が困難であった小腸の診断は、ダブルバルーン内視鏡やカプセル型内視鏡の登場によって容易になりつつあるが、腸に内容物が詰まる腸閉塞や、他臓器や内腹などと接着する癒着を発症するイレウス患者に対し、前述した内視鏡の適用できない場合がある。そこで著者らは、患部で詰まった内容物をチューブ先端の側孔から吸引排出して内科的に治療するイレウスチューブと複合型光ファイバスコープを組み合わせ、イレウス患者に適用可能なレーザー治療器の開発を行っている。本治療器の場合、治療のためにすでに腸内に挿入されているイレウスチューブの内腔にファイバスコープを挿入することで腸内観察が行えるため、挿入時の患者への負担が軽減や、イレウス治療直後の病変部観察が可能になることから手術適用の判断などにも使用できることが期待できる。これまでに実施した臨床試験により、映像の鮮明さにやや課題が残るものの、比較的短い時間で腸内の診断が可能であることを確認している。その他の技術開発として、体内に挿入されたイレウスチューブと複合型光ファイバスコープを同時に口側に引き抜き、一定速度で腸内を隈なく観察する手法の確立や、チューブ先端に配置されるバルーンを利用した腸の運動計測を行う研究開発も進めている[8][9].

その他の部位への適用として、膵管と胆管がある。これらの管は膵液や胆汁といった液体を十二指腸へ送る経路であるが、炎症や結石が発生しやすい部位であり、主に内視鏡などを用いて診断や処置が行われている。しかし、これらの共通の入り口となる十二指腸乳頭部は非常に狭く、処置具を挿入するために切開しなければならない。そこで著者らは、切開せずに乳頭部へ挿入可能な従来のカテーテルをガイドとして活用し、その内腔に複合型光ファイバスコープを挿入することで容易に膵管、胆管が観察できる方法を考案し、臨床試験によりその有効性を検証している。今後は、パルスレーザーを複合型光ファイバスコープに導光し、観察しながら結石を破碎する方法を検討している。

4. まとめ

ファイバスコープの細径化は、患者の侵襲低減だけに留まらず、これまでの器具では挿入が困難であった狭隘部の診断治療にも有効であると考えられる。また、人体の狭隘部分を検査治療する本技術開発は、必ず原子力機器の保守保全技術向上にも還元される。今後も引き続き医療分野への応用を推進し、医療と原子力技術の高度化に貢献したい。

参考文献

- [1] K. Oka, Rev. Laser Eng., **31**, pp. 612-617 (2003).
- [2] T. Seki, et. al., WC2009, **25**, pp. 79-82 (2009).
- [3] K. Oka, et. al., Surg. Endosc., **25**, pp. 2368-2371 (2011).
- [4] T. Seki, et. al., JJSCAS, **14**, pp. 312-313 (2012).
- [5] S. Watanabe, et. al., 19th JSNE, IIB-O9-6 (2012).
- [6] T. Seki, et. al., CLSM2012, pp. 62-63 (2012).
- [7] H. Shigetomi, et. al., JSLSM, **33**, 2, pp. 131-135 (2012).
- [8] T. Seki, et. al., JJSCAS, **12**, 2, pp. 33-42 (2010).
- [9] N. Ishikawa, et. al., Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. C, **75**, 756, pp. 2359-2362 (2009).

4. 25 1 インチ伝熱管内壁の減肉損傷補修のための

レーザークラディングシステムの開発

Development of Laser Cladding System to Repair Wall Thinning of 1-inch Heat Exchanger Tube

寺田 隆哉

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

Takaya TERADA

Tsuruga Head Office, Applied Laser Technology Institute, Japan Atomic Energy Agency

We developed a laser cladding system to repair the inner wall wastage of heat exchanger tubes. Our system, which is designed to repair thinning tube walls within 100 mm from the edge of a heat exchanger tube, consists of a fiber laser, a composite-type optical fiberscope, a coupling device, a laser processing head, and a wire-feeding device. All of these components were reconfigured from the technologies of FBR maintenance. The laser processing head, which has a 15-mm outer diameter, was designed to be inserted into a 1-inch heat exchanger tube. We mounted a heatproof broadband mirror for laser cladding and fiberscope observation with visible light inside the laser processing head. The wire-feeding device continuously supplied 0.4-mm wire to the laser irradiation spot with variable feeding speeds from 0.5 to 20 mm/s. We are planning to apply our proposed system to the maintenance of aging industrial plants.

Keywords: Laser Cladding, Wall Thinning, Composite-type Optical Fiber

1. はじめに

現在我が国では、高度経済成長期に建設された原子力プラントをはじめとする数多くの大型施設が大規模な保守保全を必要としている。特に流体が構造材に作用する場合には構造材の表層が浸食されるだけでなく流れが誘発する振動による脆化が生じる。2004 年の美浜原子力発電所 3 号機における二次系配管の破断事故¹⁾など、流体による劣化が問題となった例も多く報告されている。これらの事故事例の教訓を活かし積極的に予防保全を進めるために、我々のグループでは流体作用が顕著に表れる配管内の損傷に着目し、その検査補修システムの開発に取り組んできた。これまでに次世代 FBR 用伝熱管内壁検査補修用プローブ開発し、1 インチ配管内の微小な欠陥の検出とその場でのレーザー溶接補修に成功した³⁾⁴⁾。本研究では、より大きな欠陥である配管減肉に対応した検査補修システムの開発に取り組んでいる。配管内という狭隘空間において、画像観察および溶加材にレーザー照射し減肉を肉盛り溶接することができるシステム開発の現状について述べる。

2. レーザークラディングシステムの概要

配管減肉は流速や流れの向きが急速に変化する箇所において、腐食や浸食が進展することにより発生する。そのため、オリフィス下流域や曲り部分、配管接続部、管径の変化する箇所で生じやすい。本研究では、1 インチ配管の接続部近傍に生じる配管減肉をターゲットとした。接続部の近傍であるため、比

較的アクセスが容易であり、駆動機構など必要な機能の一部を配管外に設けることができる。Fig.1 にレーザークラディングシステムの概略図を示す。レーザー伝送用ファイバを中心に、画像伝送用ファイバを周囲にバンドルした複合型光ファイバを用い、先端に 1 インチ配管に挿入可能なレーザートーチを接続した。レーザートーチ先端部には設けた耐熱ミラーにより管壁面にレーザー光を照射可能である。トーチ内部には雰囲気とミラー保護のためのガスを流した。レーザートーチは管の外部に設けた駆動機構で全体を回転および直動させ、広範囲に対し肉盛り溶接が可能になっている。複合型光ファイバの反対側はカップリング

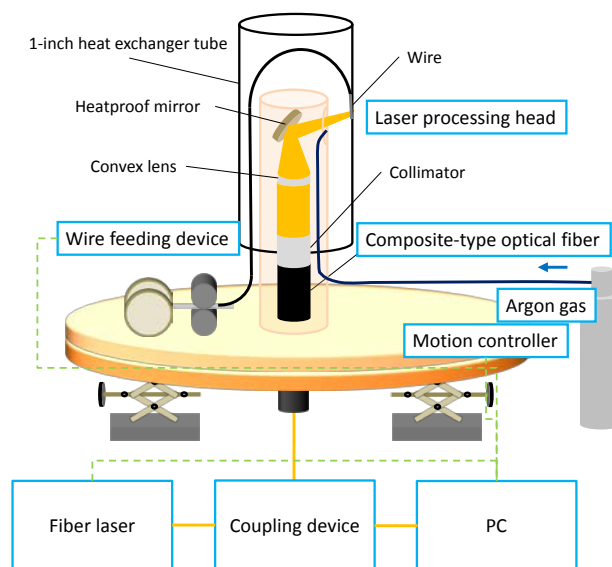


Fig.1 Schematic view of laser cladding system

装置と接続、ファイバ端面へのレーザー導光と、伝送された管表面の可視画像光を CCD カメラで撮影した。レーザートーチと配管との隙間には、溶接ワイヤを連続的に送給する機構を設けていた。狭隘空間においてレーザー照射位置とワイヤ送給位置を合わせることは困難であるが、観察とレーザー照射を同時にできる複合型光ファイバを利用することで、比較的容易に実現することができた。

3. 試作機によるモックアップ試験

2 章の概略図にもとづき、試作機を製作し、1 インチ模擬配管に対するモックアップ試験を実施した。Yb ファイバレーザーを使用し、照射パワー 260 W、照射径を 0.8 mm とした。径 0.4 mm の Cr-Mo 系ワイヤを使用、15 mm/s で送給した。またアルゴンガス流量は 7.0 L/min とした。最初 5 秒間はレーザー照射のみ、その後 5 秒間レーザー照射とワイヤ送給を同時に行い、最後 2 秒間は再びレーザーのみを照射、合計 12 秒間の肉盛り溶接時間とした。今回の試験ではレーザートーチは動かさず、スポットへの肉盛り溶接を行った。その結果、直径約 3 mm の半球状のスポット肉盛り溶接に成功した。

一方で狭隘空間におけるレーザー肉盛り溶接として熱とヒュームによる光学部品の汚染という課題も明確になった。今回の試験では 12 秒間のレーザー照射でミラー温度が約 100 度上昇した。ミラーは銅基板に誘電多層膜を設けており、300 度程度まで上昇すると膜構造壊れる恐れがある。ミラー温度上昇は、レーザー光の吸収と溶融地面からの熱輻射の 2 つの要因が挙げられる。また、上記の試験条件では先端ミラーの汚染は見られなかったが、照射時間やガス流量の違いにより少し汚染された条件も見受けられた。レーザー照射時間が狭隘空間であるためバキュームで吸うなどさらに機能を盛り込むことは困難である。この課題の解決方法のひとつとして、Quasi-CW レーザーの利用が挙げられる。パルス幅が 10 ms 程度でピークパワーが 1.5 kW、周波数 10 Hz のレーザーが金型補修など細かい肉盛り溶接に広く用いられている。照射面の熱拡散距離や熱緩和時間を考えると、熱とヒュームの抑制が期待される。

4. まとめ

本研究のシステムは現在エチレンプラントの 1 インチ伝熱管を適用先として開発を進めている。本技術はその他のプラントの保守保全にも役立つと期待される。

4. 26 原子力発電所の機器の耐震保全のための

耐熱光ファイバーブラッググレーティングセンサーの実装検討

Implementation of Heat Resistant Fiber Bragg Grating Sensors for Seismic Safety in Nuclear Power Plant Facilities

島田 幸洋¹⁾、西村 昭彦¹⁾²⁾

¹⁾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

²⁾量子ビーム応用研究部門 光量子融合研究グループ

Yukihiro SHIMADA¹⁾ and Akihiko NISHIMURA¹⁾²⁾

¹⁾ Applied Laser Technology Institute, Tsuruga Head Office, JAEA

²⁾ Quantum Beam Science Directorate, JAEA

A Fiber Bragg Grating (FBG) sensor with heat resistance was produced via a point microfabrication technique using a femtosecond pulse laser. 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 planned. The heat-resistant FBG sensor developed using ultra-short pulse laser processing will contribute to the surveillance of power plants for seismic safety.

Keywords: Seismic Safety on Nuclear Facilities, Aging Management, Laser Micro Processing, Fiber Bragg Grating Sensor

1. 緒言

原子力発電所等の大型プラントの長期間安全稼働の為には、機器の耐震保全、経年劣化診断が重要な課題となる。そのためには堅牢かつ効率的な常時監視計測システムが求められる。機器の振動、変形を計測するための光ファイバーセンサーシステムは、電磁的影響を受けにくい、遠隔計測が可能である等の優れた特徴を持つ。中でも光ファイバーブラッググレーティング (FBG) センサーは動作原理が単純であり、ロバストな計測方法の一つである[1][2]。現在実用化されているFBGセンサーは感光性光ファイバーを使用し、紫外光の干渉露光でコア中のゲルマニウムの価数を変化させることで周期的屈折率分布を作成しているため、高温では構造が消失し使用することは不可能である。一方、ナノメートル領域の微細加工技術と超短パルスレーザーの普及の結果、石英ファイバー中に直接微細加工することで高温耐性の有るFBGセンサーの製作が為された[3]。初期は計測精度の低い長周期型のFBGセンサーのみ実現したが、現在は干渉露光法と遜色の無い計測精度を持つ、短周期型のFBGセンサーの製作が可能となった[4][5]。しかし実験レベルではなく、実際のプラントで運用可能な高温耐性FBGセンサーシステムの構築のためには多くの課題を残している。

一方、高速実験炉「常陽」においてFBGセンサーによる1次冷却系配管支持部の歪み測定試験

が為された[6]。この試験は配管の常温部位において測定が為されたが、高温部位を直接測定する要請は強い。地震等のシビアアクシデント時だけでなく、定常運転時においても微小変形や流体振動等のデータの蓄積から早期の劣化の兆候の検出が可能となり、効果的なプラントの健全性の保守保全が実現する。我々は高温プラント機器の直接計測を目的として、配管や機械設備の振動、変形を監視できる FBG センサーの開発を行ってきた[5]。今回はフェムト秒 CPA レーザーを使用した微細加工による FBG センサーの製作と高機能繊維によるセンサーの機械的強化、及びプラントへの実装を想定した実装方法の試行と高温耐性試験について報告する。

2. FBG センサーの製作と高温耐性試験

2. 1 フェムト秒 CPA レーザーを使用した微細加工による FBG センサーの製作

加工装置の模式図を Fig. 1 に示す。今回 FBG センサーの加工製作に使用したレーザーは波長が 1560nm の Er ファイバーレーザー光の 2 倍波を光源とする CPA パルスレーザーシステムである。再生増幅器出力の周波数は 1kHz であり、用途に合わせて切り出し周波数は 1kHz から 10Hz まで可変している。出力光の中心波長は 780nm、パルス幅は 150fsec、今回の実験では出力エネルギーは 10 から $1\mu\text{J}$ 、繰り返しは 100Hz で行っている。出力光を位相差顕微鏡に導入し、40 倍の対物レンズを通して試料に照射する。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。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 $8\mu\text{m}$ の SMF-28 規格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ている[5]。加工点の直径は約 $1\mu\text{m}$ である。

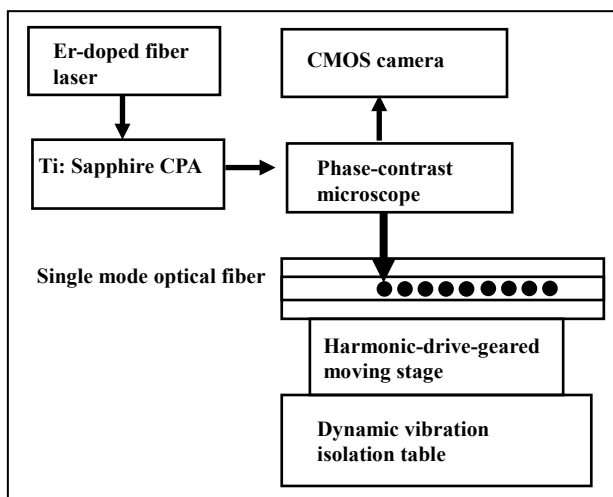


Fig. 1 Schematic diagram of the processing system of the FBG sensor.

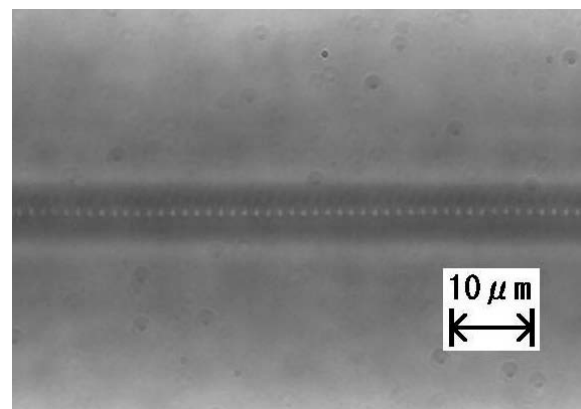


Fig. 2 Phase-contrast microscope image of processed optical fiber.

2. 2 製作した FBG の高温耐性試験

製作した FBG の反射スペクトルを Fig. 3 に示す。加工間隔は 1605nm であり、3 次のブラッグ波長に相当する。点数は 500 点、総加工長は約 800 μ m の加工の結果、線幅 1nm の反射スペクトルを確認した。この FBG センサーを高温配管材料である STPA24 鋼に接着し、高速炉の 2 次系伝熱配管の運転温度を想定した 400℃において 2 時間の耐性試験を行った。昇温レートは 3℃/分である。その結果、高温でも反射スペクトルは消失せず、製作した FBG 構造が高温耐性を持ち温度センサーとして動作する事を確認した。

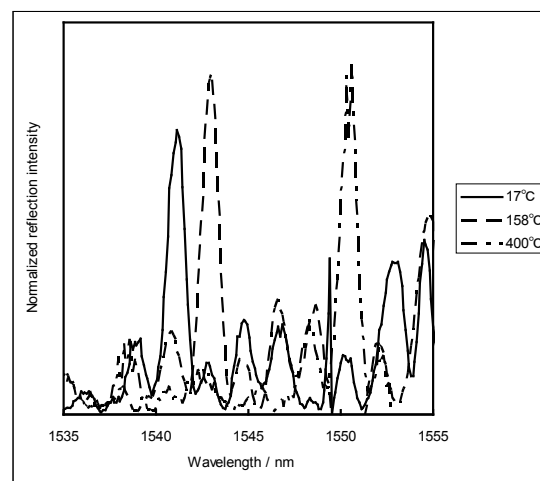


Fig. 3 Reflected spectrum of FBG structure.

2. 3 FBG による高温での振動検出試験

FBG からの反射波長スペクトルの時間変化を計測することで振動の計測が可能である。400℃の環境における片持梁状鋼材に設置した耐熱 FBG センサーからの反射波長シフトの時間経過を Fig. 4 に示す。このセンサーでは 0.015nm の波長シフトは 10 μ ε の長さ方向の歪に相当する。こうして振動周波数が約 20Hz の減衰振動の計測を確認した。地震時における大型プラントでは 1 から 10Hz 付近の振動数の揺れが支配的である [8] ことからこのセンサーは地震動の計測が可能な振動数応答能を持つ。

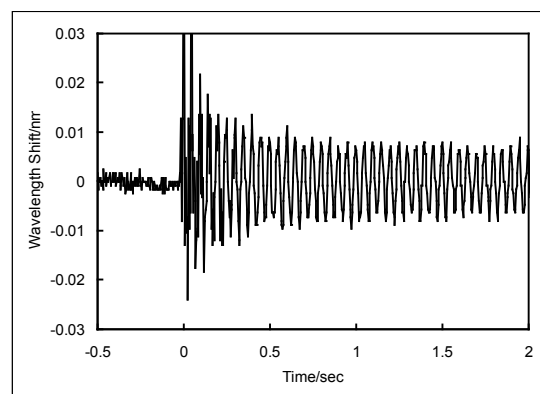


Fig. 4 Vibration measurement of cantilever steel material (STPA24) using heat tolerance FBG sensor at 400 °C.

3. 高機能繊維との複合化による FBG センサーの強化

大気環境下での高温加熱時、光ファイバーの表面は酸化し脆化が進行するため長期間の実用化には外皮の保護等の対策が必要となる。またプラントの作業現場におけるセンサーの設置作業を想定した場合、細い光ファイバー素線の扱いは煩雑であることから作業性の向上の為に外皮保護材料は有効に働く。我々は繊維加工技術の実績を有する福井県内企業((株)米澤物産)と共同開発を行い、高温耐性を有する炭化ケイ素繊維を強化材料として用いて高機能繊維と光ファイバーの複合化センサーを製作した。外形写真を Fig. 5 に示す。直径は 5mm となることで構造が強化され、取扱性と接着剤との親和性も向上した。

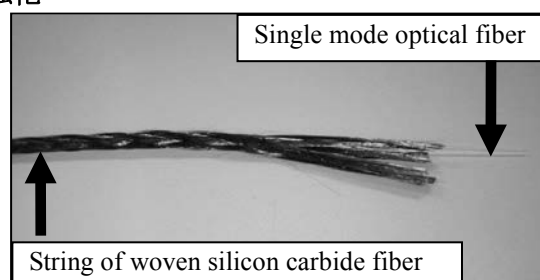


Fig. 5 The heat tolerance FBG sensor protected by woven silicon carbide fiber.

4. まとめ

フェムト秒パルスレーザーを用いた微細加工によって耐熱性の有る FBG センサーを製作した。常温から 400℃の温度領域において、高温配管材料として用いられる STPA24 鋼の温度計測と歪計測、振動計測に成功した。計測が可能な振動数は地震動で観測される主たる振動数を網羅している。この耐熱 FBG センサーを用いた計測監視システムは、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 センサーの実装検討と高温試験においては株式会社熊谷組筑波中央研究所鈴木様、石橋様の実験協力と助言をいただきました。高速炉「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 川原啓孝博士、伊藤主税博士、青山卓史博士から貴重な議論をしていただきました。また、FBG センサーの加工、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 猿田晃一博士の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] A. Othonos: Rev. Sci. Instrum., 68, 4309 (1997).
- [2] K. O. Hill, Y. Fujii, D. C. Johnson, and B. S. Kawasaki: Appl. Phys. Lett., 32, 647 (1978).
- [3] Y. Kondo, K. Nouchi, T. Mitsuyu, M. Watanabe, P.G. Kazansky and K. Hirao: Opt. Lett., 24, 646 (1999).
- [4] A. Martinez, M. Dubov, I. Khrushchev, I. Bennion: Electron. Lett., 40, 1170 (2004).
- [5] Y. Shimada, A. Nishimura, M. Yoshikawa and T. Kobayashi: J. Laser Micro / Nanoengineering, 5, 99 (2010).
- [6] K. Matsuba, C. Ito, H. Kawahara and T. Aoyama: Journal of Power and Energy Systems, 2, 545 (2008).
- [7] 島田幸洋、西村昭彦、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”、日本原子力学会 2012 年秋の年会予稿集 J25 (2012).
- [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).

4.27 原子力機構 敦賀本部 レーザー共同研究所の最近の活動

Recent Activities of Applied Laser Technology Institute at Tsuruga Head Office of JAEA

土田 昇

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

Noboru TSUCHIDA

Applied Laser Technology Institute at Tsuruga Head Office of JAEA

The Applied Laser Technology Institute(ALTl) was established in the Tsuruga headquarters of Japan Atomic Energy Agency (JAEA) in Fukui prefecture in September, 2009. The objectives of the ALTl are the contribution of the laser technology to the nuclear power technology as well as industrial applications. The latest activity of the ALTl is introduced here.

Keywords: Laser Technology, Industrial Applications, Fukui Prefecture

1. はじめに

独立行政法人日本原子力研究開発機構(以下「原子力機構」)敦賀本部レーザー共同研究所[1]は、平成 21 年(2009 年)9 月に設立され、原子力分野で培ったレーザー技術の産業利用を福井県を中心に展開している。(Fig.1) 特に、原子炉廃止措置に向けたレーザー切断技術、伝熱管の探傷・補修を行うレーザー溶接技術、複合型光ファイバの医療分野への応用技術等の開発を産業界等と連携して進めており、最近の研究活動を紹介します。(Fig. 2)



Fig.1 Applied Laser Technology Institute (ALTl) and related two reactors in Tsuruga city

2. 研究活動の概要

(1)原子炉伝熱管補修技術、配管モニタ技術の開発

高速増殖炉の実用化に向けた保守・補修技術の開発では、複合型光ファイバを利用した内径 1 インチの伝熱管の補修用プローブの開発を行った。具体的には、次世代高速炉の伝熱管内面の欠陥を渦電流探傷法(Eddy Current Testing, ECT)で検出し、その欠陥をファイバスコープで観ながら、ファイバレーザーによる精密溶接により補修する技術(Fig.3)を開発した[2]。

また平成 23 年度に福井県内の福伸工業(精密加工)と協力して、これまでに開発した高速増殖炉熱交換器伝熱管補修装置を高度化し、配管肉盛溶接機能を付加するため、溶接用フィラーワイヤ送給装置の開

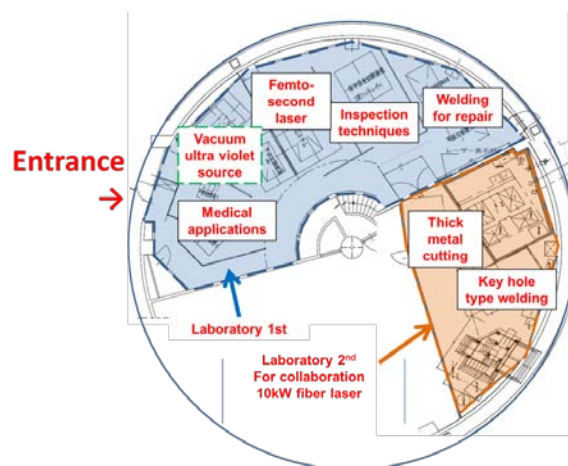


Fig.2 Layout of the Laser Laboratory

発を行い、試作機を完成させた。平成 24 年度以降は、本装置と別途開発した小型レーザートーチを組み合わせることで、三井化学(株)の石油化学プラントの伝熱管補修への適用を目指した共同研究を進めている。

レーザ共同研究所では、超短パルスレーザ加工を利用した光ファイバセンサの開発も行っている。広く使われている FBG (Fiber Bragg Grating) センサの高温環境での利用を目指している。新型 FBG センサは、温度や歪みの変化を、反射光の波長の変化として検出するもので、高温プラントでの配管の遠隔モニタとしての活用を目指している。

この技術の産業応用における地域企業との連携事例として、炭化ケイ素繊維を利用した紐編み型配管監視 FBG センサの試作がある。平成 23 年度に福井県内の米澤物産(繊維織物)と協力し、光ファイバ FBG センサの高温下での機械的強度の向上を目指した。炭化ケイ素繊維材料を用いて光ファイバの周囲を保護することで、高速炉の運転温度に耐えられる強度を有している(Fig.4)。

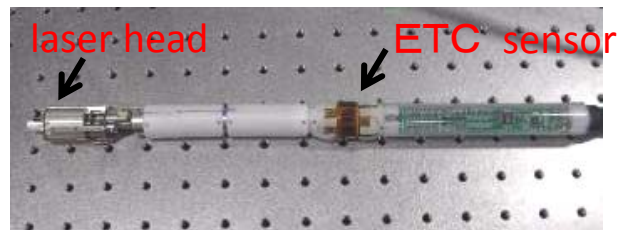


Fig.3 Inspection / repair equipment of heat exchanger tube of the next generation FBR (Length : ~30cm, Diameter : 2.5cm)



Fig.4 FBG sensor protected by cloth knit with the string of silicon carbide fiber

(2) 原子炉廃止措置技術の開発

レーザは熱源として優れた性能をもっているの、これらを応用した加工法は、従来の加工法にはない以下のような優れた特徴をもっている[3]。

- ①材料の硬さや剛性に関係なく切断できる。
- ②加熱が瞬間的であるため、他の熱切断法に比べて熱影響層が浅い。したがって薄板切断においても、熱変形が小さい。
- ③高速で切断できる。
- ④ビームの発振は電子工学的手段により高速・高精度で制御できるので、数値制御装置との組合せで、複雑な形状の切断や多数の穴あけが容易にできる。
- ⑤加工条件を材料に適するように制御することにより、加工を最適化できる。

レーザ切断は、集光したレーザを試料に直接照射して溶融させ、溶融金属をレーザと同軸で流れるアシストガスで吹き飛ばすことによって切断する加工法である (Fig.5)。

レーザ共同研究所では、廃止措置となった原

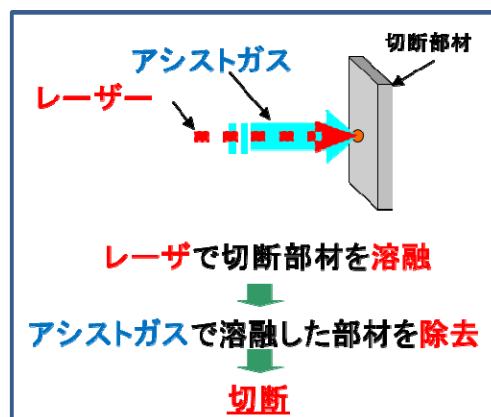


Fig.5 Mechanism of laser cutting

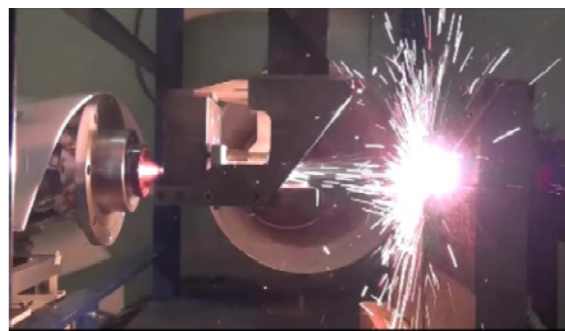


Fig.6 Laser cutting by 10kW fiber laser

子炉を効率的に解体するため、高出力ファイバレーザーを使った鉄鋼材の切断技術開発を若狭湾エネルギー研究センター等と共同で実施している[4] (Fig.6)。現在、廃止措置中の新型転換炉「ふげん」の解体においては、最大 15cm 厚さの放射化した炉心部の鉄鋼材の水中での効率的な切断を目指した研究開発を進めている。水中で効率よく鉄鋼材を切断するには、レーザー光の通り道を確認し、かつ溶融金属を迅速に除去するための噴出ガス（アシストガス）の挙動等を正確に把握する必要があり、その為の要素技術開発をレーザー機器メーカー等と共同で行っている。

(3) 計算機シミュレーションと高精度実験

レーザー共同研究所では、レーザー切断・溶接の挙動をシミュレーションする計算機コード SPLICE (residual Stress control using Phenomenological modeling for Laser welding repair process In Computational Environment)を開発し、それを利用してレーザー切断・溶接技術の最適化を図っている (Fig.7)。

レーザー加工プロセス（溶接・切断）は複雑な半溶融帯における複合物理過程であり、計算科学と高精度実験を相

補的に利用することによって、発生する複合物理過程の現象を定量的に解明し、レーザー溶接・切断技術の標準化を図ろうとしている。複雑過程の定量化においては、大型放射光 X 線施設 SPring-8 による高精度実験結果とレーザー加工プロセスシミュレーションコード SPLICE による数値解析結果などを相補的に利用した評価を実施している。

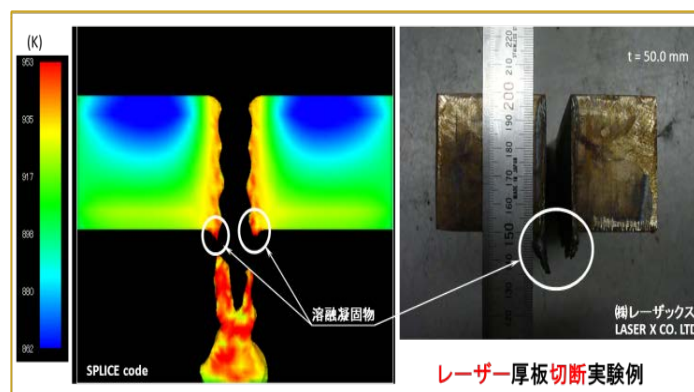


Fig.7 Simulation of the laser cutting by SPLICE code

(4) レーザー技術の医療応用

原子力分野で培った複合型光ファイバ技術を医療に応用し、治療が必要な方の身体への負担を最小限に抑え、患部を見ながら精密な治療のできる極細の複合型光ファイバを開発し、これを利用した低侵襲医療器具のシステム開発 (Fig.8) を医療機関等と共同で行っている[5]。

福井大学医学部との脳の動脈瘤血管バイパス手術にあたって血流を止めること

なくバイパスする治療器具に関する共同研究や、福井県立病院との胆嚢、膵臓の治療に関する共

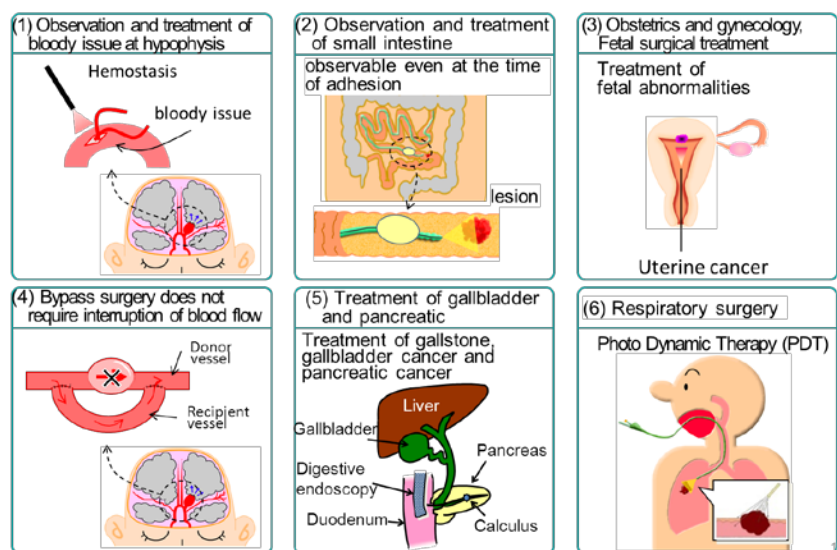


Fig.8 Medical applications with the composite fiberscope

同研究などを実施している。

その他にも、複合型光ファイバを用いたがん治療用低侵襲レーザー治療器の開発を医療機関と共同研究で進めている。東京医科大学とは、「8の字タイプ」複合型光ファイバを用いた肺末梢部がん治療装置の開発、奈良県立医大とは、従来タイプの複合型光ファイバを用いた子宮体がん治療装置の開発を行っている。

(5) 軟X線顕微鏡と真空紫外域分光技術開発

生体組織は、水素、酸素、炭素が構成の大部分を占める。微生物を水中に浮遊させた場合、光吸収ではコントラストが低く像が曖昧になりがちである。軟X線顕微鏡は、生体に強く吸収される軟X線領域を活かしたコントラスト像を捉えることが出来るユニークな顕微鏡である (Fig.9)。



Fig.9 Soft X-ray microscopy and VUV inspection system

3. 今後の研究展開

平成 23 年 3 月の福島第一原子力発電所の事故後、原子力設備の解体技術に関心が高まっており、レーザー共同研究所でも、遠隔操作による水中レーザー切断技術の開発・実用化に産官学と連携して取り組んでいる。さらに、事故を起こした原子炉内のデブリ・炉内構造物の取出し作業に対するレーザーの適用性を評価するため、高硬度・多孔質条件を模擬したアルミナ（セラミックス）を対象として、レーザーパルス照射による破砕特性の実験的な確認や使用機器の制御方式の検討も進めている。

上記に加えて、原子炉の保守保全に関するレーザー応用技術の高度化、レーザー技術の医療応用など、レーザーの熱加工から超短パルス加工まで広範囲な光の加工と計測技術の開発を進めていく予定である。

参考文献

- [1] レーザー共同研究所ホームページ <http://www.jaea.go.jp/04/turuga/re-za/>
- [2] 西村昭彦「原子炉の保守保全に役立つレーザー技術」レーザー研究、第 40 巻、第 3 号、(2012)
- [3] (社)日本溶接協会ホームページ http://www-it.jwes.or.jp/qa/details.jsp?pg_no=0070120020
- [4] 小林紘二郎、他「水中切断による原子炉解体技術」(社)日本溶接協会誌 Vol.59. No.7, pp.64-69(2011)
- [5] 岡潔、他、「複合型光ファイバスコープの医療応用」応用物理第 80 巻第 12 号, pp.1069-1072 (2012)

4.28 ガンマ線モノクロメーターを用いた同位体分析装置の提案

Proposal of Measurement System for Isotope Analysis Using γ -ray Monochromators

松葉 俊哉、Christopher Angell、西森 信行、永井 良治、静間 俊行、
早川 岳人、沢村 勝、羽島 良一

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

Shunya Matsuba, Christopher Angell, Nobuyuki Nishimori, Ryoji Nagai, Toshiyuki Shizuma,
Takehito Hayakawa, Masaru Sawamura, Ryoichi Hajima
Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

Nuclear resonance fluorescence (NRF) can be used for the isotope analysis in a transmission mode. We propose a new method for isotope analysis by using crystal monochromators with laser Compton scattering gamma-ray.

Keywords: Gamma-ray, Monochromator, Nuclear Resonance Fluorescence, Isotope Analysis.

1. Introduction

Nondestructive isotope detection methods by using nuclear resonance fluorescence (NRF) with laser Compton scattering (LCS) gamma-rays have been proposed for nuclear security and safeguards [1, 2]. . The NRF is a process of resonant excitation of a nucleus by photo absorption and immediate deexcitation by photo emission. In a transmission mode [2] of the NRF-based detection methods, quantity of an isotope of interest can be determined by measuring the degree of the resonant absorption of the incident gamma-rays. Since the resonance energy is a range of mega electron volt (MeV) and the energy width of the resonance is less than several tens electron volt (eV), an efficient measurement of transmitted gamma-rays can be achieved using a system detecting several-MeV photons with energy resolution of the eV ranges [3, 4]. Crystal monochromators can be used for such a detection system. Here, we propose a new measurement system using crystal monochromators for NRF-based nondestructive assay of nuclear materials.

2. Method

Figure.1 shows images of the proposed method. Transmitted photons are introduced to monochromators and a detector. The right hand side of Figure 1 shows intensities of LCS gamma-rays before and after the transmission. The degree of the absorption can be determined by measuring the ratio of gamma-ray intensities at two different energies: on resonance and off resonance,

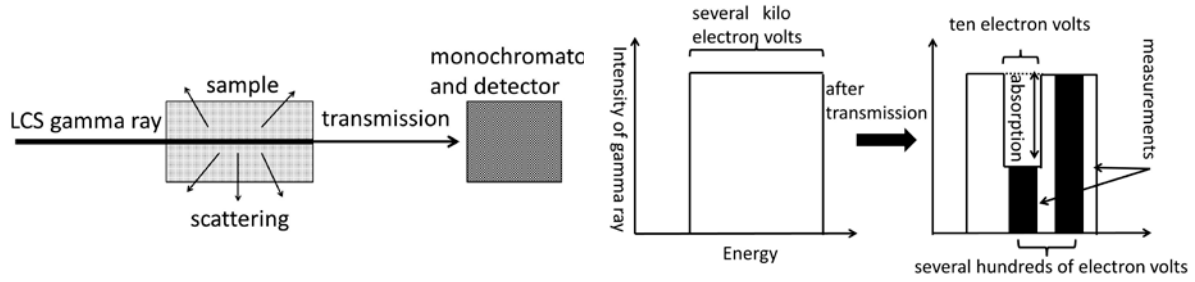


Fig.1 Images of a proposed method. The left is an image of the detection system. The right is an image of energy spectra of gamma-ray, showing before and after. The black areas are measurement energies.

3. Crystal monochromator.

In order to realize the measurement system mentioned above, a detector resolution less than several tens eV is required. A crystal monochromator satisfies this requirement. The performance of a crystal spectrometer such as energy resolution and crystal acceptance angle can be estimated by the dynamical theory of diffraction [5-7]. The acceptance angle of a perfect silicon crystal is typically 10^{-7} rad.

The center of the diffraction angle is determined by the Bragg condition

$$2d\sin\theta = n\lambda, (1)$$

where d is the lattice spacing, θ is the incident angle of gamma-rays, n is integer, and λ is the wave-length of gamma-rays. Figure.2 shows the crystal geometries for gamma-ray diffraction by two successive crystals. Since photons can be diffracted by two successive crystals with wide energy band in a nondispersive condition (where the crystals are set a parallel positions), this condition is useless for a monochromator. However, the nondispersive condition can be used to determine a reference angle and an instrument response. In contrast, the dispersive condition diffracts photons with narrow energy band and can be used as a monochromator.

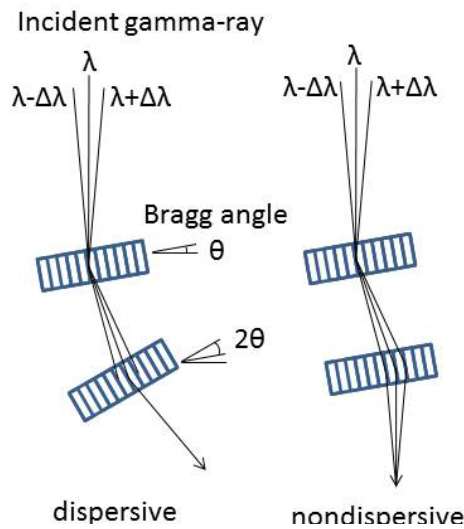


Fig.2 Crystal geometries of a monochromator

An image of the proposed system using the monochromator is shown in Figure 3. Two tandem monochromators are placed between a sample and detectors. This setup enables simultaneous measurement of photons at two different energies. While the first two crystals separate photons at resonance energy the second two crystals separate photons at nearby off-resonance energy.

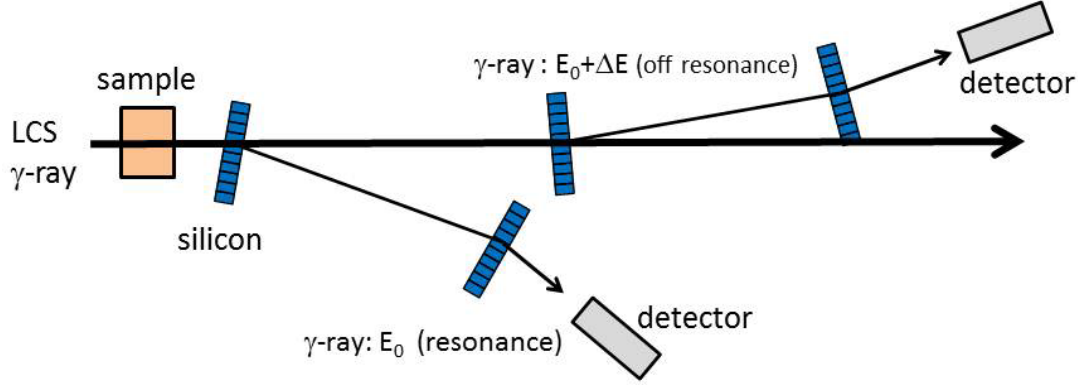


Fig.3 An image of the proposed system

4. Experimental plan

We will check the performance of a crystal monochromator at the NewSUBARU LCS gamma-ray facility in the Laboratory of Advanced Science and Technology for Industry, University of Hyogo [8].

In order to estimate counting rates of gamma-rays diffracted by a silicon crystal, we calculate the acceptance angle of the crystal. The lattice constant of silicon is 0.543 nm, and the Bragg angle is 3.8 mrad at the lattice plane of Si (440) assuming the photon energy of 1.7 MeV. The intensity of diffraction $I(t, y)$ depends on crystal thickness t and diffraction angle θ , given by

$$I(t, y) \propto \sin^2 \left(\frac{[A\sqrt{(1+y^2)}]}{1+y^2} \right). \quad (2)$$

$$A = \frac{\pi t}{t_0}, \quad t_0 = \frac{\pi V \cos \theta_B}{\lambda r_e F}, \quad y \approx (\theta_B - \theta) \sin 2\theta_B / \chi_h, \quad \chi_h = F r_e \lambda^2 / \pi V$$

where, V is the volume of crystal lattice, θ_B is the Bragg angle, λ is the wave length, r_e is the Thomson scattering length, F is the crystal structure factor [9] and θ is the diffraction angle. The integrated intensity of two successive Laue diffractions on crystals of equal thickness, t , is given by

$$\int_{-\infty}^{\infty} I(t, y)^2 dy \quad (3).$$

The integrate intensity oscillates as a function crystal thickness as shown in Figure 4. A crystal thickness of about 2 mm is appropriate for photons at the energy range of 1.5 MeV.

The rocking curve for 1.7 MeV gamma-ray, deduced by the equation (2) is shown in Figure 5. The acceptance angle $\Delta\theta$ of the crystal is about 0.1 μ rad FWHM. The energy resolution $\frac{\Delta E}{E} \approx \frac{\Delta\theta}{\theta}$ is 2.6×10^{-5} (44 eV). The counting rate N of gamma-ray can be obtained by

$$N = I_0 * \Delta\theta / \Delta\theta_b * \Delta E / \Delta E_b * R$$

where $\Delta\theta_b$ and ΔE_b are the divergence and energy spreading width of the incident LCS gamma-rays and R is the reflectivity of the crystals. Assuming the reflectivity of 4 %, the counting rates of gamma-rays are estimated to be 0.07 counts/sec in the dispersive condition and 105 counts/sec in the nondispersive condition.

Now we are preparing the crystals and a rotation table. Figure 6 shows the design of the crystal and the rotation table.

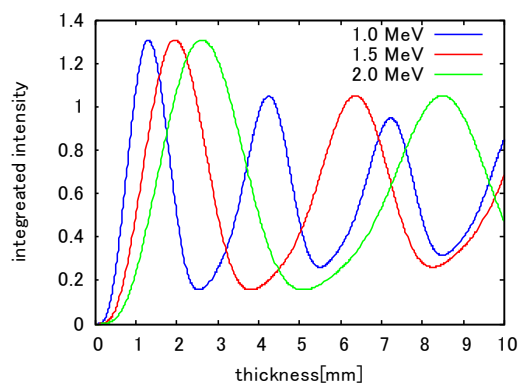


Fig.4 The integrated intensity of two successive Laue diffractions

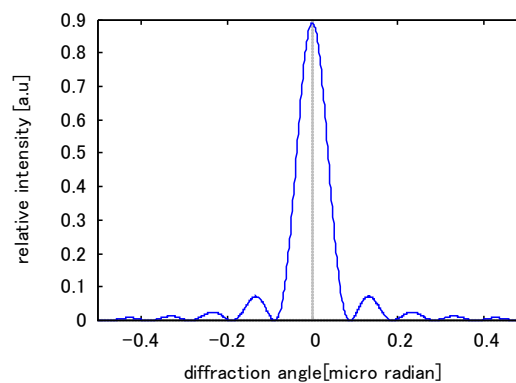


Fig.5 The rocking curve of 2 mm thick silicon crystal for gamma-rays at the energy of 1.7 MeV

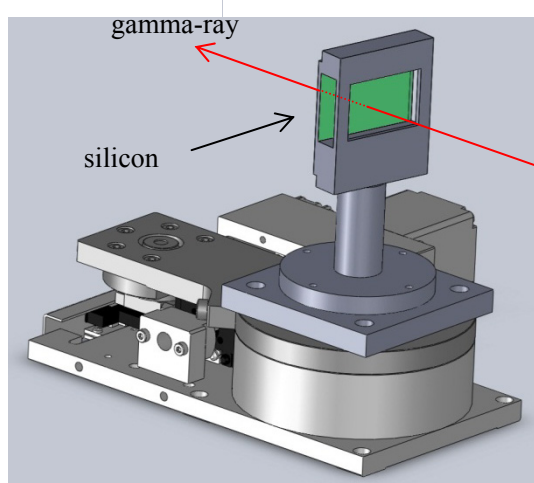


Fig.6 A design of a silicon crystal and a rotation table

5. Summary

We have proposed a new measurement system for isotope analysis using gamma-ray monochromators. We considered the system performance by the dynamical theory of diffraction.. Now, we are designing the experimental components. In near future, we will test the performance of the monochromator by using the LCS gamma-ray source at NewSUBARU.

References

- [1] R.Hajima, et al., J. Nucl. Sci. Technol. 45 441 (2008).
- [2] C.T.Angell, et al., Proceedings of the INMM 53rd Annual Meeting, Florida USA (2012).
- [3] E.G.Kessler, Jr. et al., Nucl. Instr. and Meth. Phys. Res. A 457 pp. 187-202 (2001).
- [4] D.Habs, et al., Phys Rev Lett, 108,184802 (2012)
- [5] J.J.Merril, and J.W.M.DuMond., Annals of Physics, 14, pp. 166-228 (1961)
- [6] Yu. Shvyd'ko, X-ray Optics High-Energy-Resolution Applications (2004)
- [7] Jens Als-Nielsen and Des McMorrow, *Elements of Modern X-ray Physics* (2011)
- [8] S. Miyamoto, *Kasokuki* (Accelerator) Vol. 5, No. 2. pp. 111-116 (2008) [in Japanese].
- [9] J. H. Hubbell et al., J. Phys. Chem. Ref. Data Vol. 4, No. 3, (1975).

4. 29 使用済核燃料の非破壊分析における統計誤差

Statistical Precision of ERL-based NDA for Spent Fuel

静間 俊行¹、早川 岳人¹、Christopher ANGELL¹、羽島 良一¹、
湊 太志²、須山 賢也²、瀬谷 道夫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独立行政法人日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門

³独立行政法人日本原子力研究開発機構 核不拡散・核セキュリティ総合支援センター

Toshiyuki SHIZUMA¹, Takehito HAYAKAWA¹, Christopher ANGELL¹, Ryoichi HAJIMA¹,
Futoshi MINATO², Kenya SUYAMA² and Michio SEYA³

¹Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

²Nuclear Science and Engineering Directorate, Japan Atomic Energy Agency

³Integrated Support Center for Nuclear Nonproliferation and Nuclear Security,
Japan Atomic Energy Agency

Nondestructive assay (NDA) of nuclear materials for spent fuel is a key technology in international nuclear security and safeguards perspectives. A technique based on nuclear resonance fluorescence (NRF) enables isotope-specific identification of nuclear materials. Statistical precision of the NRF-based NDA system was evaluated by estimating radiation background counts from spent fuel as well as NRF peak intensity.

Keywords: Nuclear Resonance Fluorescence, Laser Compton Scattering, Nondestructive Assay

1. Introduction

Nondestructive assay (NDA) of nuclear materials based on nuclear resonance fluorescence (NRF) has been proposed [1]. Since each nucleus has a unique resonance state, it is possible to assay specific nuclear materials by detecting NRF signals from nuclei of interest. An efficient NRF measurement is possible using a mono-energetic γ -ray beam from laser Compton scattering (LCS) [2,3]. One of the urgent issues for NDA is to establish a reliable technique to assay Pu content in spent fuel. However, the system performance such as statistical uncertainties of the NRF-based NDA measurement would be affected by radiation backgrounds from spent fuel. In this paper, we present results of the analysis of NRF intensity and background counts from spent fuel.

2. NRF and background counting rates

An NRF yield Y_{NRF} is obtained using an equation $Y_{\text{NRF}} = \phi \cdot I_s \cdot N_t$ where ϕ is the intensity of the incident LCS γ -ray beam, I_s is the integrated cross section, and N_t is the number of the target nucleus. When $\phi = 10^6$

photons/s/eV, $I_s=30$ eV b, and $N_t(^{239}\text{Pu})=0.057\text{g/cm}^2$ (effective thickness corresponding to Pu concentration of 1%), we obtain $Y_{\text{NRF}}=3300$. Assuming an overall peak detection efficiency of 2.4×10^{-4} for the detector system, the NRF count rate is calculated to be 0.8 counts per second (cps).

The detectors used for NDA of spent fuel may be subject to intense radiation backgrounds. Therefore, the analysis of the system performance should include effects from radiation backgrounds, which can be estimated using the ORIGEN2.2-UPJ computer code [4]. In case of a 10 years-old spent fuel assembly, photon intensity of radiation backgrounds is obtained to be 1×10^{16} photons/s/MtU (Metric ton of uranium), evaluated for a typical PWR 17×17 fuel assembly with initial ^{235}U enrichment of 4.1 wt% under burn-up condition of 55 GWd/MtU. Figure 1 shows photon intensity from fission products and actinides as well as the total photon intensity. Fission products (actinides) mainly contribute to the photon intensity at energies below (above) 3 MeV. Assuming that each Ge detector points at a small part of a fuel rod with a volume of 0.8 cm^3 which is determined by the size of the incident LCS γ -ray beam, radiation background intensity at $E=2.25$, 3.5, and 5 MeV is estimated to be 1.9, 9.8×10^{-3} , and 1.9×10^{-4} photons/s/eV, respectively. Assuming a detector energy resolution of 0.2 %, the radiation background rates summed up for 24 Ge detectors at NRF peak positions are calculated to be 2.0, 1.6×10^{-2} , and 4.6×10^{-4} cps at $E=2.25$, 3.5 and 5 MeV, respectively. The values at $E=3.5$ and 5 MeV are considerably small in comparison with the NRF count rate mentioned above.

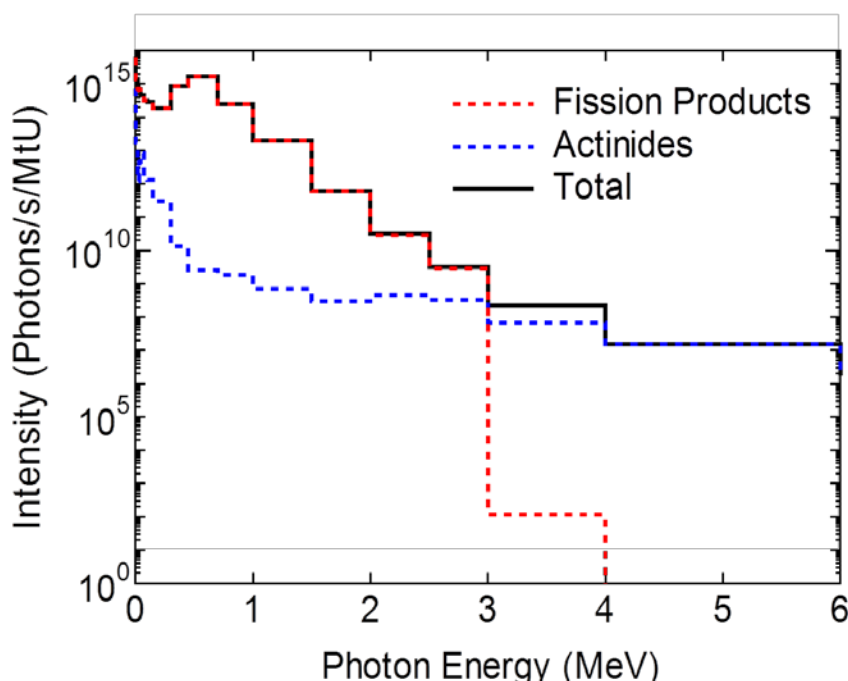


Fig.1 Photon intensities from a 10 years-old PWR 17×17 spent fuel assembly with the initial ^{235}U enrichment of 4.1 wt% under the burn-up condition of 55 GWd/MtU, evaluated using the ORIGEN2.2-UPJ computer code.

3. Statistical errors

In a simple case, a statistical error is defined as

$$\frac{\sigma_S}{S} = \frac{\sqrt{\sigma_T^2 + \sigma_B^2}}{T - B}$$

where S, T, and B are the NRF count, the total count (T=S+B), and the radiation background count, respectively. The associated statistical deviations are denoted as σ_S , σ_T , and σ_B . Using the NRF and radiation background count rates discussed in Sec. 2, a 1% Pu content in spent fuel can be assayed with about 2% precision during 4000 seconds measurement time assuming NRF peaks located around 3.5 to 5 MeV with an integrated cross section larger than 30 eV b.

4. Conclusion

We evaluated NRF peak intensity assuming various integrated cross sections. In addition, radiation background counts were calculated using the burn-up code ORIGEN2.2-UPJ for a typical PWR fuel assembly. It is possible to assay 1% Pu content in spent fuel with about 2 % statistical error during 4000 second measurement time for NRF peaks at E=3.5~5 MeV with an integrated cross section of 30 eV b.

References

- [1] W. Bertozzi and R.J. Ledoux, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **241** 820 (2005).
- [2] J. Pruet, et al., J. Appl. Phys. **99** 123102 (2006).
- [3] R. Hajima, et al., J. Nucl. Sci. Technol. **45** 441 (2008).
- [4] K. Suyama, et al., ZZ ORIGEN2.2-UPJ, A complete package of ORIGEN2 libraries based on JENDL-3.2 and JENDL-3.3, <http://www.oecd-nea.org/tools/abstract/detail/NEA-1642>.

4. 30 高時空間品質レーザーシステムの開発

Development of the High Spatiotemporal Quality Laser System

桐山 博光

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

Hiromitsu KIRIYAMA

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

We present two specific high power laser systems that are being developed at our laboratory for many applications such as high field science and nonlinear optics. We report on an ultra-high intensity petawatt-class OPCPA/Ti:sapphire hybrid laser system that can produce a pulse energy of ~ 18 J with ~ 30 fs pulse duration for studying extremely high intensity laser matter interaction processes, and a small-scaled OPCPA/Yb:YAG hybrid laser system that can generate a pulse energy of ~ 100 mJ with ~ 500 fs pulse duration at 10 Hz as a compact and high efficiency system.

Keywords: High intensity laser, Chirped-pulse amplification

1. Introduction

In our institute, we are studying 1) a new scheme for separating isotopes for reduction of radioactive wastes in the nuclear fuel cycle, 2) a laser driven ion accelerator for cancer therapy. For these applications, it is necessary to improve the spatiotemporal quality and to evaluate the compact set-up of high intensity laser system.

2. Ultra-high intensity laser system

Chirped-pulse amplification (CPA) has ushered remarkable progress in the development of ultra-intense laser systems with peak powers up to the petawatt level and with focused intensities up to 10^{20} W/cm² or more in small laboratories. In ultra-intense laser systems used for plasma physics research, contrast is one of the most important properties of the laser pulse. A low-contrast pulse can form a preplasma on the target before the main femtosecond pulse arrives, which significantly changes the nature of the interaction. Moreover, large aperture Ti:sapphire amplifiers require a homogeneous, flat-topped distribution of the pump laser to maintain good beam quality, maintain reliable, damage-free operation, and to increase amplification efficiency.

Here, we report the generation of a temporally and spatially high-quality petawatt-class laser pulses with J-KAREN laser system [1,2]. In order to obtain very high temporal contrast, the laser system utilizes a low-gain OPCPA (optical parametric chirped-pulse amplification) preamplifier that is seeded with ‘cleaned’ higher energy pulses (“cleaned” refers to suppression of the amplified spontaneous emission pedestal) in two successive CPA stages that are linked by a saturable absorber (SA). A second SA is also introduced downstream of the OPCPA preamplifier to remove much of its parametric fluorescence. After passing through the second SA pulses are then amplified in a Ti:sapphire preamplifier, a cryogenically

cooled Ti:sapphire power amplifier, and large aperture Ti:sapphire final amplifier and finally recompressed in a vacuum compressor. Antireflection-coated DOEs with a clear aperture of 80 mm were used for pump beam homogenization of final amplifier producing a circular flat-top spatial profile with sharp edges. We have achieved ~ 28 J of uncompressed broadband output energy with this system, indicating the potential for reaching peak powers near 0.6 PW with a compressed pulse duration of about 30 fs.

Figure 1 illustrates that a spatially flat-topped spatial profile from final amplifier was obtained. We measure the contrast at ~ 70 TW power level without pumping the final amplifier. Figure 2 shows a temporal contrast trace spanning several hundred picoseconds prior to the main ultrashort pulse. The measured background level is about 10^{-12} relative to the peak of the main pulse. Taking into account the calculated gain in the final amplifier, we conclude that the contrast is less than 10^{-11} even though we use the final amplifier with the maximum pumping level.

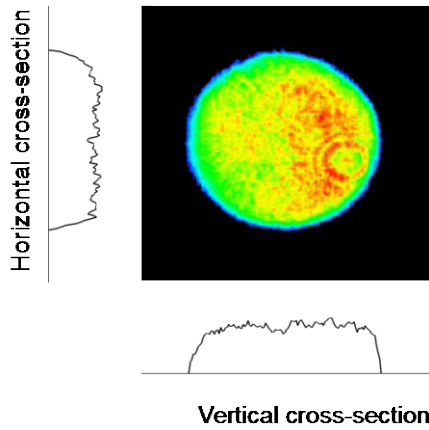


Fig.1 Beam profile of the final Ti:sapphire amplifier.

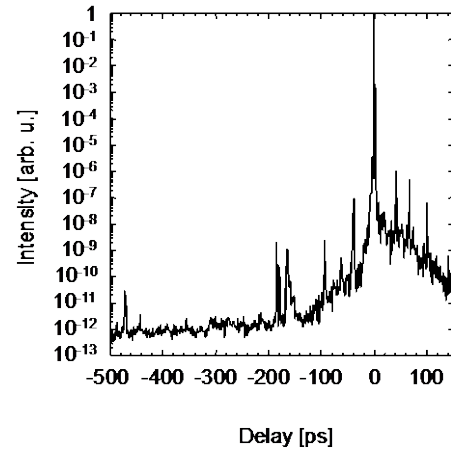


Fig.2 Third-order cross correlation trace of OPCPA/Ti:sapphire laser system.

3. Compact, high efficiency laser system

As mentioned above, the invention of CPA together with the Ti:sapphire gain material has opened a route to experimental inquiries of laser-matter interactions in the relativistic regime. The Ti:sapphire CPA lasers in widespread use are pumped by lamp pumped green lasers, which are limited in the system size. However, one can overcome this limitation and also benefit from the improved stability and maintenance effort, which are required for many applications. Among several laser gain materials for short pulse amplification, the Yb:YAG is one of the most attractive materials for compact high intensity CPA lasers because of Yb^{3+} ion's excellent spectroscopic and material properties for amplifying short pulses and for being pumped with commercially available near-infrared high power laser-diode (LD) [3]. The LD pumped laser systems can be significantly more compact than similar lamp pumped laser systems. Features of the thin-disk geometry which are suitable for Yb:YAG laser material are very low thermal lens effects owing to efficient cooling with a good volume to surface ratio and the temperature gradient that is predominantly parallel to the beam direction, allowing for high spatial beam quality. Furthermore, it exhibits simple power scalability. Power can be increased by simply increasing the pump and seed

diameters on the amplifier disk [3].

As noted above, ASE can generate unwanted preformed plasma and influence laser-plasma interactions driven by short pulses. OPCPA is becoming increasingly popular as a front end preamplifier system that can significantly reduce the ASE background level, improving the temporal contrast. OPCPA also provides broadband amplification, avoiding the strong gain narrowing in Yb:YAG. Thus, an OPCPA/Yb:YAG thin-disk CPA laser system is the most promising candidate for realizing a compact high-spatiotemporal-quality, high intensity laser system.

At a 40 MHz repetition-rate the oscillator delivered 20 nJ pulses of 5.5 nm bandwidth at a 1029 nm central wavelength. The near transform-limited pulse duration of 220 fs were stretched to about 1 ns with a pulse energy reduced to 12 nJ using an Öffner stretcher of 60 % efficiency. Stretched pulses were subsequently amplified and then compressed by a grating pair. Following the stretcher and prior to amplification a commercial pulse selector extracted 10 Hz seed pulses that were synchronized to a Nd:YAG 532 nm pump laser. The gain of a three-stage (BBO) OPCPA preamplifier increased the output pulse energy to 3.5 mJ. Following preamplification the laser pulse energy was further increased by a Yb:YAG (7 at %) ceramic thin disk amplifier. This thin disk is of 0.6 mm thickness and is mounted on a 1.0 mm thick YAG (undoped) disk of diameter of 14 mm. The Yb:YAG disk was pumped by the Q-CW fiber coupled LD unit at an energy of 2 J with 2 ms pump pulse duration (kW peak power). After 20 passes across the thin disk, we achieved the maximum output energy of 98.6 mJ with bandwidth of 2.2 nm (FWHM) and at 10 Hz.

The Yb:YAG amplifier output is subsequently recompressed with a gold grating pair. The measured pulse duration using FROG (GRENOUILLE UPM-10-100, Swamp Optics) is 470 fs (FWHM), which is shorter than the pulse duration in the previous Yb:YAG CPA system using a regenerative amplifier. Because compressor efficiency exceeds 70 % we anticipate the current compressed pulse energy to be near 60 mJ. The near-field beam profile has a smooth distribution with no local hot spots as shown in Fig. 3. Figure 4 illustrates the temporal contrast trace of the final amplified pulse. The contrast level 150 ps before the main pulse is measured to be 10^{-8} .

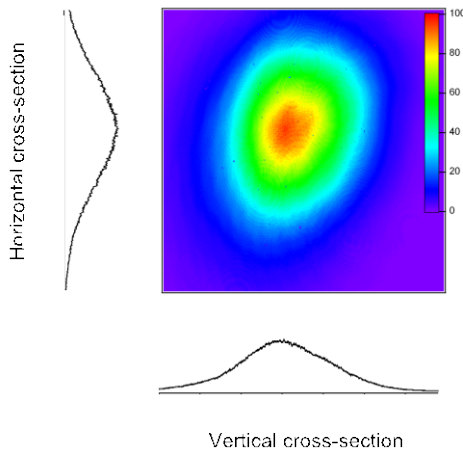


Fig.3 Beam profile of the final Yb:YAG amplifier.

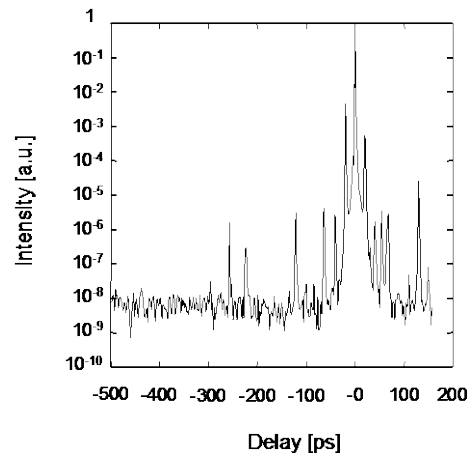


Fig.4 Third-order cross correlation trace of OPCPA/Yb:YAG laser system.

4. Conclusion

We have successfully combined multiple techniques to realize the high spatiotemporal quality laser system. In Yb:YAG laser system, the efforts are dedicated to increase the repetition rate up to 1 kHz for isotope separation study at this moment. In the J-KAREN laser system, the efforts are dedicated to improve the focal spot and to enhance the contrast more for studying relativistic laser-matter interactions.

References

- [1] H. Kiriya et al., Opt. Lett., **35** 1497 (2010).
- [2] H. Kiriya et al., Appl. Opt., **49** 2105 (2010).
- [3] H. Kiriya et al., Rev. Laser. Eng, **40** 143 (2011).

4. 31 高平均出力動作のための 298K から 393K における Yb 系セラミック

材料の誘導放出断面積の温度依存性評価

Evaluation of Temperature Dependence of the Emission Cross-section of Yb-doped Ceramic Materials from 298K to 393K for High Average Power Operation

泉野 亨輔¹, 石崎 健馬¹, 剣持 貴弘¹, 和田 元², 桐山 博光^{1, 3}

¹同志社大学大学院 生命医科学研究科

²同志社大学大学院 理工学研究科

³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

Kyosuke IZUNO¹, Katsuma ISHIZAKI¹, Takahiro KENMOTSU¹, Motoi WADA² and Hiromitsu KIRIYAMA^{1,3}

¹Faculty of Life and Medical Sciences, Doshisha University

²Faculty of Sciences and Engineering, Doshisha University

³Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

The temperature dependence of the emission cross-sections of ceramic materials doped with Yb have been investigated in the temperature range from 298K to 393K. The materials such as YAG, Y₂O₃ and Lu₂O₃ have been adopted as host ceramic materials. The emission spectra have been found to decrease with a rise in temperature. The cross sections at the wavelength giving the peaks in the emission spectra have shown a gradual decrease against temperature.

Keywords: Yb:YAG, Yb:Y₂O₃, Yb:Lu₂O₃, LD Pumped Solid State Laser, Ceramic Materials

1. Introduction

Polycrystalline ceramic materials attract much attention as a new type of laser host material. Ceramic laser materials have the advantages of a short production period, low fabrication cost and ease to prepare large size material, compared to crystal laser materials [1]. Among the candidate ceramics, Yb-doped materials are considered most promising for high average power operation. In the case of high average power operation, because of heat generation in the materials due to thermal loading, investigation of the temperature dependence at elevated temperature in emission cross section is especially important for a reliable laser modeling.

2. Experimental setup

The emission cross sections of Yb-doped ceramics such as Yb:YAG, Yb:Y₂O₃, and Yb:Lu₂O₃ are measured over a temperature range appropriate for high average power operation. Figure 1 shows the schematic diagram of spectrum and fluorescence lifetime experimental apparatus. The ceramics of various doping levels (3-, 5-, 9.8-, and 20%-doped) are fabricated at Konoshima Chemical Co., Ltd.

Ceramic materials are shaped to 10 mm diameter with 0.1 mm thickness in order to make the optical thickness thin enough for eliminating radiation trapping [2]. The test materials are inserted in between two pieces of 10 mm diameter 2.0 mm thickness undoped YAG plates and aligned so that the planes are perpendicular to the laser axis (Fig.2). The temperature of the ceramics is varied over the range of 298-393 K by mounting them in a container, which is especially designed based on finite element method (FEM) to establish a homogeneous temperature profile of a test material.

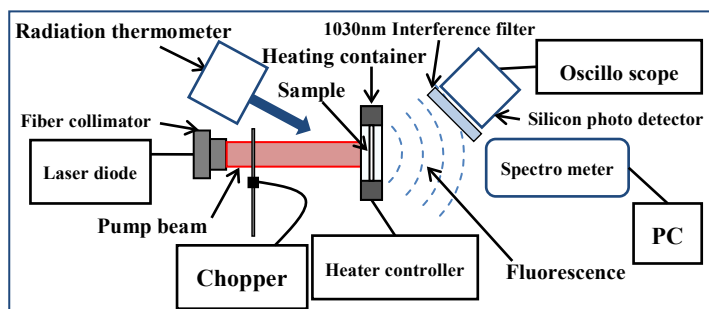


Fig.1. Schematic diagram of spectrum and fluorescence lifetime experimental apparatus.(Chopper is used only for fluorescence lifetime measurement.)

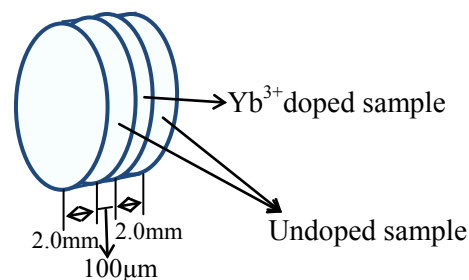


Fig.2. Schematic diagram of Yb-doped ceramic material sample.

3. Results and discussion

The fluorescence intensities have decreased and the fluorescence line widths have broadened at higher temperature. The lifetimes are almost same against the temperature as well as the doping level. Figure 3 shows the temperature dependence of the peak emission cross-section obtained from the measured fluorescence spectra and the lifetime values, using Füchtbauer-Ladenburg formula for tested ceramics. A change in the emission cross-section due to the change of temperature is obtained. For example, it was found that the emission cross section for 5%-doped Yb:YAG decreases down to 64% of the original value by increase of temperature from 298 K to 393 K.

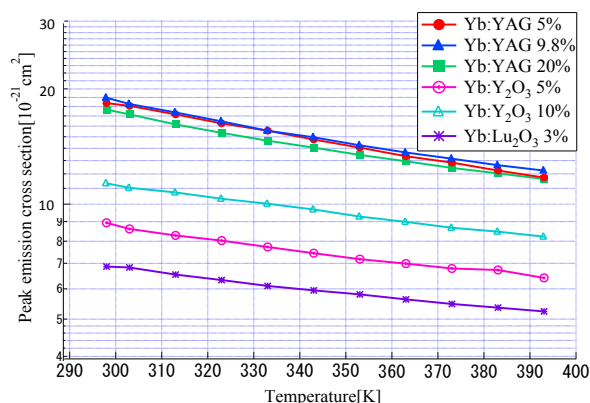


Fig.3. Peak emission cross section of various Yb-doped ceramics as a function of temperature. The markers like circles and triangles show experimental data.

4. Conclusion

The emission cross section data obtained in this series of experiments can form a base to numerically express cross-sections for laser materials as functions of temperature, which can be utilized for setting up a numerical model to predict laser output at high average power operation.

References

- [1] K. Ueda, J. -F. Bisson, H. Yagi, Laser Physics, **15**, pp. 927–938 (2005).
- [2] D. S. Sumida and T. Y. Fan, Optics Letters, **19**, pp. 1343-1345 (1994).

4. 32 軟X線顕微鏡を用いた細胞構造の可視化技術の高度化

Sophistication of Imaging Technology of Cellular Organelles with Soft X-ray Microscope

岸本 牧、加道 雅孝、篠原 邦夫*、保 智**、安田 恵子**

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

*早稲田大学理工学術院理工学研究所

**奈良女子大学理学部生物科学科

Maki KISHIMOTO, Masataka KADO, Kunio SHINOHARA*, Satoshi TAMOTSU** and

Keiko YASUDA**

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

*Research Institute for Science and Engineering, Waseda University

**Department of Biological Science, Nara Women's University

The development of the transparent soft x-ray photoresist plate and its application to the multi-color imaging of hydrated biological cell is presented. The developed transparent x-ray photoresist plate made it possible to compare between soft x-ray microscope image and fluorescent microscope images.

Keywords: Soft x-ray, Soft x-ray microscope, Fluorescent microscope, Biological cell

1. はじめに

生物学の分野において生体細胞内微細構造と細胞の生命活動の関係を明らかにするためには、水中の生きた細胞を高い空間分解能で直接観察することが望ましい。そこで我々は水中の生きた細胞を光学顕微鏡の空間分解を超える 100nm 以下という高空間分解で観察することが可能なレーザープラズマ X 線源を用いた水の窓軟 X 線顕微鏡の開発を行っている[1-3]。ところがこの軟X線顕微鏡を使って得られた X 線像に映し出された細胞内微細構造体が実際の生体活動においてどのような機能を担っているかを議論するためには、X線顕微鏡像と電子顕微鏡や光学顕微鏡で行ったその他の細胞イメージング装置を使って得られた細胞像との比較検討が必要となってくる。そこで我々は軟X線顕微鏡像と蛍光顕微鏡像との直接比較によって軟X線顕微鏡像中に見える細胞構造対が何であるかを同定するための新しい手法を提案した。そこでは、細胞の特定構造を染色する事の出来る蛍光色素を使って軟X線顕微鏡像を取得する直前の蛍光像をあらかじめ取得しておき、後に軟X線像と比較することによって細胞内構造の同定を行う。しかしながらこれを実現するためには、X線照射直前の水中細胞の様子を蛍光顕微鏡により直接観察することを可能にする技術開発が必要である。そこで我々は、透明軟X線フォトレジスト基板を用いたマルチカラーイメージング技術の開発に着手した。

2. 透明軟X線フォトレジスト基板の開発とそれを用いた蛍光顕微鏡像と X 線像の取得

超平面ガラス基板(7mm×7mm、厚さ 0.5mm)を用意し、その上に半導体製造手法で一般的に使われているスピンコート法を用いて軟 X 線フォトレジスト材である PMMA の高平面薄膜を形成した。形成された PMMA の膜の厚さは 500nm である。その後 PMMA 基板はベーキングされ余分な有機成分を飛ばすこ

とにより堅固な PMMA 薄膜を形成した。この基板の上にマウスの精巣細胞を直接培養し、X 線顕微鏡像取得の直前に細胞を蛍光染色して特殊な真空用細胞ホルダーにセットする (Fig.1 参照)。そして蛍光顕微鏡で蛍光像を取得してから軟 X 線を照射して軟 X 線像を取得、得られた蛍光像と X 線顕微鏡像の比較検討を行う (Fig.2 参照)。

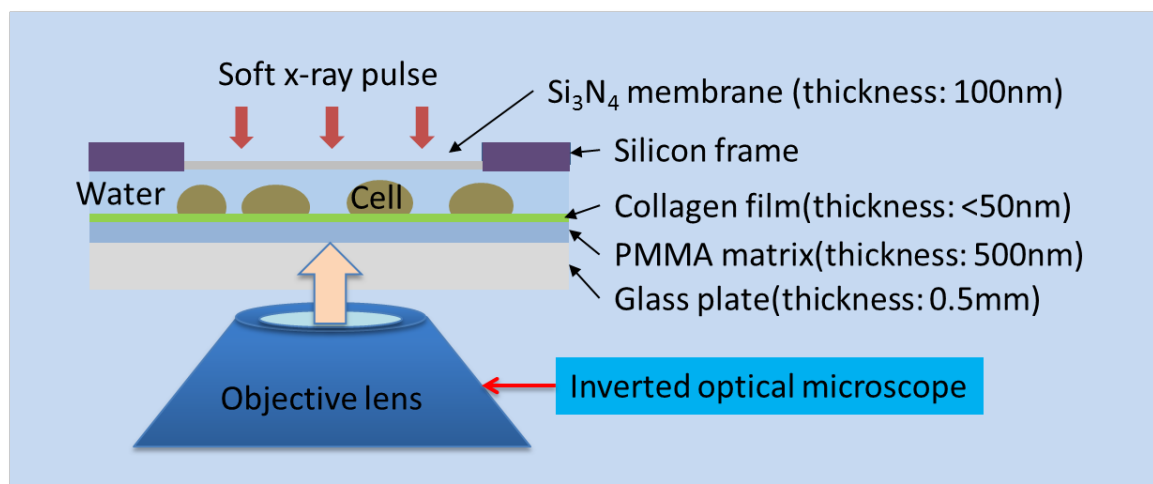


Fig.1 Schematic view of contact x-ray microscope using transparent soft x-ray photoresist plate.

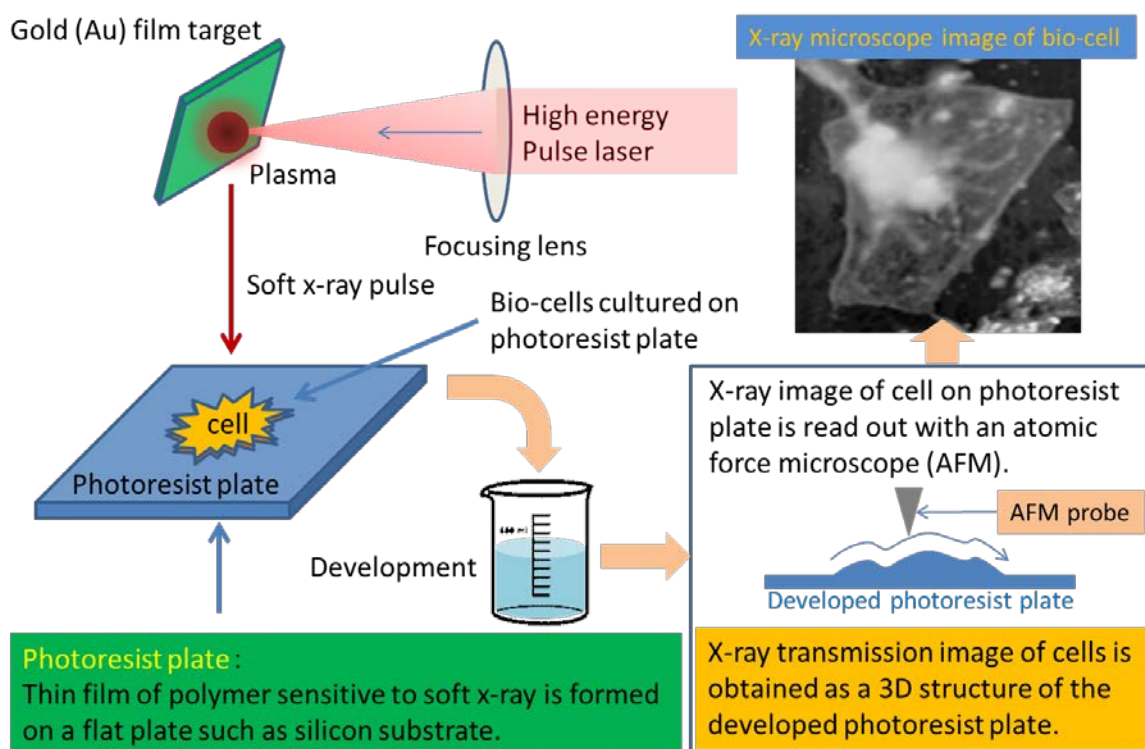


Fig.2 Taking of soft x-ray transmission image of biological cell using the contact soft x-ray microscope.

3. マウス精巣ライディッヒ細胞の蛍光像及び X 線顕微鏡像の取得とその比較

Fig.3(a)–(c)に 3 種類の蛍光色素 (DAPI, Phalloidin, Mito-tracker) で染色したライディッヒ細胞の蛍光像を示す。これらの蛍光色素は、それぞれクロマチン、細胞骨格、ミトコンドリアという細胞内構造体に特

異的に結合し、その蛍光像は細胞内にこれらの構造体がどのように分布しているかを示している。また Fig.3(d)に同じ細胞の軟 X 線顕微鏡像を示す。図より分かるように X 線顕微鏡で見えている構造が、いったい何であるのか同定が十分可能である事が分かる。今後は軟 X 線顕微鏡の改良を行い、空間分解能の改善と蛍光像と X 線顕微鏡像の比較能の高度化を目指していく。

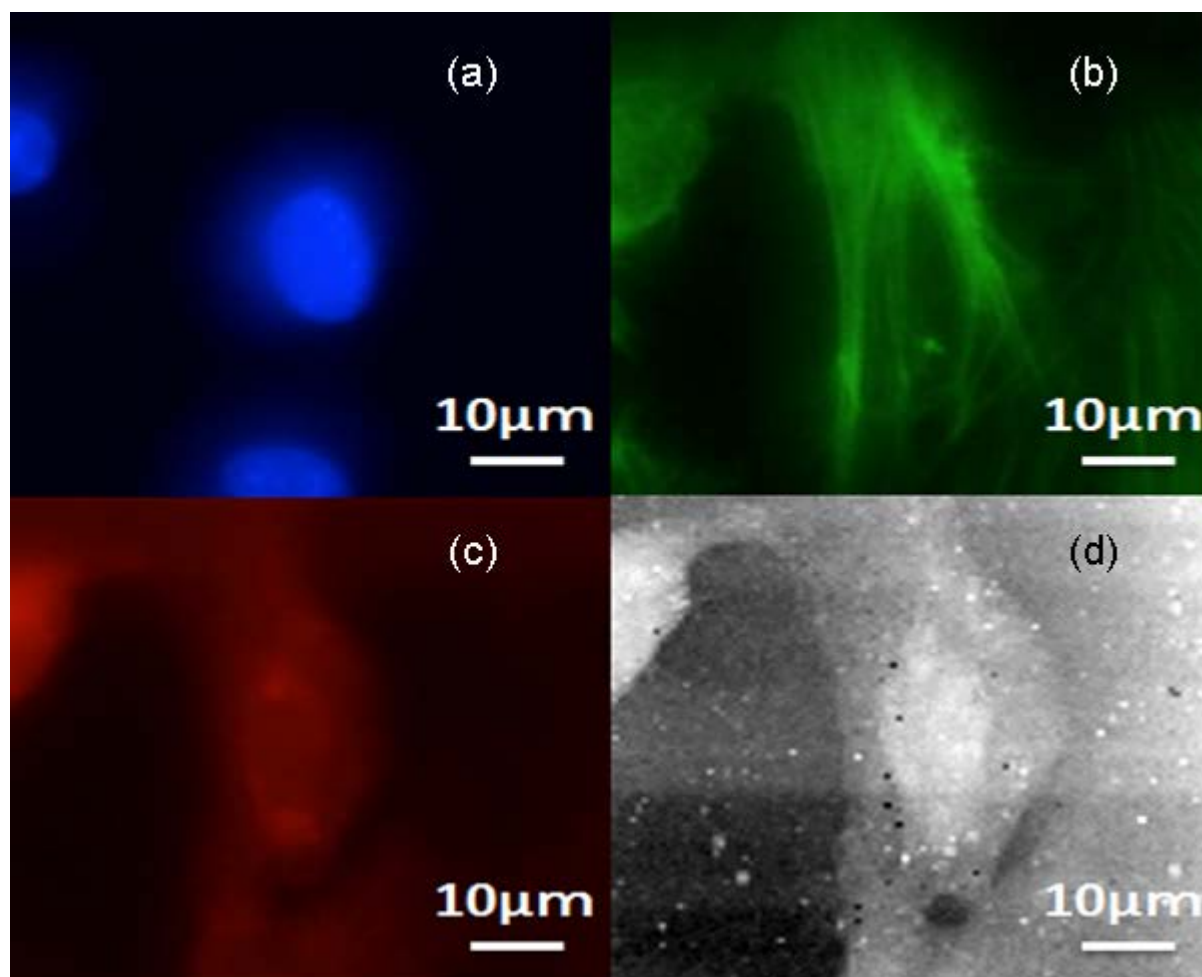


Fig.3 Fluorescent images and x-ray image of a Leydig cell. (a) chromatin, (b) cytoskeleton, (c) mitochondria and (d) an x-ray transmission image of the Leydig cell.

参考文献

- [1] M. Kado et al., IEEJ Trans. EIS, **30**, pp.1774-1778 (2010)
- [2] M. Kishimoto et al, AIP Conf. Proc. 1465, pp.43-47 (2012)
- [3] M. Kado et al., AIP Conf. Proc. 1465, pp.246-250 (2012)

4.33 New Regime of High-order Harmonic Generation by Relativistic-irradiance Lasers ($I > 10^{18}$ W/cm²) in Gas Jet Targets

Alexander S. Pirozhkov¹, Masaki Kando¹, Timur Zh. Esirkepov¹, Anatoly Ya. Faenov^{1,2}, Tatiana A. Pikuz^{1,2}, Yukio Hayashi¹, Hideyuki Kotaki¹, Koichi Ogura¹, Keigo Kawase¹, Eugene N. Ragozin^{3,4}, Takashi Imazono¹, James K. Koga¹, Hiromitsu Kiriya¹, Takuya Shimomura¹, Manabu Tanoue¹, Yoshiki Nakai¹, Shuji Kondo¹, Shuhei Kanazawa¹, Yuji Fukuda¹, Michiaki Mori¹, Tetsuya Kawachi¹, Akito Sagisaka¹, Pablo Gallegos^{5,6}, Hamad Ahmed⁷, Mireille Coury⁶, James Green⁵, Peta Foster⁵, Ceri Brenner^{5,6}, Brendan Dromey⁷, Dan R. Symes⁵, Pattathil Rajeev⁵, Paul McKenna⁶, Marco Borghesi⁷, Liming Chen⁸, Hiroyuki Daido⁹, David Neely^{5,6}, Yoshiaki Kato¹⁰, Kiminori Kondo¹ and Sergei V. Bulanov¹

1. Advanced Beam Technology Division, Quantum Beam Science Directorate,
Japan Atomic Energy Agency
2. Joint Institute for High Temperatures of the Russian Academy of Sciences
3. P. N. Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences
4. Moscow Institute of Physics and Technology (State University)
5. Central Laser Facility, Rutherford Appleton Laboratory, STFC
6. Department of Physics, SUPA, University of Strathclyde
7. Centre for Plasma Physics, The Queen's University Belfast
8. Institute of Physics of the Chinese Academy of Sciences
9. Applied Laser Technology Institute, Tsuruga Head Office,
Japan Atomic Energy Agency
10. The Graduate School for the Creation of New Photonics Industries

We discovered a new regime of high-order harmonic generation by a multi-TW femtosecond laser focused to a gas jet. Comb-like spectra with hundreds of even & odd harmonic orders, reaching the 'water window' spectral range, were generated by either linearly or circularly polarized pulses. Importantly, the photon energy and number of photons increase with the laser power. We introduced a new mechanism of harmonic generation by sharp, structurally stable, oscillating electron spikes at the joint of the wake wave and bow wave boundaries. Our results open the way to a compact bright coherent x-ray source which can be built using a university-lab-scale repetitive laser and accessible, replenishable, and debris-free gas jet target. Our discovery will benefit many areas of fundamental research and applications requiring a bright x-ray/XUV source for pumping, probing, imaging, and attosecond science.

Keywords: High-order Harmonics, Relativistic Laser-plasma, Compact Coherent X-ray Source

1. Introduction

Bright x-ray sources are indispensable for fundamental research enabling many applications in life sciences, material sciences, nanotechnology, etc. An ultimate performance requires temporally and

spatially coherent x-ray pulses, that are compressible to attosecond durations, focusable to nanometer spots, and capable of producing fine interference and diffraction patterns. Two broad classes of bright x-ray sources are available, based on large-scale accelerators (synchrotrons and x-ray free electron lasers) and compact lasers (laser plasma x-ray emission, plasma-based x-ray lasers, atomic high-order harmonics, betatron sources, etc.). A great advantage of the compact laser-based sources is their accessibility for a university-scale laboratory. In addition, laser-based sources are intrinsically ultrafast, with pulse durations down to the attosecond range. Our aim is to develop a new generation of compact bright coherent x-ray sources scalable to keV photon energies to create new fields of fundamental research and applications.

2. Experimental results

We discovered a new regime of high-order harmonic generation by high-power (10-200 TW) relativistic-irradiance ($>10^{18}$ W/cm²) femtosecond lasers (~ 30 -50 fs) focused to gas jet targets [1]. We used the J-KAREN laser in KPSI, JAEA [2] and Astra Gemini laser in the CLF, RAL, UK [3]. A typical experimental setup is shown in Fig. 1 (a). We have observed comb-like spectra with hundreds of even & odd harmonic orders, Fig. 1 (b), either with linearly or with circularly polarized laser pulses. The number of photons was scalable with the laser power, Fig. 2 (a). The spectra continued up to the photon energies of several hundred eV, including the 'water window' spectral range, Fig. 2 (b).

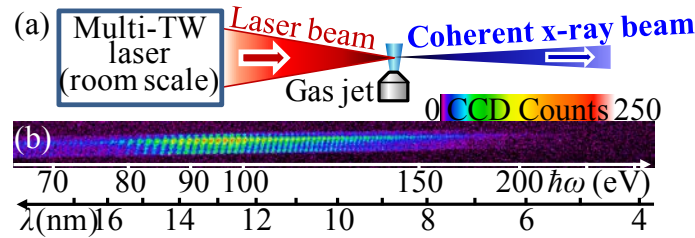


Fig. 1. (a) Experimental setup schematic. (b) Typical single-shot raw data.

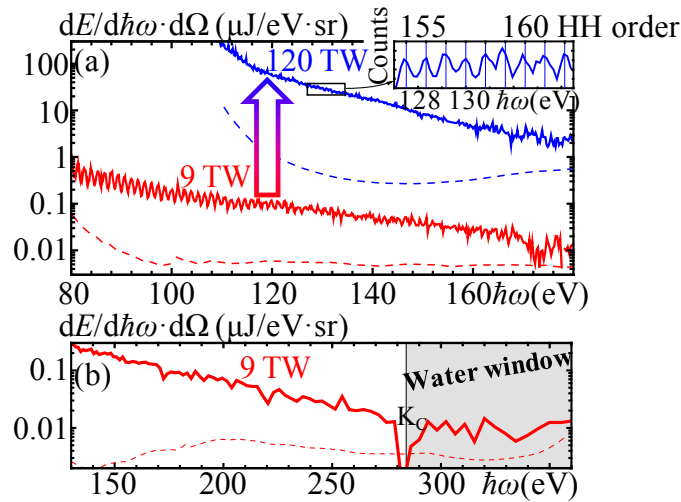


Fig. 2. (a) Harmonics spectra in absolute units and scalability with the laser power.

(b) 'Water window' radiation obtained with the 9 TW laser.

3. New harmonic generation mechanism

Using particle-in-cell (PIC) simulations employing the REMP code [4] and mathematical catastrophe theory [5], we introduced a new mechanism of harmonic generation by sharp, structurally stable, oscillating electron spikes at the joint of the wake wave and bow wave boundaries. The results of 3D PIC simulation demonstrating the electron density spike and location of the high-order harmonic source is shown in Fig. 3 (a). The harmonics spectrum obtained from high-resolution 2D PIC simulation is shown in Fig. 3 (b). Using classical electrodynamics [6] and relation between the laser amplitude and power under the stationary self-focusing condition in plasma [7], we found that the achievable harmonic order is proportional to the driving laser power.

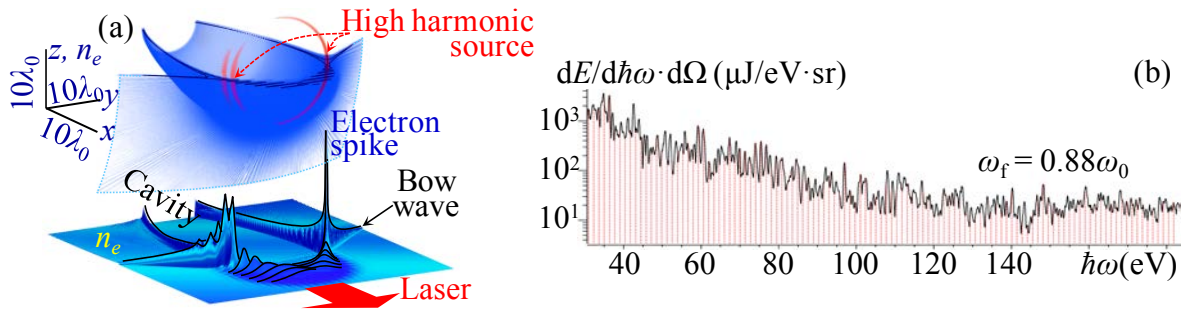


Fig. 3. (a) 3D PIC simulations demonstrating electron density spike at the joint of the boundaries of the wake and bow waves and location of high harmonics source. (b) Harmonics spectrum from high-resolution 2D PIC simulation.

4. Conclusion

Our compact bright coherent x-ray source can be built on a university-lab-scale repetitive laser and accessible, replenishable, and debris-free gas jet target. Importantly, the photon energy and number of photons are scalable with the laser power. This will impact many areas of fundamental research and applications requiring a bright x-ray/XUV source for pumping, probing, imaging, or attosecond science.

Acknowledgements

We acknowledge the financial support from the Japanese Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) (Kakenhi 20244065, 21604008, 21740302, and 23740413), JAEA President Grant, and STFC facility access fund.

References

- [1] A. S. Pirozhkov, et al., Phys. Rev. Lett. **108**, 135004-5 (2012); JAEA press release 3 March 2012 (in Japanese).
- [2] H. Kiriya et al., Opt. Lett. **33**, pp. 645-647 (2008).
- [3] C. J. Hooker et al., J. Phys. IV France **133**, pp.673-677 (2006).
- [4] T. Zh. Esirkepov, Comput. Phys. Comm. **135**, pp. 144-153 (2001).
- [5] T. Poston and I. Stewart, *Catastrophe theory and its applications* (Dover, Mineola, NY, 1996).
- [6] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (Wiley, New York, 1998), 3rd ed.
- [7] S. S. Bulanov et al., Phys. Plasmas **17**, pp. 043105-043108 (2010).

付録 集合写真



(編) シンポジウム事務局
独立行政法人日本原子力研究開発機構
関西光科学研究所
量子ビーム応用研究部門 研究推進室 (木津)

〒619 - 0215 京都府木津川市梅美台 8-1-7
0774-71-3000 (代表)
0774-71-3474 (デスク)
0774-71-3316 (ファクシミリ)

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량	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	ジーメンズ	S	A/V	m ⁻² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	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
セルシウス度 ^(e)	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光束度	ルーメン	lm	cd sr ^(c)	cd
照射度	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
酸素活性化	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のみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてののみ使用される。
(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
粘着力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
体積エネルギー	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
電界の強さ	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電荷密度	ジュール毎平方メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
表面電荷	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
透磁率	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
モルエネルギー	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
吸収線量率	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
放射線強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ =m ² kg s ⁻³
酵素活性濃度	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
	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	Y	10 ⁻¹	デ	d
10 ²¹	ゼ	Z	10 ⁻²	セ	c
10 ¹⁸	エ	E	10 ⁻³	ミ	m
10 ¹⁵	ペ	P	10 ⁻⁶	マイ	μ
10 ¹²	テ	T	10 ⁻⁹	ナ	n
10 ⁹	ギ	G	10 ⁻¹²	ピ	p
10 ⁶	メ	M	10 ⁻¹⁵	フェ	f
10 ³	キ	k	10 ⁻¹⁸	ア	a
10 ²	ヘ	h	10 ⁻²¹	ゼ	z
10 ¹	デ	da	10 ⁻²⁴	ヨ	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 ⁴ m ²
リットル	L, l	1L=1l=1dm ³ =10 ³ cm 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)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻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)×10 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 ⁵ Pa
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
バイン	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。
ベレル	B	
デジベール	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	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 ⁴ cd m ⁻²
フット	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² 10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G 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 ≡ (10 ³ /4π)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=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 ⁻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 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	1cal=4.1858J (「15°C」カロリー) , 4.1868J (「IT」カロリー) 4.184J (「熱化学」カロリー)
マイクロン	μ	1 μ =1μm=10 ⁻⁶ m

