KEK Proceedings 2007-8 December 2007 M

Compact ERL and the Scientific Case



2007年7月9日・10日 高エネルギー加速器研究機構 編集:河田 洋(KEK/PF)



High Energy Accelerator Research Organization

High Energy Accelerator Research Organization (KEK), 2007

KEK Reports are available from:

High Energy Accelerator Research Organization (KEK) 1-1 Oho, Tsukuba-shi Ibaraki-ken, 305-0801 JAPAN

 Phone:
 +81-29-864-5124

 Fax:
 +81-29-864-4602

 E-mail:
 irdpub@mail.kek.jp

 Internet:
 http://www.kek.jp

ERL 研究会「コンパクト ERL が拓く世界」目次

プログラム1
本研究会「コンパクト ERL が拓く世界」の目的 河田 洋(KEK, PF)
「コンパクト ERL における CSR によるテラヘルツ光とレーザーコンプトン散乱によるパルスX線の
見積もり」 原田健太郎(KEK, PF)6
「コンパクトERLにおけるバンチ圧縮の可能性に関して」 島田美帆(UVSOR)
「ATF におけるレーザーコンプトン散乱実験」 浦川順治(KEK, 加速器)
「レーザーコンプトン散乱装置(産総研の装置)」 酒井文雄(住友重機械)
「レーザーコンプトン散乱装置用タイミング同期レーザー」 小林洋平(産総研)41
「テラヘルツ放射光の現状と大強度 CSR の利用」 木村真一(UVSOR)
「テラヘルツ技術の現状と展望」 斗内政吉(阪大レーザー研)
「テラヘルツ時間領域分光法と基礎科学への応用」 田中耕一郎(京大理)
「赤外光励起による半導体中の不純物拡散の制御」 白井光雲(阪大産研)
「京大炉ライナック及び JAEA-ERL におけるテラヘルツ・コヒーレント放射光の研究」
高橋俊晴(京大原子炉)84
「タルボ型干渉計を用いたイメージング」 百生 敦(東大·新領域)
「レーザーコンプトン線源からの微小光源によるX線イメージングの原理と応用」
兵藤一行(KEK, PF)
「医学イメージングへの応用」 酒井 俊(筑波大人間総合科学)
「産総研のレーザーコンプトン線源を用いたイメージング研究」
池浦(関口)広美(産総研)
「放射光 X 線による 100 ピコ秒時間分解研究の現状とフェムト秒時間分解実験への期待」
足立伸一(KEK, PF)117
「光誘起キャリアとコヒーレントフォノンの超高速ダイナミクス」
中村一隆(東工大・応用セラミックス研)
「強相関電子材料における光誘起相転移の超高速ダイナミクス」 沖本洋一(東工大理工)…136
「超高速反応する分子の核波束運動実時間観測と励起状態ポテンシャル曲面のトポロジー」
田原太平(理研)141
総合討論 座長:河田 洋(KEK, PF)152
ERL 研究会「コンパクト ERL が拓く世界」の報告
参加者リスト····································

ERL 研究会「コンパクト ERL が拓く世界」 プログラム

7月9日(月)

- 10:00-10:05 所長挨拶 下村 理(KEK, IMSS)
- 10:05-10:15 本研究会の目的 河田 洋(KEK, PF)
- 10:15-11:45 光源 [座長:佐藤康太郎(KEK, 加速器)]
 - 10:15-10:45「コンパクト ERL における CSR によるテラヘルツ光とレーザーコンプトン散乱 によるパルスX線の見積もり」原田健太郎(KEK, PF)
- 10:45-11:15「コンパクトERLにおけるバンチ圧縮の可能性に関して」島田美帆(UVSOR)
- 11:15-11:45「ATF におけるレーザーコンプトン散乱実験」 浦川順治(KEK, 加速器)

11:45-13:15 昼食

13:15-14:15 光源 [座長:春日俊夫(KEK, PF)]

13:15-13:45 「レーザーコンプトン散乱装置(産総研の装置)」 酒井文雄(住友重機械)

13:45-14:15「レーザーコンプトン散乱装置用タイミング同期レーザー」小林洋平(産総研)

<u>14:15-17:15 テラヘルツ・CSR 利用研究 [座長:芦田昌明(阪大基礎工)]</u>

14:15-14:45「テラヘルツ放射光の現状と大強度 CSR の利用」 木村真一(UVSOR)

14:45-15:15「テラヘルツ技術の現状と展望」 斗内政吉(阪大レーザー研)

15:15-15:45 休憩

- 15:45-16:15「テラヘルツ時間領域分光法と基礎科学への応用」田中耕一郎(京大理)
- 16:15-16:45「赤外光励起による半導体中の不純物拡散の制御」 白井光雲(阪大産研)
- 16:45-17:15「京大炉ライナック及び JAEA-ERL におけるテラヘルツ・コヒーレント放射光の研究」

高橋俊晴(京大原子炉)

17:15-17:55 イメージング研究 [座長:平野馨一(KEK, PF)]

17:15-17:25 「レーザーコンプトン線源からのイメージングのイントロダクション」

兵藤一行(KEK, PF)

17:25-17:55「タルボ型干渉計を用いたイメージング」 百生 敦(東大・新領域) 18:30-20:30 懇親会(くらんべりい) 7月10日(火)

09:00-10:30 イメージング研究 [座長:平野馨一(KEK, PF)](前日からのつづき)

- 09:00-09:30 「レーザーコンプトン線源からの微小光源によるX線イメージングの原理と応用」 兵藤一行(KEK, PF)
- 09:30-10:00「医学イメージングへの応用」 酒井 俊(筑波大人間総合科学)
- 10:00-10:30「産総研のレーザーコンプトン線源を用いたイメージング研究」

池浦(関口)広美(産総研)

- 10:30-11:00 休憩
- 11:00-14:30 時間分解・ダイナミクス研究 [座長:腰原伸也(東エ大理工)]
- 11:00-11:30「放射光 X 線による 100 ピコ秒時間分解研究の現状とフェムト秒時間分解実験 への期待」 足立伸一(KEK, PF)
- 11:30-12:00「光誘起キャリアとコヒーレントフォノンの超高速ダイナミクス」

中村一隆(東エ大・応用セラミックス研究所)

12:00-13:30 昼食

13:30-14:00「強相関電子材料における光誘起相転移の超高速ダイナミクス」

沖本洋一(東工大理工)

14:00-14:30「超高速反応する分子の核波束運動実時間観測と励起状態ポテンシャル曲面の トポロジー」田原太平(理研)

14:30-15:15 総合討論 [座長:河田 洋(KEK, PF)]

提案代表者:河田 洋(KEK/PF) 実行委員:原田健太郎(KEK/PF) 足立 伸一(KEK/PF) 平野 馨一(KEK/PF) 兵藤 一行(KEK/PF)

木村 真一(分子研)

本研究会「コンパクト ERL が拓く世界」の目的

河田洋、高エネルギー加速器研究機構・ERL計画推進室

Goal of the present workshop "Compact ERL and the scientific case"

Hiroshi Kawata, ERL Project Office, KEK

<Synopsis>

KEK has settled an energy recovery linac (ERL) as the future light source at KEK, and started to develop several key components with the collaboration of the accelerator physicists at different facilities like Japan Atomic Energy Agency (JAEA), Institute for Solid State Physics, University of Tokyo (ISSP), UVSOR and SPring-8. It is necessary to construct a compact ERL, with the energy of 60~200 MeV to develop these components. On the other hand, the compact ERL will bring characteristic radiations such as extremely high intense THz radiation based on coherent synchrotron radiation (CSR), or laser Compton X-ray radiation with sub-ps X-ray pulses and small source size of several 10 microns. These characteristic radiations will provide us a unique scientific case. The goal of the present workshop is to clarify the feasibility of the machine and also what kinds of the scientific cases will be produced from the compact ERL.

KEK では将来光源の方向性をERL(エネルギー回収型リニアック)に定めて昨年度ERL 計画推進室を機構内に設置しました。この推進室を中心として、KEKの加速器研究施設、 原子力研究開発機構、東京大学物性研究所、UVSOR、SPring-8 等の加速器研究者との協力の 下、光源加速器としてのERLの実現性、開発項目の検討と試作を進め、先ず 60~200MeV 程度の小型ERL(コンパクトERL)を建設し、技術開発を行う計画を立案しています。この コンパクトERLではERL特有の特色である高輝度性、短パルス性、そして高繰り返し性 という常電導加速器では得られない特徴を有しています。従って、この特徴を有効に生かす ことによって、例えば、大強度レーザーコンプトン散乱による<u>サブピコ秒のX線源</u>、および <u>微小光源からのX線イメージング</u>技術を用いた応用研究、そして短パルス電子ビームから発 生する<u>テラヘルツ領域の桁違いの強度を持ったコヒーレント放射光</u>と言う特徴ある光源を用 いた利用研究が期待されます。そしてこのような利用研究とERLの技術開発を車輪の両輪 とする体制でプロジェクトを進めることは非常に重要です。

上記のような立場から、本研究会の目的は、コンパクトERLの技術的な可能性とそれが 拓く利用研究を上記の3つカテゴリーから浮き彫りとすることにあります。

本研究会 『コンパクトERLが拓く世界』 の目的

KEK, ERL計画推進室 河田洋

ERL計画推進方針

- ERL実機(5GeVクラス)の実現のために要 素技術開発は必須⇒コンパクトERLの建設。
- コンパクトERL(60MeV~200MeVクラス のERL)で展開できるサイエンスを提案し、加 速器開発とサイエンスを両輪にして進める。
- コンパクトERLで開発された加速器技術、放射光利用技術を用いて実機の建設を実現する。

コンパクトERLが目指すもの



第1段階:低電流運転でも可能なレーザーコンプトンを用いたX線イメージング研究、フェムト秒サイエンスを展開。(レーザーのタイミング系の開発を含む)

第2段階:数10mA電流の運転を実現し、テラヘルツ光源を用いたサイエンスを展開。

第3段階:エネルギー増強(~200MeV)により、高輝度短パルスVUV光源を用いたサイエンスを展開。

実機ERL(5GeVクラス)の要素技術の取得、実験測定技術の取得 ⇒ 実機の実現へ

Laser-Compton X-ray source at ERL test facility (60-150MeV)





発光点の大きさ(焦点サイズ):50μm 光子密度(40 keV):1.3×10⁶ photons/mm²/sec 照射面積:直径 100 mm 程度

小焦点、大きな照射面積、準単色×線、エネルギー可変 光学素子は使用しなくても良い 屈折効果の方向性がない 吸収効果+屈折効果による画像(照射×線の有効利用) 通常発生装置に比較して、高空間分解能、高濃度分解能 装置の小型化の可能性

医学応用、臨床応用

兵藤一行氏の放射光セミナー (2007年5月29日)から

CSRからのテラヘルツ光の利用





(coherent 部分の裾まで incoherent な Flux がない場合、下の線に差を足した撫で肩のグラフになる。 例えば、30MeV で 0.01ps, 0.1ps, 60MeV で 0.01ps などの場合。)



Application of intense THz CSR

- Probe
 - Imaging in a wide spatial region
 - Ex.) Full human body.
 - Near-field microscopy
 - Phase separation of superconducting phase.
- Excitation
 - Nonlinear optics
 - Photo-induced phase transition.
 - Chemical reaction
 - Site-specific excitation.
 - Microwave effect.

木村真一氏の放射光セミナー (2007年4月25日)から

これからの開拓分野!!

本研究会の目的

- コンパクトERLの技術的な可能性(加速器技術として)は?
- THz領域のCSRで展開可能となる応用研究 は?
- レーザー・コンプトン散乱によって展開可能と なる応用研究は?
- 1)X線イメージング(微小光源を利用した)
- 2) サブピコ秒のX線パルスを用いた応用研究

コンパクト ERL における CSR によるテラヘルツ光と レーザーコンプトン散乱によるパルスX線の見積もり

原田 健太郎(KEK-PF-Mag)

The Intense Terahertz Radiation and Laser-Compton X-ray Source at the Compact ERL

Kentaro Harada (KEK-PF-Mag)

<Synopsis>

The compact ERL (energy recovery linac) is planned at KEK as a joint project of the KEK, JAEA (Japan Atomic Energy Agency), and other institutes. The primary purpose of the facility is the demonstration of the key technologies that are essential to ERL-based light source. In this presentation, we show the great feasibility of the compact ERL for producing the intense terahertz radiation using coherent synchrotron radiation (CSR) and the pulsed hard X-rays generated by the Laser-Compton scattering. For the terahertz CSR, the electron bunch compression to about 0.1 ps is required to generate the CSR of the energy about 10meV. For the bunch charge of 100 pC, and the repetition rate 130MHz, the photon number is about 10^{16} ~ 10^{17} [photons/sec/marad2/0.1%b.w] that is the square of the incoherent radiation. For the Laser-Compton scattering, we use the laser of the wavelength 800 nm and the power 10mJ. If the laser spot size and the electron beam size are about 50µm, the number of the photon is estimated to be about 10^6 [photons/pulse] and the pulse width about 260 fs.

<本文>

コンパクト ERL(図1)は周回部の周長約 70m、ビームエネルギー約 60MeV で放射光利用のため の原理実証を目指す小型の ERL である。KEK つくばキャンパスの東カウンターホールに建設が予定 されており、計画は KEK、JAEA、ISSP を中心に、全国の研究機関の共同計画として進められている。 ここではコンパクト ERL で利用可能になるであろうと思われる CSR によるテラヘルツ放射と、レーザー コンプトン散乱によるパルスX線の見積もりについて発表を行う。

コンパクト ERL の最終目標は電流 100mA(バンチ電荷 77pC で繰り返し 1.3GHz)であるが、放射 線遮蔽の問題もあって実現は簡単ではない。そこで、現段階で(もちろん簡単ではないが)より確実 なパラメータとして、CSR 利用に対してはバンチ電荷 100pC、繰り返し 130MHz(13mA)、または



13MHz(1.3mA)とし、レーザーコンプトン利用に対してはバンチ電荷100pC、繰り返し1kHz(0.1µA)、 レーザー強度10mJ/pulseとして見積もりを行う。ビームの規格化エミッタンスは1mm・mrad、バンチ長 は通常1ps、圧縮ありで100fsとする。可能な範囲での最大スペックで単発的な利用実験を行っても 新しい世界が開けることは間違いないが、本格的なユーザーランを行う為には責任を持って光を安 定供給する為の運転調整に加え、冷凍機を含めた安全シフト体制を組む必要がある。ユーザーと共 に計画に弾みを付け、安定的なユーザーランに繋げられるだけの予算と人員の確保に繋がればと 願ってやまない。

CSR 放射の臨界波長は $\lambda_{c,csr} = 2\sigma_z$ と書ける。ここで、 σ_z [m]は電子バンチ長である。また、真空ダ クトで遮蔽される cut-off 波長は $\lambda_{cu-off} = 2\sqrt{h^3/\rho}$ と書ける。ここで、h[m]は真空ダクトの高さ、 ρ [m] は偏向電磁石の曲率半径である。放射光の強度は $P_{total}(\lambda) \approx P_{incoh}(\lambda) (1 + N \exp\left[-(2\pi\sigma_z/\lambda)^2\right])$ と書 ける。ここで、Pincol は通常のコヒーレントでない放射光の強度である。図2に CSR 放射の強さを示す。 レーザーコンプトン散乱の見積もりでは、エネルギー Elesのレーザーが電子ビームに対して垂直 (90°)に入射されるとする。電子ビームの進行方向に散乱される光子が最も高いエネルギー $\varepsilon_{max} = 2\gamma^2 \varepsilon_{las}$ となるが、その場合を考えることにする。レーザーをチタンサファイア(800nm)とすると 散乱光のエネルギーは 42.7keV となる。散乱光のエネルギーと散乱角の関係を使うと Emay に対する コンプトン散乱の散乱断面積は $\sigma_c = 4\pi r_0^2 \Delta \varepsilon_{ph} / \varepsilon_{max} = 1.0 \times 10^{-28} \Delta \varepsilon_{ph} / \varepsilon_{max}$ [m²]と書ける。ここで、 r_0 は電子の古典半径、 $\Delta \varepsilon_{ph}/\varepsilon_{ph,max}$ は考える光のエネルギー幅で光の取り込み立体角に関係があ る。衝突によって実際に発生する光子数は衝突の幾何学から、 $F_c = (N_e N_p / wh) (L_{eff} / L_b) \sigma_c = 1.0 \times 10^6 [\text{photons/pulse}]$ と書ける。ただし、 $N_e = 6.2 \times 10^8 \text{ 個はバン}$ チ中の電子数、 $N_n = 4.0 \times 10^{15}$ 個はレーザーの中の光子数、 $w, h = 50 \mu m$ は電子・レーザーの水 平垂直方向のビームサイズ(一様な直方体を仮定)、 $L_{eff}/L_{b}=1$ は実質的に衝突に関わる電子のバ ンチ長に対する割合である。この場合、光のパルス幅はおよそ260fsとなり、また、繰り返し1kHzでの 平均光子数は $F_c = 1.7 \times 10^9$ [photons/s]である。



図2 CSR 放射の Flux

コンパクト ERL における CSR によるテラヘルツ光と レーザーコンプトン散乱による パルスX線の見積もり

コンパクト ERL の概要



PS 東カウンターホールに建設予定。

コンパクト ERL の構成



		初期目標	最終目標
周回部周長	m	69	
周回部ラティス		DBA	
入射ビームエネルギー	MeV	5	10~15
入射(=ダンプ)ビームパワー	kW	500	1000~
周回部のビームエネルギー	MeV	60	160~200
主加速空洞(1 module = 9cell x 4本)	modules	1	2
規格化エミッタンス	mm∙mrad	1	0.1
ビーム電流	mA	10	100

(本発表で実際に光の見積もりに用いたビームパラメータは、ビームダイナミックスグループ ミーディングにおいて実現可能性が議論され、ユーザー側に公表してよいと合意したパラメー タである。) リングとの違いは?

- 入射部のビームパラメータが保存する。
 - → 電子銃でよりよいビームが作れれば、それだけで性能が上がる。
- ・ エミッタンスは入射部+断熱減衰で決まる。
 - → リングでは加速するとエミッタンスが大きくなるが、ERL では断熱減衰により小さくなる。ビームサイズを小さくしたければ、より加速するのも方法の一つ。
- 常に新しいビームが周回する。
 - → ビームパラメータが平衡状態で決まらない。
 - → ビームロスが起こった場合、電子銃を止めない限りロスし続け、放射線も止まらない。 放射線遮蔽、ビームダンプが非常に大きな問題。
 - → 平均電流 100mA の為には、空洞の性能(特に入射部)は勿論だが、放射線遮蔽の問題も 大きい。また、5MeV x 100mA = 500kW のビームダンプもかなりの大きさが必要であり、 現段階では難しいかもしれない。

実機と実証器のビームパラメータの違いは?

- ビームエネルギー : 実機 5GeV、実証器 60MeV
- 周長 : 実機約 1.2km、実証器 70m
- バンチ長、(規格化)エミッタンス、繰り返し、平均電流(最終目標)は実機と実証器で同じ。

CSR と逆コンプトンX線利用には、実証器が有利

- CSR の強度はバンチ電荷、波長域はバンチ長に依存する。(これらは実機も実証器も同じ。)
- ・ 60Me は、テラヘルツ領域の(インコヒーレント)放射光を十分にカバーするエネルギーである。 それより高いビームエネルギーでも、テラヘルツ領域の放射光の様子は変わらない。(実機で も実証器でも、テラヘルツ領域の様子は同じ。スペクトルが高エネルギーに伸びない実証器の 方が、テラヘルツ領域の利用には都合がよい。)
- 90°逆コンプトン散乱で発生する光のエネルギーは、入射光のエネルギーの2γ2倍。60MeVの時、800nmのレーザーが42keVになる。硬X線発生のためには、ビームのエネルギーは60MeV くらいがちょうどよい。
- (実機ではほぼすべてのビームラインにおける、挿入光源からの硬×線が短パルスである。逆 コンプトンによる硬×線とは光子数が10桁以上多くなる。)

CSR に関するパラメータのまとめ

・ 放射光の強度(バンチ長が短いと N²に比例する様になる。)

$$P_{total}(\lambda) = P_{incoh}(\lambda)(1 + (N-1)f(\lambda)), \quad f(\lambda) = e^{-\left(\frac{2\pi\sigma_z}{\lambda}\right)^2}$$

• 通常の放射光の臨界振動数(テラヘルツ領域は 60MeV ビームでは十分にカバーされる。)

$$\omega_c = \frac{3c\gamma^3}{2\rho}$$

• CSR 放射の臨界振動数(バンチ長が短くないと、必要なエネルギーの光が出ない。)

$$\omega_{c-csr} = \frac{\pi c}{\sigma_z} \qquad \qquad \left(\lambda_{c-csr} = 2\sigma_z\right)$$

、 2

• CSR 放射の遮蔽振動数(ダクトが大きい方が低エネルギー光まで発生。)

$$\omega_{cut-off} = \pi c \sqrt{\frac{\rho}{h^3}} \qquad \qquad \left(\lambda_{cut-off} = 2 \sqrt{\frac{h^3}{\rho}}\right)$$

・ 従って CSR は $\omega_{cut-off} < \omega < \omega_{c-csr} (< \omega_c)$ の範囲で発生。



放射光の角度広がりと円偏光の利用

$$\frac{d^{2}P_{incoh}}{d\omega d\Omega} = \frac{3e^{2}\gamma^{2}}{16\pi^{3}\varepsilon_{0}c} \left(\frac{\omega}{\omega_{c}}\right)^{2} \left(1 + \gamma^{2}\theta^{2}\right) \underbrace{BesselK_{\frac{2}{3}}(\xi)^{2}}_{\text{XFGH}} + \underbrace{\frac{\gamma^{2}\theta^{2}}{1 + \gamma^{2}\theta^{2}}}_{\text{BesselK}_{\frac{1}{3}}(\xi)^{2}} \right)$$

- 光のエネルギーが低いため、縦方向の光の広がりが大きい。
- ・ 光軸からずれた垂直偏光成分が十分な大きさを持ち、楕円偏光・円偏光として利用可能。



- 図中で r は偏向電磁石の曲率半径 ρ.
- 1meV で円偏光を使いたい場合、偏向電磁石の曲率半径を、例えば 5m にすれば、40mrad 付近で円偏光となる。 (その角度でフロントエンドやビームラインができるかどうかは別。)

90°レーザー逆コンプトン散乱に関するパラメータのまとめ

・ 散乱光のエネルギー

$$\varepsilon_{ph} \approx 2\gamma^{2} \varepsilon_{laser} \frac{1}{1 + \gamma^{2} \theta^{2}},$$
ビーム進行方向には $\varepsilon_{ph} \approx 2\gamma^{2} \varepsilon_{laser}$

ただし、 $\gamma >> 1$ の場合の近軸 ($\theta << 1$)に対する近似。

 ・ 散乱光の強度

$$F_c = \frac{N_p N_e}{w_e h_e} \frac{L_{eff}}{L_b} \sigma_c$$

ただし、一様な直方体ビームに対する近似で、 N_e はバンチ中の電子数、 N_p はレーザーの中の光子数、 $w_e \ge h_e$ は電子ビームの幅と高さ(全幅)、 L_b はバンチ長、 L_{eff} は実質的に衝突に関わる電子バンチの長さ (ここでは $\approx L_b$)、 σ_c はコンプトン散乱の散乱断面積で、ここでは r_0 を古典電子半径として $4\pi r_0^2$ 。 • 散乱光のパルス幅

$$\tau_{c} = \frac{1}{c} \sqrt{w_{e}^{2} + w_{p}^{2} + L_{p}^{2}}$$

ただし、バンチ長がレーザーのパルス幅やスポットサイズより長い場合の近似で、ここで w_p はレーザーのビームサイズ、 L_p はレーザーのパルス長。

もう少し正確な式(トムソン散乱に対する式)

・ 散乱光のエネルギー

$$\varepsilon_{ph} = \frac{1 - \beta \cos \theta_t}{1 - \beta \cos \theta} \varepsilon_{laser} \approx 2\gamma^2 (1 - \beta \cos \theta_t) \varepsilon_{laser}$$

ただし、 θ_t は入射光と電子ビームのなす角度。

・ 散乱光の強度

$$F_{c} = \frac{N_{p}N_{e}}{2\pi} \frac{\sigma_{c}}{\sqrt{h_{e}^{2} + h_{p}^{2}}\sqrt{w_{e}^{2} + w_{p}^{2} + L_{e}^{2} + L_{p}^{2}}}$$

ただし、ガウス分布に対する式で幅や高さ、バンチ長とパルス長はシグマである。

・ 散乱光のパルス幅

$$\tau_{c} = \frac{1}{c} \frac{L_{b} \sqrt{w_{e}^{2} + w_{p}^{2} + L_{p}^{2}}}{\sqrt{w_{e}^{2} + w_{p}^{2} + L_{b}^{2} + L_{p}^{2}}}$$

萬 雅史「レーザーコンプトン散乱法による極端パルスX線発生に関する研究」 (FESTA に在籍した住重研究者のD論(早稲田大学,2005)) 90°レーザー逆コンプトン散乱の光子数とパルス幅の見積もり

- ・ビームエネルギー60MeV、レーザーの波長800nm $\gamma = 117.4$ 、 $\varepsilon_{laser} = 1.55eV$
- ・ 散乱光の最大エネルギー

$$\varepsilon_{_{ph}} \approx 42.7 keV$$

・ 散乱光の強度

電子バンチ電荷100*pC*、
$$N_e = 6.24 \times 10^8$$
 個、レーザー10*mJ*、 $N_p = 4.03 \times 10^{16}$ 個、
電子ビームサイズ $w_e = h_e = 50 \mu m$ 、バンチ長 $L_b = 300 \mu m = 1 ps$ 、
レーザービームサイズ $w_p = 50 \mu m$ 、レーザーパルス幅 $L_p = 30 \mu m = 100 fs$ 、
 $\sigma_c = 4\pi r_0^2 = 1.00 \times 10^{-28} m^2$ 、レーザー繰り返し $f_p = 1 kHz$
 $F_c = 1.00 \times 10^6 [photons / pulse]$
 $F_c = 1.00 \times 10^9 [photons / sec]$

 ・ 散乱光のパルス幅

$$\tau_c = 256 fs$$

(注:ここのパラメータは一様な直方体ビームの「全幅」)

電子ビーム全幅 $w_e = h_e = 50 \mu m$ は?

全幅 50
$$\mu m \rightarrow \text{RMS} \ \ensuremath{\overline{\sigma}} \sigma = 20 \ \mu m \ \ensuremath{\varepsilon} \sigma = 30 \ \mu m \ \ensuremath{\varepsilon} \sigma = 0.047 \ \ensuremath{m}$$



MIT で似たような計画がある(PAC07 ポスター、坂中さんより)

"MIT Compact X-ray source"



MIT のポスターに啓発されるまでもなく……

- ・ 繰り返し 1kHz や 10kHz なので、エネルギー回収の必要はない。
- 従って、入射器と加速モジュール1本でレーザーコンプトン実験は可能。ERLのR&Dのハイライト も入射器と主加速モジュールなので、予算によってはそのようなオプションもあり得るか。(その場合、大電流試験(これも重要)ができない。) 多くの大学・研究機関で「電子源+加速管」 という小型加速器を構成しての実験が既にされている。
- レーザーのスポットサイズとパルス幅にも依るが、ERL 入射器の性能からはパルスあたり 10⁶~ 10⁷の光子が発生する。



光の取り込み角

- γが小さいため、CSR、レーザーコンプトン(最初はエネルギー幅 10%を想定)ともに光の取り込み角度が重要である。
- ・ 例えば、UVSOR のテラヘルツビームラインでは、B のダクトとミラーガー体化しており、ビームのすぐ脇にミラーがある。光子数を増やすためにはこのような構成は必須である。
- レーザーコンプトン実験についても衝突点にできるだけ近い部分に最初の集光要素を設置することが望ましい。光と電子ビームの軌道を分け、色収差を補正する意味でも、シケインやソートゥース的なラティスでレーザーと衝突させる案もある。
- 特に航跡場の影響についても検討する必要がある。



まとめ

- コンパクト ERL (ERL 実証器)における、CSR によるテラヘルツ光とレーザーコンプトン散乱による硬 X 線の見積もりを行った。
- CSRでは通常の偏向電磁石(~10⁸)の光の二乗(~10¹⁶)の光束が得られる。ただしCSRが発生 するのはバンチ全長と光の波長が等しくなるあたりまで。光のエネルギーおよそ10meVをCSR でカバーするためには、バンチ長は0.1psまで短くする必要がある。
- CSR の利用のためには、ビームパラメータの目標がある程度達成されている必要があり、さら にビームの安定性も確保されている必要がある。
- レーザーコンプトンで 40keVのX線を発生させるためには、レーザーを 800nm とすると電子ビ ームのエネルギーは 60MeV。また、レーザーの繰り返しは kHz だが、電子ビームも kHz とする なら、エネルギー回収は不要。
- レーザーコンプトン利用は入射器と主加速モジュール1本で可能。放射線的にも難しいことはない。ERL 用のビームパラメータを使うと、衝突あたりの光子数は 10⁵~10⁷となる。これは既存の施設よりも1桁~2桁高い値である。さらに常伝導でkHzは困難であり、平均光子数はさらに有利な値となる。
- かなり初期の段階から利用が可能であり、運転とともに性能向上が可能。

コンパクト ERL におけるバンチ圧縮の可能性に関して

島田美帆、分子科学研究所 羽島良一、日本原子力研究開発機構

Possibility of Bunch compression at the compact ERL

Miho SHIMADA, UVSOR, Institute for Molecular Science Ryoichi HAJIMA, ERL Development Group, JAEA

<Synopsis>

The compact ERL project is kicked off at 2006 and expected as not only a test bed for future 5GeV-ERL in Japan but also a compact light source for user experiments. One of the candidates of the user experiments is terahertz coherent radiation from the extremely short bunch and another is a femtosecond X-ray pulse due to Compton scattering. These experiments require an extremely short electron bunch with a high charge. It is a challenging task to generate such an electron bunch because CSR wake at the bending magnet deteriorates the beam quality. In the present scheme, the extremely short bunch is achieved by a bunch compression optics at the arc section. As the results of the optimization of the lattice optics of the arc section, it is feasible to compress the bunch length down to 0.2 ps at the bunch charge of less than 0.5 nC.

コンパクト ERL は 5 GeV クラスの ERL 本機に向けた ERL 構成機器の動作実証、ビームダ イナミクスの研究に加えて、ユーザー利用も視野に入れて計画をしている。短バンチから発 生するコヒーレントテラヘルツ光とレーザーコンプトン散乱によるフェムト秒 X 線のユーザ ー利用が提案されているが、これらの利用実験を行うために ERL に求められる技術課題のう ち重要なひとつが、サブピコ秒電子バンチの発生である。現時点では 1-3 ps 程度で加速した 電子を周回部において緩やかにバンチ圧縮するスキームを提案しているが、バンチ圧縮方式 の決定にはコヒーレントシンクロトロン放射(CSR)の影響を詳しく検討しなければならない。 周回部で発生する CSR は短いバンチ長で強く、バンチあたりの電荷の自乗に比例して大きく なる。CSR は大強度テラヘルツ光源として有用であるが、一方ではバンチ圧縮とエミッタン ス保存の障害にもなる。今回の発表では電子ビーム光学系の最適化や、6 極磁石による二次 収差の補正を含めて、様々な電子エネルギーで大電荷・短バンチの実現をシミュレーション 上で検証した結果を発表する。また、低エミッタンスビームについての最適化についても報 告する。



Figure 1: Layout of the compact ERL in Japan from the merger section to the insertion section.

Table 1: Main parameters of the test ERL in Japan

Injection energy	5 -10MeV
Full energy	60 ~ 200 MeV
Injection bunch length	1-3 ps
Bunch length after compression	0.1 ps
Initial normalized emittance	0.1-1 mm mrad



Figure 2: Longitudinal phase space at the end of arc section with the sextupole magnet (left) and without (right). Bunch charge is 77 pC.
コンパクトERLにおけるバンチ圧縮の可能性 に関して

分子科学研究所,UVSOR 島田美帆 日本原子力研究開発機構,JAEA 羽島良一



Outline



- Beam dynamics studies for the 5 GeV ERL
 - 規格化エミッタンス0.1 mm mradを維持する周回部の設計

- Towards user experiment at the compact ERL
 - Short bunch for THz radiation (CSR)
 - 165MeV電子エネルギーにおけるバンチ圧縮
 - Femtosecond X-ray from Laser Compton Scattering
 - 65MeV電子エネルギーにおけるバンチ圧縮



緑文字:トラッキングシミュレーションで使用した初期値



Preservation of low emittance





The emittance growth is minimized when θ_{Phase} coincides with θ_{CSR} (direction of CSR kick).

R. Hajima, Nuclear instruments and Methods in Physics Research A 528 (2004) 335-339 $\tan 2\theta_{Phase} = 2\alpha / (\gamma - \beta)$ $\tan \theta_{CSR} = \sin \phi / \rho (1 - \cos \phi)$ α, β, γ : Twiss parameter, ϕ : bending angle





- 4極磁石の最適化によって、1/5から1/15までエミッタンスを小さくすることが可能。
- 100MeV以上ではほぼ0.1 mm mradを満たしている。
- エミッタンスの最適化によって、若干バンチ長も短くなった。
- エネルギースプレッドも若干小さくなったことを確認した。



Bunch compression

For what the compact ERL can be used?

• Terahertz coherent radiation

- SR of terahertz region, from 1THz to 10 THz, is enhanced by coherent radiation, when the rms electron bunch length is shorter than 1ps.
- Transverse beam size should be less than the wavelength to keep the coherent enhancement -- (un-normalized $\varepsilon_x < 100 \text{ mm mrad}$)



For what the compact ERL can be used?



• Laser Compton Xrays

フェムト秒のX線を発生するにはレーザーとともに、電子バンチもサブピ コ秒の長さを持つ必要がある。

$$E_{x-Ray} \approx 2\gamma^2 E_{Laser}$$
$$\lambda_{Laser} = 800nm \quad (Ti:SaLaser)$$

50keV以下のX線 🛁 電子ビームがおよそ65MeV (7=130)以下

しかし、CSRによる影響は電子エネルギーが小さいほど大きい







6極磁石の導入



optimized by R. Hajima



- *R*₅₆がそれぞれ-0.05から-0.7である周回部において、 *φ*_{RF}と6極磁石を最適化
- *R*₅₆ = -0.1付近がバンチ圧縮には最適

エネルギーによるバンチ圧縮の効果の変 化(77pC, R₅₆ = - 0.1)





- テールの形成は電子エネルギーによって非 線形に変化する。
- テールを除くと、エネルギーが大きいほどバンチ圧縮しやすい



165MeVにおけるバンチ圧縮 (テラヘルツ光発生源)





 およそ400pC以下であれば、規格化エミッタンス<100 mm mradかつ バンチ長<0.1psを実現可能である。

65MeVにおけるバンチ圧縮 (Compton散乱によるフェムト秒X線)



- 1nCでは0.6ps程度まで圧縮可能である。しかし、規格化エミッタンスは100mm mradを超えてしまう。
- 0.5 nC以下では容易に0.2ps以下まで短くすることが可能。

まとめ



- バンチ長1ps、低エミッタンスビームの実現
 - 周回部の4極磁石の最適化により、1/5から1/15まで規格化エミッタンスを小さくすることができた。
 - 100MeV以上では、ほぼ0.1 mm mradを数十%の増加程度に抑えることができる。
- バンチ圧縮
 - *R*₅₆の最適化(77pC, 165MeV)
 - バンチ長をできる限り短くするには、R₅₆=-0.1が最適である。
 - エミッタンスの増加も抑える必要がある場合はR₅₆の絶対値を大きくすると効果的である。
 - エネルギーによるバンチ圧縮の効果
 - テールの形成はエネルギーに依存し、その影響は予測困難である。
 - テールを除いた部分のバンチ長はエネルギーが大きいほど短くすることができる。
 - 165MeV電子ビームのバンチ圧縮
 - およそ400pC以下であれば、規格化エミッタンス<100 mm mradかつバンチ長<0.1ps を実現化のである。
 - 65MeV電子ビームのバンチ圧縮
 - 1nCでは0.6ps程度まで圧縮可能である。しかし、規格化エミッタンスは100mm mrad を超えてしまう。
 - 0.5 nC以下では容易に0.2ps以下まで短くすることが可能。

ATF におけるレーザーコンプトン散乱実験

浦川順治、高エネルギー加速器研究機構、加速器研究施設

Laser-Compton Scattering Experiments at the ATF

Junji Urakawa, KEK, Accelerator Laboratory

<Synopsis>

Laser-Compton scattering experiments at the ATF has been stimulated by proof-of-principle for the generation of polarized positron beam since 1996. One difficult experiment was terminated by the confirmation of 73% polarized positron beam generation with an intensity of $2x10^4$ /bunch (PRL 96, 114801 (2006)) in 2004. During this experiment, we started the development on the laser-wire beam profile monitor in the ATF damping ring, which clearly demonstrated the measurements of smallest 1nm horizontal emittance and 4pm vertical emittance at low current in 2004 (PRL 92, 054802-1 (2004)). Now, we are developing high intensity γ -ray generation and X-ray generation system based on pulsed-laser Compton scattering for International Linear Collider project and Compact X-ray source. I will report the outline of the laser-Compton scattering experiments in ATF research activities.

< レーザー電子ビーム衝突による光子ビーム生成 >

偏極陽電子生成実験によって得られた結果から説明する。1.3GeV 電子ビームとレーザーパ ルス(532nm Green, 600mJ, 300psec)の正面衝突により円偏光ガンマ線を生成して、そのガンマ 線を標的に衝突させ対生成により偏極陽電子を生成する実験である。この実験で陽電子の偏 極度を測定するために、磁化した鉄による Compton 散乱の偏極方向に依存する非対称性の測 定を行った。図1は衝突実験装置と偏極ガンマ線強度分布を示す。ガンマ線 56MeV、ピーク 輝度 10¹⁹photons/mm²・mrad²・sec・0.1%bandwidth 以上である。

次に、CW レーザーワイヤービーム形状モニター装置開発について述べる。この装置は、 超安定 532nm Single mode, 300mW レーザー発信器と光蓄積共振器を図 2 に示すように超精密 移動架台に載せて、2 枚の高反射率球面ミラー(Fabry-Perot Resonator)間隔を数オングス トロームの精度でレーザーの半波長の整数倍に合わせることにより、共鳴により 1000 倍以上 に蓄積パワーを増幅すると同時に光蓄積共振器中心に 5µm (rms) laser waist を生成できる。こ のレーザーワイヤーで電子ビームをスキャンすることによって、電子ビームサイズの絶対測 定を実現した。





最後に、Compact X-ray Source 開発、高輝度ガンマ線生成実験、高速パルスレーザーワイヤ ー開発実験について簡単に説明する。光子ビーム生成実験ではパルスレーザー蓄積装置のレ ーザーと電子ビームによる 357MHz 衝突高繰り返しにより、高輝度化を実現する予定である。 一方、高速パルスレーザーワイヤー開発実験は 50mJ, 100psec, 532nm laser のウェストサイズ を 1µm 以下に絞込み、10Hz 電子ビームスキャン技術開発を目的にしている。詳しい、実験 状況説明を報告で試みる。 Laser-Compton Scattering Experiments at the ATF

J.Urakawa, KEK

1. Polarized e⁺ Source based on Compton scattering,

- 2. CW laser wire results,
- 3. Pulsed laser wire development,
- 4. Polarized γ-ray generation,
- 5. Compact X-ray source,

6. Key components for photon beam source based on laser-Compton scattering.

1

1. Polarized e⁺ Source based on Compton scattering



Experiment at KEK-ATF ATF: Accelerator Test Facility for ILC built at KEK

Collaborating institute: Waseda, TMU, KEK, NIRS, and AIST

T. Omori, M. Fukuda, T. Hirose, Y. Kurihara, R. Kuroda, M. Nomura, A. Ohashi, T. Okugi, K. Sakaue, T. Saito, J. Urakawa, M. Washio, and I. Yamazaki



1.28 GeV S-band Linac



Compton Chamber



Positron: production, selection, and polarimetry



Ne+(design) = 3×10^4 /bunch Pol(expected) = 80% As

Asym (expected) = 0.95%

2. CW laser wire results

CW Laser wire beam size monitor in DR



300mW 532nm Solid-state Laser fed into optical cavity

14.7μm laser wire for X scan
5.7μm for Y scan
(whole scan: 15min for X,
6min for Y) 7



optical cavity resonance is kept by piezo actuator

Beam profile by Laser wire



$$\sigma_e^2 = \sigma_{\text{meas}}^2 - \sigma_{lw}^2$$
$$\epsilon\beta = \sigma_e^2 - [\eta(\Delta p/p)]^2$$

 β :measured by *Q*-trim excitation

3. Pulsed laser wire development

Experimental results(Pulse Laser Storage)

Laser:

Mode Lock: Passive	
	SESAM
Frequency:	357MHz
Cavity length:	0.42 m
Pulse width: 7.3 p sec	
	(FWHM)
Wave Length:	1064 nm
Power:	~ 6W



SESAM: <u>SE</u>mi-conductor <u>Saturable</u> <u>Absorber</u> <u>Mirrors</u>

Ext. Cavity:

Cavity: Cavity length: Mirrors: Reflectivity: Curvature:

99.7%, 99.9% 250 mm ($\omega_0 = 180 \,\mu$ m)

Super Invar

0.42 m





Storage of laser pulse

Resonance condition :

The relationship with laser and cavity :



The enhancement factor is the function of reflectivity, ΔI and laser pulse width.



• Finesse: **R** = 99.9%



Pulsed Laser and Electron Beam Collision to measure bunch length



Pulse Laser Wire



14

EXPERIMENTAL SETUP : Optics




4. Polarized γ-ray generation using Optical Stacking Cavity









Non planer cavity with 4 mirrors in LAL











confocal²³

γ-ray Generation with Laser Pulse Stacking Cavity (Hiroshima-Waseda-IHEP-KEK)



5. Compact X-ray source



43MeV end station to separate X-ray and e-beam. 33keV X-ray is deflected by Crystals.



Pulsed laser stacking chamber

Laser Undulator Compact X-ray (LUCX) Project at KEK-ATF



6. Key components for photon beam source based on laser-Compton scattering World-Wide-Web of Laser Compton



Re-use Concept



28

Proposed by Posipol Group at Snowmass 2005.

One laser feeds 30 cavities in daisy chain



New Idea by UK

Use a Misaligned Multipass Cavity



Mirror spacing determines the inter-pulse interval to match to 2.8ns

Slight mirror tilt from perfect auto-collimation or slight shear of one lens gives scanning with equally spaced foci and a controllable spacing

PC gate switches pulse into cavity

Need to keep round-trip losses very low to ensure sufficient passes at sufficient power

Other designs possible

Laser-wire at ATF-EXT By Grahame Blair (RHUL) et al.

6min 43s



Wire position (mm)





Modify optical lens to realize sub-micron laser waist size.



レーザーコンプトン散乱装置 (産総研の装置)

酒井 文雄 住友重機械工業㈱

Apparatus of Laser-Compton X-ray generation

Fumio Sakai, Sumitomo Heavy Industries, Ltd.

<Synopsis>

An apparatus of short X-ray pulse generation via 90-degree Laser-Compton scattering between a tightly focused relativistic electron beam and a femtosecond laser light had been developed under a national project. The generation of high brightness electron and laser pulse and the synchronization between electron and laser pulses are key technologies for stable x-ray generation and. A photocathode RF gun and a stable all-solid picosecond laser were developed for the stable generation of very low emittance electron bunches. The synchronization technique between laser pulses of mode-locked oscillator and RF (2856MHz) for electron acceleration was developed. After the national project, this apparatus moved to AIST from SHI two years ago. This is running for x-ray applications and developed to increase the x-ray intensity.

This x-ray generation system via 90-degree Laser-Compton scattering and the technologies applied for the system will be presented.

<本文>

レーザー光子の相対論的電子による散乱過程であるレーザーコンプトン散乱によるフェムト秒短パルス X 線の発生装置の開発をNEDOプロジェクトである「フェムトト秒テクノロジーの研究開発」で行ってきた。開発した装置は、プロジェクト終了後の2005年度に産業技術総合研究所に移設し、2006年度より X 線の利用実験に使用すると共に X 線強度増強のための装置開発を行っている。ここでは、主にプロジェクトの中で開発したレーザーコンプトン X 線発生装置に関して報告を行う。

発生装置の主要な技術開発項目は、低エミッタンスの電子パルスの生成、短パルスレーザ 開発による高輝度化と、電子、レーザーの同期化を含む全体システムの安定化によるX線の 安定発生技術である。

低エミッタンスの電子パルスの発生にはフォトカソード RF 電子銃を使用し、1.5m 長さの 2本の加速管により、電荷量 1nC/pulse で 3ps 幅の電子パルスを 40MeV 程度まで加速し、triplet の4 重極電磁石で 50 µ m 程度までに収束した。また、衝突用のレーザーは Ti:sapphire レーザ ーでパルス幅 100fs、~200mJ/pulse であり、レンズで 20µm 程度まで収束して電子と衝突し た。衝突角度はフェムト秒パルス発生時には 90 度、発生収量を多くする場合にはほぼ正面 (165 度)で行った。電子とレーザーを同期する基準クロックとしては電子線加速周波数 2856MHz を用い、レーザーは高次の高調波を用いた位相ロック(Phase-Locked Loop :PLL)技 術で基準クロックに同期され、時間ジッターはフェムト秒領域で押さえられている。また、 加速器においても方向性結合器の信号をフィードバックして位相を安定化しているなどして、 X 線の安定発生を行った。

これにより、90 度衝突で 150fs(rms)のパルス幅を持った最大 17keV のフェムト秒 X 線パル スが発生された。この時の X 線量は、全エネルギーの X 線換算で10⁵photons/pulse 以上で あった。また、この時の X 線強度の揺らぎは、165 度衝突で6%、90 度衝突でも11%に抑 えられており、90 度衝突で7時間の連続運転も行った。

レーザーコンプトン散乱装置(産総研の装置)

酒井 文雄 住友重機械工業(株)

2007.7.9 PF研究会資料

フェムト秒テクノロジー研究(NEDOプロジェクト)

第1期1995(H7)-2000(H12) 第2期2001(H13)-2004(H16)

研究開発内容

(1)超短パルス光エレクトロニクス技術の研究開発 超高速の物理現象、超微細プロセス技術、デバイス化技術 テラビット情報通信用の超高速光源・スイッチ等の光デバイスの開発 (NEC,日立,三菱電,東芝,松下,冨士ゼロックス、富士通、パナソニック) (2)超短光パルス応用計測技術の研究開発

フェムト秒光パルスと高密度電子線パルスの衝突による高輝度X線パルス発生 超高速動体のモニタリング等に利用できる新計測技術の開発(住友重機械)



発表内容

1. レーザーコンプトン散乱によるX線発生

- 2. 発生装置
- 3. X線の利用例
- 4. 産総研の装置の現状

5. కెటరి



フェムト秒レーザと電子線の衝突による フェムト秒高輝度X線発生



発生X線の特徴 1. 短パルス性 (数ps-数100fs) 2. 波長可変性 3. 準単色性 4. 指向性

- 5. 高偏極性
- 6. 装置のコンパクト性

発生X線の特徴 (エネルギーの可変性と準単色性)



・散乱X線のエネルギー($\gamma m_o c^2 >> E_p$)

$$E_x = \frac{1 - \beta \cos \alpha}{1 - \beta \cos \theta} E_p$$

 $\alpha = 180^{\circ}$ 、 $\theta = 0^{\circ}$ の時 Ee=14MeV \longrightarrow Ex=4.6keV Ee=40MeV \implies Ex=30keV

発生X線の特徴(短パルス性)



・散乱X線のパルス幅は各々のパルスの相互作用時間・90度での衝突

$$\sigma_{Xt} = \frac{\sigma_{Le}}{\sqrt{\sigma_{Le}^2 + \sigma_{We}^2 + \sigma_{Lp}^2}} \sqrt{\sigma_{We}^2 + \sigma_{Wp}^2 + \sigma_{Lp}^2} \approx \sqrt{\sigma_{We}^2 + \sigma_{Wp}^2 + \sigma_{Lp}^2}$$
(電子パルス幅は十分長い)

・180度での衝突
$$\sigma_t = \sigma_{Le} + \frac{\sigma_{Le}}{4\gamma^2} \approx \sigma_{Le}$$

主な技術開発項目

1. 発生X線量の増大

・発生するX線量は衝突する領域での電子とフォトン数の積(密度)に比例する

 $N_x \propto \rho_e \cdot \rho_p \cdot V$ 短パルス性と高収束(高品質)

・高輝度電子源の開発(フォトカソードRF電子銃)

・短パルス高輝度レーザーの開発(TWレーザー)

2. 安定的なX線の発生

・パルス幅は相互作用時間(衝突時間)である。電子線パルス幅が 1ps以上あるため、90°での衝突によりフェムト秒X線を発生する。

強度、空間、時間領域での安定

・フェムト秒領域での電子線とレーザーの同期技術の開発



発表内容

1. レーザーコンプトン散乱によるX線発生 2. 発生装置 (電子線、短パルスレーザー、同期系) 3. X線の利用例 4. 産総研の装置の現状 5. まとめ

X線発生ステム



<u>レーザーフォトカソードRF電子銃</u>

本RF電子銃の主構造としては、無酸素銅で 作られたS-バンド1.6セルとなっている。 更にエミッタンス補正のため、高精度ソレノイ ド電磁石が取り付けられている。

> コンプトンX線の発生 自由電子レーザー リニアコライダー 高速現象の動解析

主要仕様

Electron energy	>3 MeV@6MW
Charge/pulse	>1 nC @100µJ laser puls
Pulse length	3 ps @10ps laser pulse
Normalized emittance	<3 mm-mrad



高品質電子ビーム(低エミッタンス)



* カソード上での電子分布のまま電 子ビームを輸送 レーザーパルス時間波形整形による低エミッタンス電子ビームの発生



エミッタンスの測定結果



$\mathcal{E}_n = \sqrt{(a' \cdot Q)^2 + b'^2}$		
	<i>a</i> '	$b' = \sqrt{\mathcal{E}_{rf}^2 + \mathcal{E}_{th}^2}$
	πmm-mrad/nC	πmm-mrad
Gaussian(9ps)	1.85 ± 0.13	0.83 ± 0.05
Square (9ps)	0.92 ± 0.05	0.81 ± 0.03

$$\mathcal{E}_{rf} \approx 0.6\pi mm - mrad$$

 $\mathcal{E}_{th} \approx 0.6\pi mm - mrad$

波面制御



繰り返しの異なるレーザーの同期 PLL(Phase-Locked Loop)制御と相関光による制御の併用

1.高調波を用いた高精度同期(短時間)

2.相関光を用いた長時間同期

PLL(Phase-Locked Loop)制御



相関光による制御

Sumitomo Heavy Industries, Itd.

相互相関光を用いたジッター評価



```
相関光強度プロファイル
```



低タイミングジッターの同期システム

・2台のレーザー発振器は繰り返し周波数(79.3MHz)の36倍高調波で基準周波数
2856MHzに同期し、その差を10fsに制御 (Proceedings of SPIE, 5194, 149-156 (2003))
・電子線加速位相は、温度変化等のドリフトを補正





•Electron parameters

Energy	38 MeV (σ=0.2%)
Bunch charge	0.8 nC
Bunch width	3 ps (rms)
Beam size	30 - 50µm (rms)
Normalized emittance	3 mm mrad
Laser parameters	
Pulse energy	200 mJ
Pulse width	50 fs (FWHM)
Wavelength	800 nm
Beam size	∼10 μm (rms)
Interaction angle	90 °, 165 °
X線発生実験結果(I)一強度

) 5

* Calculated value



Laser energy vs. Number of X-ray photons



X線発生実験結果(I)一安定性

・Shot-to-shot の安定性 (15 min)



X線強度およびエネルギーの空間分布測定

・X線CCDカメラを用いたX線の強度およびエネルギーの空間分布の測定
 ・最大エネルギー:15keV (36 MeV electron, 90° interaction)



Sumitomo Heavy Industries, Itd.

X-線強度の2D分布

・空間分布は楕円形であり、その向きはレーザーの偏光 向きに依存する

Aperture of the window



Sumitomo Heavy Industries, Itd.



発表内容

1. レーザーコンプトン散乱によるX線発生

- 2. 発生装置
- 3. X線の利用例
 - (動解析、イメージング)
- 4. 産総研の装置の現状

5. まとめ

フェムト秒での構造変化の時分割測定

(Lawrence Berkeley National Lab.より)

Structural Dynamics in Condensed Matter

fundamental time scale for atomic motion vibrational period: T_{uib}~100 fs

- ultrafast chemical reactions
- ultrafast phase transitions
- surface dynamics
- ultrafast biological processes

time-resolved x-ray diffraction



ordered crystals - phase transitions, coherent phonons

time-resolved EXAFS, NEXAFS, surface EXAFS





complex/disordered materials - chemical reactions surface dynamics bonding geometry

💠 Sumitomo Heavy Industries, ltd.

レーザーコンプトン散乱によるフェムト秒X線を用いた測定例

(Lawrence Berkeley National Lab.)



Schoenlein et al., Science, 1996.

💠 Sumitomo Heavy Industries, Ltd.

屈折コントラストイメージング

- ・従来の吸収コントラストと比較して、異なった屈折率の物質の境界が 強調される
- ・光源には高い空間コヒーレントが要求される



Sumitomo Heavy Industries, Itd.



屈折コントラストの測定例

- ・接着剤中の気泡
- •X線エネルギー: 17keV

CCD images at

0.1m behind the sample





Sumitomo Heavy Industries, Itd.

5mm

接着剤中の気泡の屈折コントラスト(2)



13cm離れたところでの像

1.1m離れたところでの像

Sumitomo Heavy Industries, Itd.

ファイバー

1mm

発表内容

1. レーザーコンプトン散乱によるX線発生

- 2. 発生装置
- 3. X線の利用例
 - (動解析、イメージング)
- 4. 産総研の装置の現状 (平均X線量増大のための開発)
- 5. まとめ



LCS硬X線発生装置アップグレードについて

1. マルチバンチ電子ビーム生成

- •フォトカソード用マルチパルスレーザーの開発
- •半導体フォトカソード(Cs2Te) ロードロックシステムの開発
- 2. マルチ衝突レーザーの開発



LCS硬X線の2桁以上の収量増加を目指す → 10⁹ photon/s (全エネルギー) ◆ Sumitomo Heavy Industries, ltd. -32<u>マルチバンチ電子ビーム生成</u>

小型全固体マルチパルスレーザー

• $8 \mu J \times 100$ pulse/ macro pulse@UV





まとめ

レーザーコンプトン散乱によるX線の安定発生に成功.

- エネルギーは15-34KeV。
- X線強度は165度で最大 2×10⁶ photons/pulse (全散乱フォトン).
 90度で最大 5×10⁵ photons/pulse (全散乱フォトン).
- 同期システムの安定化等により、X線強度の安定性の向上
 ・90度衝突で11%(rms)、165度(ほぼ正面)で6%の安定度
 ・7時間の長時間運転も行い、安定度8%(100pulse積算で)
- X線の強度分布およびエネルギー分布を測定し、計算と比較してよい一致 を確認
- 屈折コントラストによるイメージングをデモンストレーション

現在、開発装置は産総研に移設(2005年度)、運転が開始されている。利用実験を再開するとともに、強度向上を目指した開発を進めている。

Sumitomo Heavy Industries, Itd.

レーザーコンプトン散乱装置用タイミング同期レーザー

小林洋平 吉富大 鳥塚健二 産業技術総合研究所

Timing synchronization of femtosecond lasers for laser Compton system

Yohei Kobayashi, Dai Yoshitomi, and Kenji Torizuka. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Japan

<Synopsis>

Femtosecond X-ray pulses from laser Compton scheme could be applied for the medical and industrial diagnosing or for some physics experiments. Femtosecond timing synchronization of independent lasers is a key technology for a laser Compton experiment. We show some experimental result of timing synchronization of mode-locked solid and fiber lasers. We achieved a few femtosecond timing control of fiber lasers and sub-femtosecond timing jitter between two solid-state lasers.

レーザーコンプトン散乱によるフェムト秒 X 線発生は医学、産業応用に期待されている。 我々は FESTA との共同で 90 度レーザーコンプトン散乱用レーザーの開発、特にフォトカソ ード用レーザーと衝突用レーザーとのタイミング同期について研究してきた。本発表では今 までのタイミング制御技術についてと今後の ERL でのレーザーシステムの可能性について述 べる予定である。

電子パルスは 2.856GHz の RF で加速されるため高繰り返しのレーザーが必要となる。また、 衝突用レーザーは TW 級であるため、発振器の繰り返し周波数は 100MH z 程度が要求される。 ここでは 2.856GHz の 24 分周周波数である 119MH z の繰り返しレーザーを用いた。 2.856GHz と 119MHz の二台のチタンサファイアレーザー発振器を用意し、これらのタイミングジッタ ーを制御する実験を行った。電気信号のフィードバックおよび電気信号 + 光信号のフィード バックを試したところ、サブ 10 フェムト秒のタイミングジッターにまで抑えることができた。

今後開発される ERL 用のレーザーシステムでも同様に 1.3GHz のフォトカソード用レーザ ーと衝突用レーザーとのタイミング同期が重要となる。さらに、両者の距離が離れているた めクロックデリバリも重要な技術となる。

また、電子バンチの繰り返しが高いため衝突レーザーを共振器に閉じ込めることが技術的 に可能となってくる。この可能性についても触れる予定である。

レーザーコンプトン散乱装置用 タイミング同期レーザー

産業技術総合研究所 小林洋平 吉富大 鳥塚健二



レーザーコンプトン散乱



2

必要なレーザー技術

●フォトカソード用レーザー ●波長 カソード材料による (ERLでは~800nm) ●平均パワー 繰り返しによる (ERLでは >30 W) ●繰り返し (ERLでは1.3GHz) ●パルス幅 フェムト秒 ●衝突用レーザー ●Ti:sapphireレーザーのCPAシステム ●タイミング同期 ●フェムト秒精度での異なるレーザーのタイミング同期 ●タイミングデリバリ •~ km, ~ 20 fs



アウトライン

コンプトン用タイミング同期実験 •2.856 GHz レーザーと119 MHz レーザーとの5fs タイミング同期

●異なる波長の超高精度タイミング同期実験

●Ti:sapphireレーザーとCr:forsteriteレーザーとのアト秒タイミング同期 ●Cr:forsteriteレーザーとEr:fiberレーザーとの3fsタイミング同期

●Ybファイバー増幅実験

●100-MHz、フェムト秒パルス列の7W増幅

●エンハンスメント共振器の可能性 ●コンプトン散乱実験の秘密兵器になるか?



タイミング同期

•フォトカソード用レーザーと応用実験用レーザーとのタイミン グ同期

・要望は何fs?
・異なる繰り返し周波数のレーザー間の同期
・遠方のレーザー間の同期

これらを解決する必要がある。

以前FESTAと共同で行ったまさに、この用途のタイミング同期実験を紹介する



2.856 GHz、119MHz レーザーのタイミング同期



T. Yanagida, Y. Kobayashi, K. Maeda, S. Ito, F. Sakai, K. Torizuka, and A. Endo: Proc. SPIE 5194 (2003) 149[AIP].

電気のPLL制御だけの場合

相関光を用いた時間ジッター計測結果

フォトダイオードによる光検出 測定帯域 最大300 kHz

測定帯域	時間ジッター
300 kHz - 2.5 Hz	5.7 fs
30 kHz - 0.25 Hz	6.3 fs
3 kHz – 25 mHz	4.9 fs



相互相関光のプロファイル

帯域3kHzでの測定結果

T. Yanagida, Y. Kobayashi, K. Maeda, S. Ito, F. Sakai, K. Torizuka, and A. Endo: Proc. SPIE 5194 (2003) 149[AIP].

発生したドリフトのようす



ドリフトの観測 5 – 15 min / 100 fs

原因として考えられるもの

- ・温度変化による光学定盤やRFケーブルの伸縮
- ・位相比較器の基準参照電圧の変動

1度で10^-5:1kmなら10mm=30 ps. 10fsに抑えるためには0.3mK以内! タイミングデリバリの難しいポイント 長時間同期(+相関光フィードバック)



RMS jitter < 4 fs (50 Hzサンプリング)

同期精度を維持したまま、1時間以上の運転が可能になった

2台のチタンサファイアレーザーはタイミング同期できる 長距離の問題は依然残る

Control of Ti:sapphire and Cr:forsterite laser

NIST, coherent synthesis (< ms) A. Bartels, et. al. Opt. Lett. 29, 403 (2004) **MIT 0.3-fs timing jitter**, phase relation observation T. Schibli et. al. Opt. Lett. 28, 947 (2003) AIST 1-fs timing jitter (2002), phase control (2003) 0.1-fs timing jitter D. Yoshitomi et. al. Opt. Lett. 30, 1408 (2005) **Tight optical phase locking (>3000 s)** Y. Kobayashi et. al. Opt. Lett. 30, 2496 (2005) CrF TiS 0.8µm 1.2µm

10

Passively synchronized two-wavelength laser



Movie of passive synchronization

Changing the cavity length by PZT,

Two-wavelength laser



Timing jitter in variousobservation bandwidths1kHz BW100kHz BW1MHz BW



Slow jitter (1kHz BW) was significantly reduced by active control!

98 ± 18 as (10mHz – 100kHz) **126 ± 20 as** (10mHz – 1MHz)

D. Yoshitomi et. al. Opt. Lett. 30, 1408 (2005)

光位相同期もできる





Optical phase control – RF spectrum of locked beat



Y. Kobayashi et. al. Opt. Lett. 30, 2496 (2005)





Precise timing control of the fiber laser is required for clock delivery in a short range application (10-km region).

10-fs timing jitter with active control was demonstrated [*]

•How precise can we control the timing jitter?

[*] D. D. Hudson, et. al., Opt. Lett. 31, 1951 (2006).





Results -Timing synchronization

Picture of master (upper) and slave (lower) pulses



Tolerance of cavity mismatch



Repetition rate of fiber laser is synchronized to that of master laser.
Tolerance is ~ 400 Hz.


Ybファイバー発振器及び増幅器 ー フォトカソード用レーザー



700-900nm のためにはOPA



Ybファイバー増幅器



Ybファイバー増幅器





大沼 他 2006年秋季応用物理学会 1p-W-7



例えばT. Schibli et. al., CLEO2007 postdeadline paper

Femtosecond frequency comb



Cavity mode and frequency comb



オフセット周波数と繰り返し周波数の2自由度をロックする必要がある。

加速器のシステムに必要と思われるレーザー



現状と課題

● タイミング同期 fsレベル

GHz-Yb発振器
高出力Ybファイバーアンプ
タイミングデリバリー



テラヘルツ放射光の現状と大強度 CSR の利用

木 村 真 一 (分子科学研究所 UVSOR 施設)

Present Status of Terahertz Synchrotron Radiation and Future Use of Intense CSR

Shin-ichi Kimura, UVSOR Facility, Institute for Molecular Science

<Synopsis>

Synchrotron radiation (SR) in the terahertz (THz) and infrared regions is widely used for scientific researches and applications in the world because of its high brilliance and broadband properties. In this talk, we will present some examples of experiment using the conventional THz SR and prospects using intense THz coherent SR generated by the Compact ERL light source.

<本文>

一般に,10¹¹~10¹⁴ Hz(0.1~100 THz,3.3~3300 cm⁻¹,0.4~400 meV)の周波数を持つ電磁 波をテラヘルツと呼んでいる。この領域は,光と電波との境に位置しており,それぞれで開 発されてきた光源や検出器の技術の延長では難しい領域であるため,「テクノロジーギャッ プ」と呼ばれていた。しかしながら,格子振動や分子振動,半導体のエネルギーギャップ, 伝導キャリアのプラズマ振動数,相互作用の強い系の準粒子など,物質科学の根本に関わる 素励起の重要な情報を多く含んでいるため,昔から地道に基礎的な研究が展開されている。 この流れの延長上で,20 年以上前に,より先端的なテラヘルツ分光を目的として UVSOR に 世界最初の共用ビームラインが建設された。[1] このビームラインの成功が発端となり,世界 各地に赤外・テラヘルツビームラインが建設され,最近建設された放射光施設には,かなら ずといっていいほど,赤外ビームラインが設置・計画されている。

現在の赤外・テラヘルツビームラインの主な目的は,汎用赤外分光計で用いられているグ ローバー灯や高圧水銀灯などの黒体輻射の原理を利用した光源に比較して桁違いに高い輝度 及び強度を利用した,回折限界空間分解能での分光やイメージング,meV 領域(sub-THz)の 分光などである。これらの手法を用いて現在行われている研究の多くは,極限環境下など汎 用装置では困難または不可能であった分光実験である。つまり,テラヘルツ放射光(THz-SR) を高輝度・大強度なランプとして使っているにすぎない。

80年代終わりの電子線ライナックからのコヒーレント放射光(CSR)の観測[2]および2000

年以降の電子蓄積リングでの CSR の生成[3], および, エネルギー回収型ライナック(ERL) からの大強度 CSR の出現[4]によって, これまでの THz-SR のプローブ光としての利用研究か らさらに一歩先に進んだ利用への道が開けた。それは,大強度なパルス特性および高いコヒ ーレンス性を持った白色光としての特性である。現在, これらの利用および新規方法論の開 拓が世界各地で進められており, 例えばアメリカでは, DOE-NSF-NIH のワークショップ報告 の形で研究の方向性がまとめられている。[5]

講演では,以上の利用研究の現状についてまとめ, ERL を用いることで近い将来に可能に なると考えられる,大強度テラヘルツ光を利用した研究の方向性について議論する。

[1] T. Nanba et al., Int. J. Infrared and Millimeter Waves 7, 1769 (1986).
[2] T. Nakazato et al., PRL 63, 1245 (1989) 1245.
[3] A. Andersson et al., Opt. Eng. 39, 3099 (2000).
[4] G. L. Carr et al., Nature 420, 153 (2002).
[5] http://www.sc.doe.gov/bes/reports/files/THz_rpt.pdf.

ラヘルツ放射光の現状と 大強度CSRの利用

自然科学研究機構分子科学研究所 極端紫外光研究施設(UVSOR)

Outline





Advantage of IRSR compared with ordinary sources



High brilliance > Excellent for spectromicroscopy **IRSR** Broadband > Useful for spectroscopy Linear/circular polarization **IR-SR** \succ Crystallic asymmetry, Molecular orbital, polar direction, MCD Pulse (sub-pico-second) ➤ Time structure -50





THzSR+IRSR beamline in the world



,	Japan	UVSOR-II 6B THz+IR, multipurpose, microscopy, MCD				
		SPring-8 43IR IR, microscopy under extreme conditions				
l	ISA NSLS U2A IR, microscopy under high pressure (e (geology)	
			U2B IR, microscopy for biology			
			U4IR THz+IR, surface science			
			U10A IR, multipurpose (solid state physics)			
			U10B IR, multipurpose, wide energy range			
			U12IR THz+IR, pump-probe (solid state physics)			
		ALS	1.4.2 IR, multipurpose, surface science			
			1,4.3 IR, microscopy (biology)			
		SRC	031 IR, microscopy			
1	France	super-ACO SIRLOIN, AR, multipurpose				
		SOLEIL				
l			13.3	IR, microscopy, surface scienc	е	
	1	Diamond	let ward u	A substitutor		
	Sweden	n MAX I 073 IR, high resolution (gas)				
(Germany ANKA					
		BESSY II R, microscopy, THz-CSR				
	Italy DAONE SINBAD THZ+IR				Γ	
	BL7	Elletra		IR 🧧	Red: THz	
	Fai wan	SRRC		IR, microscopy	Blue IR	
Ç	Switzerla	nd SLS		IR microscopy	Diue. IIV.	
	111	ESRF	_	IR, microscopy		
China NSRL, Canada CLS, Under consideration						

Reconstructed IR+THz beam line(BL6B) at UVSOR-II (since 2004)





Intensity and brilliance of IRSR compared with a globar lamp

Intensity





Brilliance

End stations of BL6B at UVSOR-II







End stations of BL6B at UVSOR-II





THz spectroscopy under pressures

Microscope

Horizontal optical pass
Energy range
Laboratory: 50 meV ~ 1.2 eV
UVSOR-II BL6B: 5 meV ~ 50 meV

Diamond anvil pressure cell







Microsope @ BL6B

10

Spatial resolution of microscope in the THz region at BL6B



UVSOR Facility, Institute for Molecular Science

Pressure dependence of $R(\omega)$ in SmS



Ε

11

[T. Mizuno, SK et al.]



Scientific program at BL6B



 Electrodynamics of solids @ multi-extreme conditions \geq Very low temperature (~0.4K) > High pressures (~20GPa) ≻**H**igh fields (~6T) • THz microspectroscopy FIR-RAS of adsorbed molecules THz spectroscopy of protains THz excitation with coherent SR. 10³~10⁴ higher intensity than the present IRSR.









Coherent Synchrotron Radiation (CSR)





Intense CSR induced by a laser bunch slicing



Coherent Terahertz Pulses by Bunch Slicing



[M. Katoh et al., Proc. EPAC06, 3377 (2006).]



Laser pulse width dependence of CSR spectrum



[M. Katoh et al., Proc. EPAC06, 3377 (2006).]



The dip is made by laser.

Onset shifts to the lower wavenumber side with increasing pulse width.

This is the evidence of the CSR originates from the dip induced by laser.



Average power of CSR



Application of CSR @ BESSY-II (Conventional use)

Use of intense sub-THz light [M. Ortolani et al., PRL **97**, 097002 (2006).]



FIG. 1 (color online). Reflectivity of a strongly B-doped diamond film in the sub-THz region, normalized to its values at 10 K. The lines are fits obtained by assuming a BCS reflectivity below T_c and a Hagen-Rubens model at 10 K. The inset shows on the left scale the magnetic moment of the sample, as cooled either in a 10 Oe field (FC) or in zero field (ZFC), its resistance normalized to its value at 12 K on the right scale. The FC values are multiplied by 10.



FIG. 2 (color online). Optical response of superconducting diamond: (a) absolute reflectivity obtained from the ratios of Fig. 1 and the $R(\omega)$ at 10 K shown in the inset; (b) real part of the optical conductivity; (c) inverse square of the penetration depth (\blacksquare), compared with its behavior for a dirty BCS superconductor (gray line). In (a), the points at $T < T_c$ and $\omega < 2\Delta$ are replaced by those of the fits in Fig. 1. This allows one to discard unphysical values R > 1, due to residual noise, which would affect the Kramers-Kronig transformations.



THz SNOM @ BESSY-II

(Microscopic use)

[U. Schade et al., APL 84, 1422 (2004).]



FIG. 1. Schematic diagram of the THz scanning near-field infrared microscopy setup.





Catching T-rays



[G.L. Carr et al., Nature, **420**, 153 (2002).] **High-power terahertz radiation from relativistic electrons**

G. L. Carr*, Michael C. Martin†, Wayne R. McKinney†, K. Jordan‡, George R. Neil‡ & G. P. Williams‡

* National Synchrotron Light Source, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York 11973, USA

† Advanced Light Source Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California 94720, USA

‡ Free Electron Laser Facility, Jefferson Laboratory, 12000 Jefferson Avenue, Newport News, Virginia 23606, USA



Intense CSR from ERL @ KEK





High power CW THz sources





Conclusion + outlook




テラヘルツ技術の現状と展望

斗内政吉 大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

Current Status and Prospect of Terahertz Technology

Masayoshi Tonouchi, Institute of Laser Engineering, Osaka University

<Synopsis>

Research into terahertz technology is now receiving increasing attention around the world and devices exploiting this waveband are set to play an increasingly important role in a very diverse range of applications. This review gives an overview of the status of the technology, its uses and its future prospects.

<本文>

テラヘルツ帯には、様々な物質の特徴的現象が存在し、分子振動・分子間相互作用・電荷 相互作用・イオン分極などの物性から、バイオ・生体活動を科学するプラットホームでもあ ることから、長年、サイエンスの宝庫として研究者の興味を引いてきた。しかしながら、テ ラヘルツ帯は、電子デバイスの動作上限周波数に近く、良質の信号源や光源がなく、また、 水の吸収が大きく影響するなど、その利用は、電波天文など宇宙の観測、フーリエ・ラマン 分光など、特殊な計測・分析分野に限られていた。その未開拓電磁波領域において、近年の 技術革新により、新しい機能が創製され、新たなる発展を始めた。

テラヘルツ技術は新しいセンシング機能を提供し、工業・医療・バイオ・農業・セキュリ ティなど様々な分野における応用が見込まれている。情報通信分野においては、利用電磁波 のますますの高周波化が進んでおり、数百 GHz の無線通信が実現される時期も遠くはない。 ナノ技術の発展に伴って、テラヘルツ動作を目指す半導体デバイス、動作周波数 200 GHz を 目指す超伝導単一磁束量子論理回路の開発も急速に進展し、高速信号処理技術などテラヘル ツ帯信号処理が可能になりつつある。テラヘルツ技術は、そのような次世代の機能センシン グ・情報通信・エレクトロニクスの基盤となるべき科学技術分野を切り開くとともに、基礎 科学の分野においても不可欠な分野である。また、生体温度領域にもあることから、バイオ・ 生体活動を科学する重要な分野でもある。

本稿では、新しいテラヘルツ技術の現状とそれが切り拓く新しい科学と応用の展望を概説 する。

参考文献

M.Tonouchi, "Cutting-edge terahertz technology", Nature Photonics 1 (2), 97 - 105 (2007).

斗内政吉監修、"テラヘルツ技術"、オーム社、2006年5月

斗内政吉、田中耕一郎、" テラヘルツ時間流域分光法 "、電子情報通信学会誌、Vol.80, No.6 (2006)474-480

斗内政吉, "テラヘルツ波技術の現状と展望",応用物理, Vol. 75, No.2 (2006) 160.





周波数 (Hz)

1. 背景 ~テラヘルツ技術の新展開~ 2. テラヘルツ技術の現状 3. テラヘルツ技術が拓く新しい科学技術分野 4. 高輝度テラヘルツ光への期待 5. まとめ



1) テラヘルツ技術は新しいセンシング機能を提供し、工業・医療・バイオ・農業・セキュ リティなど様々な分野における応用が見込まれている。2) 情報通信・エレクトロニクス分 野においても基盤技術となりつつある。3) バイオ・生体活動を科学する重要なプラット フォームである。4) テラヘルツ波を観測することで宇宙誕生の鍵を解く情報収集が期待さ れるなど、サイエンスの宝庫でもある。



テラヘルツ技術の新展開

1. テラヘルツ時間領域分光法(1990年代以降)

>物質の複素パラメーター(光学定数、誘電率など)が、簡単に計測できるようになった。
>分光イメージングにより様々な応用が期待されている。

▶フェムト秒時間スケールの物質のダイナミックな応答を追跡できるようになった。

2. テラヘルツ量子カスケードレーザー(2002年以降)

>ナノテクノロジーの進化により新しいレーザーが誕生

▶新しい分析・センシング応用が期待(ガス分析など)

3. 高出カテラヘルツ波光源(2000年以降)

>フォトミキシングによる高精度なチューナブルテラヘルツ波の発生

▶ 非線形効果による高出力テラヘルツ光源(パラメトリック、差周波混合など)

▶THz自由電子レーザーなど(ジェファーソン研究所など)

4. サブテラヘルツ電子デバイス・集積回路技術(2005年以降)

▶半導体・超伝導集積回路の高速動作(100GHz以上)

> 共鳴トンネルダイオードなどの基礎研究(1THzの発振など)



テラヘルツ時間領域分光法 Terahertz Time Domain Spectroscopy THz-TDS

時間領域テラヘルツ波分光システム



Institute of Laser Engineering Osaka University

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

Normal THz-TDS





テラヘルツ量子カスケードレーザー Terahertz Quantum Cascade Laser THz-QCL



NICT 寳迫巌氏提供



Nature Vol. 417 (2002)



Tonouchi



New approach to THz sources



テラヘルツイメージング





B. B. Hu and M. C. Nuss Opt. Lett. 20, 1716 (1995).



阪大斗内研



名大/理研・川瀬晃道&栃木ニコン₁₃

大阪大学 斗内政吉

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

テラヘルツ技術の将来展望



テラヘルツ技術、オーム社、2006年⁴

大阪大学 斗内政吉



テラヘルツテクノロジー分野の融合とシナジー効果







テラヘルツイメージングは、様々なセンシング機能を有し、危険物・禁止薬物 検査・隠匿物検査など、セキュリティ分野における新展開が期待されている。17

皮膚がん診断





DNA検査

ラベルフリー検出が可能

医薬品結晶多形分析





イム/アッセイ(抗原抗体反応)

テラヘルツ分光イメージングは、医薬品結晶多形、分子間相互作用、 水素結合評価、成分検査など、様々な新しい分析応用が期待されている。18

バイオ・生体・

医療・医薬品検査応用





電率評価による電子・ナノ材料分析、農作物等の水分成分検査、 テラヘルツ波発生によるLSI不良解析など、産業展開への期待も大きい。 19

宇宙·環境計測

Image courtesy of JAXA



SMILES



ALMA





Earth Monitoring



12.5&3.3THz Camera





20

Institute of Laser Engineering Osaka University

大阪大学レーザーエネルギー学研究センター



テラヘルツテクノロジーが目指すもの

より豊か、より便利、より安全・安心な社会への貢献

高度情報通信技術革新

□ 次世代光通信
 □ テラヘルツ無線
 □ 高速ネットワーク/ード
 □ 超高速論理回路/サーバー

新機能センシング・分析技術の創製

☞バイオ/生体分析・医療 ☞セキュリティー・環境検査 ☞非破壊検査・工業分析 ☞宇宙観測・基礎科学



産業展開

大阪大学 斗内政吉

分析機器

⇒電子材料・工業材料・バイオ/医薬品・農作物・ 環境計測など

診断·検査技術

⇒皮膚癌・セラミックス・美術品・LSI不良解析・

医薬品・建物(建材)・スペースシャトル断熱材など 安全・安心技術

⇒禁止薬物・危険物(爆薬・有毒ガスなど)・

セキュリティー(THzカメラ)・指紋・食品検査など 情報通信

⇒サブテラヘルツ無線(ビル間通信・ホットスポット・

遠隔医療・ハイビジョンTV)・光ルーターなど

基礎科学研究機器

⇒宇宙天文・分子/電荷ダイナミクス観測など







川瀬晃道らる by 名大



スペースシャトル 外壁パネル全数検査

NASA Panel #75 with Artificial Defects



0.2 THz image



28 of 30 defects are identified http://www.rpi.edu/~zhangxc

http://www.rpi.edu/~zhangxc

LSI不良箇所特定装置 (阪大、NECEL他開発中)

断線なし 断線あり



MOS TEGサンプル

安全·安心応用例

THz-QCLによる リアルタイムイメージング



IEEE Photonics Technol. Lett. 18, 1415(2006).

郵便物内の麻薬検査





(60 mg each)

理研·名大他







サクロース 水和数⇒約11個

Int. J. Infrared and Millimeter Waves 27, 505-515 (2006)

How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma

R. Huber*, F. Tauser*, A. Brodschelm*, M. Bichler†, G. Abstreiter† & A. Leitenstorfer*



NATURE VOL 414 15 NOVEMBER 2001 2866

Courtesy of Fukunaga(NICT)

Art Conservation



Contact: kaori@nict.go.jp

高輝度テラヘルツ光への期待

1. EMC技術の標準化

⇒テラヘルツの安全・安心/セキュリティー応用 ☆データベースの構築 ☆生体への影響を検証し、産業展開規格を提供

⇒材料科学への新展開

☆基礎科学・新Qbits・・・

3. テラヘルツ非線形光学

⇒新しい非線形光学

☆バイオ・製薬・材料科学・基礎科学・天文… 4.新電磁気学

⇒新しい光科学のための基盤ツール ☆メタマテリアル・スーパーレンズ・透明マント・・・



テラヘルツテクノロジーは、主要3分野、テラヘルツ波・ テラヘルツフォトニクス・テラヘルツエレクトロニクスの 融合により、生命・医療・健康・産業・宇宙・環境・安全/ 安心・情報通信・基礎科学など、広範な領域において、新 規科学技術・応用分野を切り拓き、大きな波及効果をもた らすことが期待される。



1966-1969



1985



携帯電話からICT端末へ 2005

C Paramount Pictures

tonouchi@ile.osaka-u.ac.jp



参考文献

応用物理学会誌2006年2月号 nature photonics 2007年2月号 テラヘルツ技術(オーム社、2006年5月) http://www.ile.osaka-u.ac.jp/research/THP/



REVIEW ARTIC

Cutting-edge terahertz technology

Research into terahertz technology is now receiving increasing attention around the world, and device exploiting this waveband are set to become increasingly important in a very diverse range of application Here, an overview of the status of the technology, its uses and its future prospects are presented.



総合報告

テラヘルツ波技術の現状と展望

.....

近年の来・ナノ技術の資産により、テラヘルツ分野における技術学校が多んでいる、テラヘルツ絵画 個式分支法、テラヘルツ屋子カスケードレーザー、サブテラヘルツ自然調気、サブテラヘルツ間気保守 個標時振みよびテラヘルツデバイスなどさまざまなテラヘルツ厚連研究成果が広がっており、新しい発 学校部分野として、また、新規資業の開拓を担うものとして、大いに単独されている、そのような中、 員体的な相定局望を用らかにするため、アラヘルツ技術に関する目的原意が実施された、本権では、同 **劇向彩白の並来を結まえて、 テラヘルツ 波技術の現状と眉望について展発し、次世代キーテクノロジ** 豊富を伝謝した。テラヘルツ電音波・テラヘルツフォトニクス・テラヘルツエレクトロニクス三研究分 野の巣倉的構造を変変する。

Keywords : teraherts wanes, teraherts photonics, teraherts electronics, time-dumale-spectroscopy, THe sensing, THe imaging, THe wireless communications

1. まえがき

テラヘルツ鍵工学は、近年の光・ナノ枝厳の発展により 技術革新がもたらされ。新しい分野を影響するものとして 往日を髪めている。テラヘルツ彼は、電波天文や分析教学 の分野において、広く研究・利用されてきたが、その対象 は夢定的なものであった。そのテラヘルツ旗技術に、今、 新しいセンシング爆撃が目如され、工業・医療・パイオ・ 肩膀・セキュリティなどさまざまな分野における応用が期 特されている、また、情報通信分野においては、利用電磁 第のますますの高度変化が強んでおり、数百 GHz の有線 遺信が実現される時期も強くはない、さらに、テラヘルツ デバイスの開発も急速に決議し、超高速信号処理技術も利 用可能になりつつある、すなわち、テラヘルツ液技術は、 **基礎形学の際のみならず、新聞線センシング・情報通信・** スレクトロニクス分野において、新規産業の優新に大きな 投解を果たすことが業物され、次世代に不可欠な影学技術 と位置づけることができる。 テラヘルツ帯(関1)における技術革新は、①テラヘルツ

書品紙 信子ラヘルツフォトニクス。(図子ラヘルツエレク) トロニクスの三つの主要分野で進んでいる。テラヘルジ電 **耐能分野においては、フェムト移レーデーの発展により**テ ラヘルツ時期無縁分光法"が開発され、フーリス成分が数 +GHz から百 THz を超える超プロードパンド 編写電磁 **油パルスの発生と時間毎味計測¹により、新しいテラヘル** 9分光・イメージング技術9 が誕生してきた、フォトニクス

・サラヘルジテクノロジー動向調査委員会 〒160-062 単原常新潟に新潟1-38-2 小者ビル (例)テレコム美華県原鉄支援とングー門。 分離感受 11.6, 7.1



からのアプローチとして、フォトミキシングによる光・電

母装を除により、100 GHz 帯の無禁酒信技術が開発された。

数十Ghtsの簡繁伝達が実現可能となっている? また、ナ

ノ技術の機械により、高精度に影響された平原体量子書画

構造の作製が可能となり、量子カスケードレーザー(QCL) のテラヘルツ帯発展が実現された?。現在では1.9 THz 税

度までの低間被化が進んでいる"。 スレクトロニクス研究

分野では、化合物率運動装置器による。MMICや高速

AD変換器の構築を読んでおり、また、部分運用一種支量子

(SFQ) 臆理同時の開発により, 110 GHs で動作するシフト

レジスター⁶ や 40 GHa × 4=160 Gbos の 光 パケットス イッチも実現可能であるり、今まさに、テラヘルツデジタル

信号航程技術を利用できる環境が取い、実施・計測の用な

デラヘルプ
 エレクトロニクス → デラヘルプ
 エレクトロニクス → フォトニクス

デラヘルク電磁波

第1 高泉歌による多まがまな装装・高川介野とテラヘルツ歌写法 テラヘルツフォトニクス、テラヘルツエレクトロニタスの開



斗内 政吉 ● 監修 テラヘルツテクノロジー動向調査委員会 🧧 編



※- デノ加速

16 - m

ERL 研究会「コンパクト ERL が拓く世界」

テラヘルツ時間領域分光法と基礎科学への応用

京都大学大学院理学研究科 田中耕一郎

Terahertz Time-Domain Spectroscopy and its Application to Fundamental Sciences

Koichiro Tanaka Department of Physics, Kyoto University

<Synopsis>

State of the art of the terahertz time-domain spectroscopy is reviewed. After a brief summary of the basic concept of the spectroscopy, several examples of measurements on dielectric constants are presented with references. Special attention is paid for the terahertz attenuated total reflection spectroscopy that serves a powerful characterization method for powder samples, polar liquids, and surface excitations. Finally, future prospects for non-linear THz spectroscopy will be discussed with a special attention to recent development of high power THz sources.

2007/7/9 ERL研究会「コンパクトERLが拓く世界」 KEK, Tsukuba

テラヘルツ時間領域分光法と 基礎科学への応用

Department of Physics, Kyoto University Koichiro Tanaka

SCOPE project 2003-2007



Advanced Terahertz Technologies adapted for Optical Communication





JSPS project 2006-2010

1

Exploitation of Organic Electronic Materials of Potential Dynamic Switches for Nonequilibrium Condensed Matter Sciences

講演内容

- テラヘルツテクノロジーとは何か?
- 時間領域テラヘルツ分光法の基礎
- 時間領域テラヘルツ分光法による物性測定 有機材料,強誘電体、半導体、超伝導体 水、水溶液
- 非線型テラヘルツ分光の必要性と戦略



Importance of terahertz frequency region


Absorption of Liquid Water



THz-Imaging







Much of current THz research revolves around spectral specificity and transmission properties. The THz frequency



B. B. Hu and M. C. Nuss, Opt. Lett. 20, 1716 (1995)

Kawase (Nagoya/Riken), Nikon 5

講演内容

- テラヘルツテクノロジーとは何か?
- 時間領域テラヘルツ分光法の基礎
- 時間領域テラヘルツ分光法による物性測定 有機材料,強誘電体、半導体、超伝導体 水、水溶液
- 非線型テラヘルツ分光の必要性と戦略



THz-TDSの進展 - フェムト秒レーザーの進歩



THz-detection



THz-wave generation with second-order non-linear optical process



Phase matching condition



THz-wave detection





 P_{THz} = 100 pJ/pulse, 10 nJ/cm², 10 kW/ cm², $|E_{THz}|$ ~1kV/cm=100kV/m

Typically, for the non-linear spectroscopy in visible region, we need a MW/cm² class laser.

Time-domain spectroscopy (TDS) is a powerful tool in THz region



✓ Pulse measurements ⇒ High sensitivity. cf. FTIR ✓ Electric field measurements ⇒ Complex dielectric constants. $E(\omega), \phi(\omega)$





Terahertz Time-Domain Spectroscopy (THz-TDS)



Kyoto University 2006 🦉

Compact THz-ATR spectrometer



講演内容

- テラヘルツテクノロジーとは何か?
- 時間領域テラヘルツ分光法の基礎
- 時間領域テラヘルツ分光法による物性測定 有機材料,強誘電体、半導体、超伝導体 水、水溶液
- 非線型テラヘルツ分光の必要性と戦略



Importance of terahertz frequency region



17

Mode-softening in KTaO₃ crystal

Ichikawa, Tanaka et al.: Physical Review B 71(2005) 086509.



18

Dielectric function in KTaO₃



Static dielectric constant



Ichikawa et al.: Physical Review B 71(2005) 086509.

20

アミノ酸結晶の吸収



isolated bases \rightarrow DNA: first step



Evanescent wave in ATR



exponentially decaying away from the interface waves

Kyoto University 2006



Surface plasmon in semiconductor with THz-ATR

H. Hirori, M. Nagai, and K. Tanaka, Optics Express, 13, (26), 10801-10814 (2005).



24

Dielectric constant in doped semiconductor



H. Hirori, M. Nagai, and K. Tanaka, Optics Express, 13, (26), 10801-10814 (2005).



Pump and probe spectroscopy

"How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of electron-hole plasma"

R. Huber, F. Tauser, A. Brodschelm, M. Bichler, G. Abstrelter and A. Leitenstorfer



Nature. Vol.414 (2001) 286

Kyoto University 2004

Superconducting gap

"Far-infrared optical conductivity gap in superconducting MgB₂ films"

<u>R. A. Kaindl, M. A. Carnahan, J. Orestein, D. S. Chemla, H.</u> M. Christen, H. Y. Zhai, M. Paranthaman and D. H. Lowndes

Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 027003



100nm MgB₂薄膜における透過波形 6K(実線)と40K(破線) Insetは100nm MgB₂薄膜(□)と200nm MgB₂薄膜(●)の抵抗の温度変化



40Kの値で規格化した透過率

(b)膜厚100nm MgB₂

6K(●), 20K(〇) 27K(◆), 30K(◇), 33K(■) (c)膜厚200nm MgB₂(6K, 20K 25K, 30K, 36K) 6K(●), 20K(〇) 25K(◆), 30K(◇), 36K(■)

TD-ATR spectroscopy in water



Dielectric Constants in Water



講演内容

- テラヘルツテクノロジーとは何か?
- 時間領域テラヘルツ分光法の基礎
- 時間領域テラヘルツ分光法による物性測定 有機材料,強誘電体、半導体、超伝導体 水、水溶液
- 非線型テラヘルツ分光の必要性と戦略



State of the art of the THz pulse power using fs laser

	Pump power		THz power		
Ti: Al ₂ O ₃ laser		/pulse	average	/pulse	Electric field (V/cm)
Amplifier@1KHz	650 mW	650 µJ	0.1µW	125 pJ	1 KV/cm
Oscillator with magnetic field (Sarukura 1.7T, @80MHz)	1500 mW 650 mW	18.75 nJ 8.125 nJ	650 μW 110 μW	8.125pJ 1.375pJ	0.25 KV/cm 0.1 KV/cm



 Basic idea of <u>velocity matching</u> by pulse front using Cherenkov effect with non-linear crystal

A. G. Stepanov, J. Hebling and J. Kuhl et al., Appl. Phys. Lett. 83, 3000 (2003).



FIG. 2. Experimental setup used for the THz generation by femtosecond laser pulses with tilted pulse fronts.

FIG. 1. Schematic illustration of the THz generation by tightly focused (a) and front tilted (b) femtosecond laser pulses propagating in an electrooptical crystal. Black ellipses and gray areas depict laser and generated THz pulses, respectively, at three different instants of time $(t_1 \le t_2 \le t_3)$.

 High power single cycle THz generation using tilted femtosecond light sources

J. Hebling and J. Kuhl et al., Appl. Phys. B 78, 593-599 (2004).



* for CdTe at 886 nm, for all the other materials at 800 nm

TABLE 1 Properties of a few materials suitable for optical rectification

 High power single cycle THz generation using tilted femtosecond light sources : Recent status

A. G. Stepanov and J. Heebling et al., Optics Express 13 5762 (2005).



Fig. 1. Measured energy of THz pulses generated by the tilted pulse front (red circles) and line focusing (open blue squares) set-ups versus the energy of the 780 nm pump laser pulses (upper left part). Energy conversion efficiency versus the pump energy for the tilted pulse front set-up (lower right part).

 P_{THz} = 100 nJ/pulse, 10 nJ/cm², 10 MW/ cm², $|E_{THz}|$ \sim 30kV/cm=3MV/m

「赤外光励起による半導体中の不純物拡散の制御」

白井光雲 大阪大学産業科学研究所ナノテクセンター

Control of impurity diffusion by IR excitation

Koun Shirai, Osaka University, ISIR, Nanotechnology Center

Control of impurity diffusion is an important element in the device technologies of the present days. Usual thermal processes have an inherent disadvantage that not only the intended species but also all impurities involved are equally affected. This imposes many restrictions on the device process. In order to remove such restrictions, it is desirable to diffuse the specific species only. One of such attempts is use of infrared (IR) excitation [1]. The idea is that every impurity has its own local vibrations in the host crystal. The frequency is dependent of impurity species. Irradiation of IR laser with the resonant frequency could cause excitation of the local impurity modes, which results in the selective enhancement of the diffusion of that impurity. Unfortunately, there is a well-known and big problem for this aim, that is, there is no suitable IR laser source. In hoping that this technical problem will be solved in near future, we have performed first-principles (FP) molecular dynamics (MD) simulations.

The missions of the theoretical study are to confirm this effect by simulations, and, if effective, to derive the conditions where this effect appears. This makes it possible to design the laser experiment, if appropriate light sources are available. The phenomena which are encompassed in this simulation are indeed in a wide range, from identification of impurity modes, IR resonance effects, finally to diffusion phenomena. Therefore, this kind of simulation itself is a challenge for the MD simulation based on the density-functional theoretic method [2-3]. We observe that IR excitation is effective for O and B impurities, while is ineffective for P. In case of P, the impurity mode is buried in the host phonon band, so that resonance effect is not appreciable.

Based on the present simulations, we are able to design the IR excitation experiment in order to observe an appropriate effect on atom migrations. The needed power of IR laser depends on the lifetime of the local mode under investigation. The lifetime of phonons is basically predictable by *ab initio* calculations [5, 6]. For those modes of sufficient long lifetime, a design of a real experiment is given in this study. Based on these FP-MD simulations, we have drawn the first draft of experiment in SPring-8 facility.

References: [1] H. Yamada-Kaneta and K. Tanahashi, Physica B 376-377, 66 (2006). [2] K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, *Proc. 4th Int. Symp. on Advanced Sci. and Tech. of Silicon Materials*, 2004, Hawaii, p129. [3] K. Shirai, *et al.*, J. Phys.: Condensed Matters, *in press.* [4] K. Shirai, et al., Physica B 376-377, 41 (2006). [5] K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, Phys. Soc. Jpn. 67, 3801 (1998).

09 Jul 2007

ERL meeting



赤外光励起による半導体中 の不純物拡散の制御

Control of diffusion in seiconductors by IR excitation –

白井光雲 大阪大学、産業科学研究所 産業科学ナノテクセンター

Koun Shirai Nanoscience and Nanotechnology Center ISIR, Osaka University

Outline

1 バックグラウンド

・産業応用からの

・エネルギー緩和機構からの

2 赤外光励起による不純物拡散の試み

3 選択的拡散を目指したレーザー設計



文部科学省、独創的革新技術開発研究、「赤外レーザ照射による半導体中 不純物の選択的低温拡散技術の研究」代表、金田寛(富士通)より


特定の不純物の熱振動のみ加熱



レーザに共鳴する不純物のみ拡散

●不純物種を選択できる ●低温で拡散できる ●拡散を急停止できる

Laser-frequency dependence of ¹⁸O diffusion enhancement

H. Kaneta (Fujitsu Ltd.)



赤外光励起のメリット

•電子励起を引きおこさないことが必要な応用に取って重要

副作用がない

原子移動、拡散、、、

ラマン過程より直接的

•特定の原子種の選択性

不純物振動モードがうまく選択できると、その原子種のみを 変化

電子緩和に比べて原子緩和が遅い

6

merit



Story of the ghost peak



W. Richter and K. Ploog, Phys. Status Solidi B **68** (1975) 201.

unusual properties

•
$$\Delta \omega < 1 \text{ cm}^{-1}$$

- librational mode
 why so high ω ?
- no pressure dependence no anharmonicity ?

Phonon decay rate



phonon linewidth



calculation of $\Delta \omega$

	j	Δω/ω	ρ ₂	γ	ωι/ω0	В	ch.
A _{1g}	36	1.7	1.1	0.142	0.22	1.21	11+11(40)
	33	1.2	0.56	0.199	0.21	1.7	29+2 (8)
	20	0.60	0.26	0.103	0.22	1.51	7+2 (16)
	17	0.90	0.22	0.271	0.22	1.52	8+2 (30)
Eg	35	1.2	1.04	0.106	0.22	1.25	12+9 (9)
	30	0.89	0.38	0.199	0.21	1.41	+3 (16)
	23	0.86	0.27	0.231	0.22	1.45	6+6 (14)
	19	0.85	0.25	0.186	0.22	1.43	8+1 (27)
	11	0.62	0.36	0.078	1.19	0.25	20-1 (10)
	6	0.10	0.58	0.008	1.90	0.18	33-6 (9)

K. Shirai, H. K.-Yoshida, J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1998) 3801



赤外光励起による半導体中の 不純物拡散の制御

最大の問題点 一 光源が限られる

計算機シミュレーションの必要性









 $\Delta \omega = 17.05 \text{ cm}^{-1}$

Resonance effect on O mode



Resonance effect on B mode





Power consideration





$$au_{ ext{phonon}} < au_{ ext{pulse}} < au_{ ext{decay}}$$

酸素拡散

 $D = D_0 \exp(-Q/kT)$

 $D[cm^2/s] = 0.194 exp(-2.54[eV]/kT)$

T. Y. Tan and U. Gösele, Appl. Phys. A37 1 (1985)

				T [eV]	D [cm ² /s]	τ [S]	L _D [<i>µ</i> m]
T [K]	[eV]	D [cm²/s]		0 137	3 0 x 10 ⁻¹⁴	1	0.3
1000	0.086	3.0 x 10 ⁻¹⁴		0.107	0.0 X 10 -	• 	
1600	0 127	1 0 x 10-9	0.172			10 ⁻¹	0.1
1000	0.137	1.9 X 10 *			7.6 x 10 ⁻⁸	1	2.7
2000	0.172	7.6 x 10 ⁻⁸			-	10 ⁻²	0.27
2500	0.215	1.4 x 10 ⁻⁶	1.4 x 10 ⁻⁶			10	0.27
			0.215		1.4 x 10 ⁻⁶	1	11.8
3000	0.258	1.0 x 10 ⁻⁵				10 ⁻³	0.3

原子あたり

$$P_{\text{atom}} = \frac{\Delta E}{\tau}$$
 $\begin{bmatrix} \begin{subarray}{c} & \end{subarray} & \end{subarray$

 $P_{\text{atom}} = 3 \times 10^{-9} [\text{W/atom}]$

不純物濃度
$$n_i = 1 \ge 10^{18} [/cm^3]$$
 $P_{abs} = n_i \ge P_{atom} = 3 \ge 10^9 [W/cm^3]$
吸収係数 $\alpha = 1 \ge 10^4 [cm^{-1}]$ $I_{in} = P_{abs}/\alpha = 3 \ge 10^5 [W/cm^2]$

$$P_{pulse} = 3x10^5 \text{ W/cm}^2$$

SPring-8 BL43IR



$$\tau_{pulse} = 40 \text{ ps}$$

$$T = 25 \text{ ns}$$



FEL





放射光を利用した実験

SPring-8利用者懇談会研究会 「赤外光励起による新物質プロセッシング」

	require-	BL43IR	FEL
	ment	(SPring-8)	(ISIR)
l _{pulse} [kW/cm²]	300	25	100
<i>t</i> _d [s]	0.001	1	3600

Estimation of electric field

$$f_{AC} = 1 \times 10^{-2} (\text{Ry/Bohr})$$

atomic units
$$Q^* = 1$$
$$E = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \frac{e}{a_0^2} = 5.1 \times 10^9 (\text{V/cm})$$
$$I = \frac{1}{2}\varepsilon_0 cE^2 = 3.51 \times 10^{16} (\text{W/cm}^2)$$
$$I = 3.51 \times 10^{12} (\text{W/cm}^2)$$

	パルス幅	周波数	ピークパワ (MW)	パワー密度 (MW/cm ²)	積算照射時間
日本大学					
マクロパルス	10 µ	12.5			
マイクロパルス	0.23 p	2.856 G	6		
波長 µm	0.87	6			
東京理科大学					
マクロパルス	1μ	10			
マイクロパルス	2 p	2.856 G	4-12.5		
波長µm	4	16			
大阪大学工学研究科	Inst. FEL				
マクロパルス	20 µ	10			
マイクロパルス	10 p	2.856 G	5		
波長µm	5	22			
大阪大学産研					
マクロパルス	1.8 µ	60			
マイクロパルス	20-30 p	1.1 G	1	0.1	1
波長µm	10	100			

京大炉ライナック及び JAEA-ERL における テラヘルツ・コヒーレント放射光の研究

高橋俊晴 (京都大学原子炉実験所)

Experimental researches of THz coherent radiation at KURRI-LINAC and JAEA-ERL

Toshiharu Takahashi Research Reactor Institute, Kyoto University

<Synopsis>

In the L-band electron linear accelerator at Research Reactor Institute in Kyoto University (KURRI-LINAC), the property of several types of coherent radiation (synchrotron radiation, transition radiation, Cherenkov radiation, diffraction radiation, and Smith-Purcell radiation, and pre-bunched FEL) in the millimeter and sub-millimeter wave regions, i.e. the sub-THz region, have been experimentally investigated since 1991. The beamline for the millimeter wave spectroscopy has been constructed, in which coherent transition radiation (CTR) has been used as a light source, and the spectroscopic research for gas and solid materials have been demonstrated. The spectrum of coherent radiation from successive bunches has been constituted of the higher harmonics of L-band RF (1.3 GHz) due to the interference between wave packets. Single-bunch operation enables us to perform the high-resolution measurement and to remove the restriction of the delay time in the time-resolved spectroscopy. The spectrum of CSR has been also measured in the energy recovery linac at the Japan Atomic Energy Agency (JAEA-ERL) in the wavenumber range from 0.5 to 15cm^{-1} . The detected power through the acceptance angle of 37 mrad was $2 \times 10^{-4} \text{ W/cm}^{-1}$ at 2.5 cm^{-1} for the average beam current of $17.7 \,\mu\text{A}$.

<本文>

本講演では、発表者がこれまで行ってきたコヒーレント放射の測定例[1]を、測定方法に関 する注意点や問題点を含めて発表するとともに、国内唯一の ERL である原子力機構(JAEA) の ERL における測定結果についても言及する。京大原子炉電子ライナックでは、1991 年より、 短バンチ電子ビームからのコヒーレントな放射の実験的な研究を行っている。これまでに、 コヒーレントなシンクロトロン放射、遷移放射、チェレンコフ放射、回折放射、スミス・パ ーセル放射の観測を通して、これらの基礎的性質を解明したほか、コヒーレントな放射を種 としたプリバンチ FEL や、フォトニック結晶と電子ビームの相互作用により放射されるコヒ

ーレント放射の性質を調べてきた。ライナックはシングルユーザーのマシンであるため、コ ヒーレント放射の実験に割り当てられるマシンタイムは年間 10 週程度に限られてしまうが、 実験孔の一本をコヒーレント放射専用のビームラインとして使っており、ライナック運転中 でも常時滞在できる実験室まで光を導き、そこに専用の分光装置を常設している。波長はミ リ波・サブミリ波領域(サブテラヘルツ領域)であるが、電波としてではなく、遠赤外分光 の延長として光学的な分光装置、分散型回折格子分光器及び Martin-Puplett 型フーリエ干渉分 光計を使用している。通常の吸収反射測定には液体ヘリウム冷却の Si ボロメータ、InSb ホッ トエレクトロンボロメータを検出器として用いており、特に高速のパルス波形を見たい場合 には、室温動作のミリ波ダイオード検波器(ビデオ帯域幅1 GHz)を用いている。加速周波 数が 1.3 GHz のため光は 770 ps 間隔のパルス列であり、干渉計のインターフェログラムには パルス間隔おきに相互相関図形が現れる。これは各パルス間に可干渉性がある、つまりコヒ ーレント放射がパルス間隔以上のコヒーレンスの長さを持っていることを示している。しか しそのために、パルス列からのコヒーレント放射を高分解能で測定すると 1.3 GHz の高調波 から成る線スペクトルとして観測されてしまうため、アバランシェトランジスタを使った高 速パルサーを入射器に導入してシングルバンチの生成を実現した。これにより高分解能の測 定が可能になると共に、時間分解分光における遅延時間の制限も取り去ることが可能となっ た。現在は大阪府立大、東北学院大のグループも共同利用研究として分光実験を行っている。

JAEA-ERL では、原子力機構 FEL グループ及び大阪府立大と共同で、フーリエ干渉分光計 と Si ボロメータを用いてコヒーレント放射光を観測した結果、0.5~15 cm⁻¹の範囲でスペク トルを得て、縦横 37 mrad の受光角で受けた 2.5 cm⁻¹付近での放射強度は 1.6×10⁻⁵ W/1%b.w. (6.4×10⁻⁴ W/cm⁻¹)であった。運転パラメータは、エネルギー17 MeV、バンチ繰返し 20.8 MHz、 マクロパルス幅 230 μs、マクロパルス繰返し 10 Hz であり、平均ビーム電流は 17.7 μA であっ た。これは実験当時のマシンの状況から安定に運転できる条件であったために、この程度の 電流値に留まったが、それでも受光角を制限しないと検出器が飽和するほどの大きな放射強 度であった。

KURRI-LINAC は L バンドの RF を使うため、比較的大きな電荷量(2~3 nC)を 1 バンチに詰め込むことができるので、コヒーレント放射のピーク強度が大きく、パルス光源として使う場合に有効である。一方、ERL の場合はそのメカニズムから、繰返しを上げデューティーサイクルを大きくすることができ、平均パワーの非常に大きな光源となる。

[1]例えば日本語の解説記事として、高橋俊晴、日本加速器学会誌「加速器」2(1), 11-19(2005).



京大炉ライナック及びJAEA-ERLにおける テラヘルツ・コヒーレント放射光の研究

京都大学原子炉実験所

高橋俊晴

講演の概要

コヒーレント放射光の初観測から18年。 現在どのような状況にあるのか。

 コヒーレント放射光の概略
 線型加速器(京大炉ライナック) 分光装置、光の性質、利用実験
 ERL(原子力機構ERL) スペクトル、放射強度

コヒーレント放射光の概略

コヒーレント放射光とは

・短バンチ ・バンチ内密度変調



コヒーレント放射光で何ができるか?

加速器屋から見れば・・・・。高分解能のビーム診断ツール

放射スペクトルがバンチ形状に敏感 ・・・・高分解能バンチ形状モニター バンチ間の可干渉性・・・・高精度バンチ間隔モニター



コヒーレント放射光で何ができるか?

分光屋から見れば・・・ 強力なテラヘルツ光源

光と電波の境界 = 未開拓の領域

テラヘルツTDSシステムの出現で活発化

ビームとの相互作用を利用できる

線型加速器でのCSR

利点

高強度のためダイナミックレンジが4~5桁とれる

吸収の大きな物質も測定可能 近接場分光が可能(波長サイズ以下の局所構造観察)

励起光として利用できる

微小エネルギーギャップを多重励起することによる物性変化 (FELでは単ーモードの励起)

線型加速器(京大炉ライナック)における研究

昭和39年(1964年)設置 全国共同利用装置 年間運転時間:約2,500時間

最大エネルギー:46MeV 最高出力:6kW 200µA@30MeV (公称10kW)

小型ライナックとしては最大級

Lバンド(1.3GHz)のマイクロ波で加速

国内では2台のみ(阪大産研ライナック)

<mark>線型加速器</mark>でのコヒーレント放射光

CSRの初観測が線型加速器だった理由



難しい技術は不要



シンクロトロン「放射光」だけではない (遷移放射、チェレンコフ放射・・・・) 打ちっぱなしなので 電子線と物質との相互作用を利用

様々なタイプのコヒーレントな放射の基礎的性質を 実験的に解明

コヒーレントな諸放射

<u>シンクロトロン放射(放射光)</u>

Y.Shibata, et al., NIM A **301** (1991) 161-166 K.Ishi, et al., Phys. Rev. A **43** (1991) 5597-5604 U.Happek, et al., Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 2962 R.Kato, et al., Phys. Rev. E **57** (1998) 3454-3460 **遷移放射**

Y.Shibata, et al., Phys. Rev. A 44 (1991) R3449-R3451
E.B.Blum, et al., NIM A 307 (1991) 568
T.Takahashi, et al., Phys. Rev. E 48 (1993) 4674-4677
Y.Shibata, et al., Phys. Rev. E 49 (1994) 785-793

<u>回折放射</u>

Y.Shibata, et al., Phys. Rev. E **52** (1995) 6787-6794

<u>スミス・パーセル放射</u>

K.Ishi, et al., Phys. Rev. E **51** (1995) R5212-R5215 Y.Shibata, et al., Phys. Rev. E **57** (1998) 1061-1074 <u>チェレンコフ放射</u>

J.Ohkuma, et al., Phys. Rev. Lett (1991) 1967 T.Takahashi, et al., Phys. Rev. E **50** (1994) 4041-4050 T.Takahashi, et al., Phys. Rev. E **62** (2000) 8606-8611



京大炉ライナックのビームライン(遷移放射CTRを光源とする場合)



分光・検出装置 光学的な装置~遠赤外分光の延長

分光器〈	✓ Martin-Puplett型✓ フーリエ変換干渉分光	·一度(計	 一度に広帯域のスペクトルが欲しい場合 			
	回折格子型分光器	・単色光を ・ダイナミ 求める ^は	を取り出す場合 ックレンジが大きく縦軸の精度を 場合			
検出器	液体ヘリウム冷却Siボロ (付属のプリアンプは通常 液体ヘリウム冷却InSbz	コメータ バイパス) ドロメータ	高感度・低ノイズ・VBW1kHz 高感度・低ノイズ・VBW1MHz			
信号増幅 { ロックインアンプ ボックスカー積分器 パルス繰返し数が少なくduty比が小さ 場合(特にInSb使用時)						
真空窓	結晶水晶、ポリエチレン、 (ウェッジ加工)	カプトン	平行平板:窓材の厚さに注意 波長と同程度だと干渉が乗る			

分光装置の写真



フーリエ干渉計

回折格子型分光器 (干渉計使用時は回折格子を鏡に置き換え)




放射強度変動モニターの有効性

もし放射強度が不安定でも・・・



電子ビームの時間構造 すなわち コヒーレント放射の時間構造



コヒーレント放射の時間構造 (ミリ波ダイオード検波器) W-band Tek File Edit Vertical Horiz/Acq Trig Display Cursors Measure Mask Math MyScope Analyze Utilities Help T 75-110GHz マクロパルス幅47ns والمارية أحوافك ويعاودون والمطور بالإردارية diamagn lage bags File Edit Vertical Horiz/Acq Trig Display Cursors Measure Mask Math MyScope Analyze Utilities Help 🔽 Tek 拡大 61) 50.0mV/div 50Ω C1 Ampl 216.0mV ? 61 770ps (1.3GHz) C1 Rise 225.7ps Horz D C1 Pos Wid 643.4ps 2 ci Fall 67.68ps 7 C1 50.0mV/div 50Ω 400ps 25.0G3/s IT 200fs/pt 1 2.38ns 12 3.148ns Horz Dly: 3.04ns Single Seq Δt 768.0ps 1 acqs RL:20.0k 1月5日,2007 1.302GHz 18:27 198.3mV

👝 Ampi

Rise Pos Wid 638.5ps Fall

?

222.4ps

63.75ps

干渉計による大きな光路差のインターフェログラム



バンチ列からの放射





シングルバンチを安定化するためのトリガー・RF同期回路の製作 H18KEK大学等連携支援事業





干渉分光計 Siボロメータ 受光角70mrad

N₂Oガスの吸収スペクトル(回転準位)



21

京大炉で実施済・進行中の分光研究 (全国共同利用)

・大強度を利用したもの

・NaCl中不純物トンネル励起の直接観測 ・超イオン導電体のミリ波吸収・反射スペクトル ・水ーアルコール混合系の吸収スペクトル

・高分子材料への放射線照射による吸収スペクトル

・高いピーク強度、パルス性を利用したもの

小型パルス強磁場発生装置を用いた強磁場光スペクトル

・電子線と物質の相互作用を利用したもの

・フォトニック結晶からのSmith-Purcell放射 ・ミリ波パルスラジオリシス

・より高輝度の光源開発

Pre-bunched FEL

・コヒーレント放射光を種とする ・広帯域で増幅

ERLにおけるコヒーレント放射光

赤外放射光源の特長の比較

	蓄積リング	ライナック	ERL
バンチ長	長	短	極短
	100ps	1ps	0.4ps
繰り返し	大	小	大
周波数	500MHz	10Hz	37MHz
平均電流	大	/]\	大
	100mA	10 µ A	5mA
利用できる	IRSR (近赤外	CSR (サブミリ波・	IRSR+CSR (近
波長領域	~遠赤外)	ミリ波)	赤外~ミリ波)



JAEA-ERLでの実験配置



JAEA-ERLで観測された CSRスペクトル



THz付近の放射光源の比較





タルボ型干渉計を用いたイメージング

百生 敦、東京大学大学院新領域創成科学研究科

Imaging by Talbot Interferometer

Atsushi Momose, Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo

<Synopsis>

An X-ray Talbot interferometer, which consists of two transmission gratings, has been attracting attention as a novel and simple phase imaging device. When the spatial coherence length is larger than the pitch of the gratings, a moiré-fringe pattern is generated, from which the structural information of a phase object located in front of the gratings is derived. An image mapping the differential phase is obtained by using the technology of digital phase measurement, such as the fringe-scanning method, allowing three-dimensional image reconstruction (phase tomography).

Because the X-ray Talbot interferometer functions with a cone beam of a broach energy band width, an imaging optics with a high throughput can be constructed. This enables the combination with various X-ray sources, and provides wide opportunities of phase-imaging applications. Since a Compton scattering X-ray source emits a cone beam with a band compatible with Talbot interferometry, almost 100% X-rays are available for phase imaging, allowing the construction of an ideal system.

<本文>

透過型 X 線格子を 2 枚用いる X 線 Talbot 干渉計[1-3]は、簡便な新しい X 線位相イメージン グに利用できるとして最近注目されるようになっている。被写体とする位相物体の背後に位 相格子を置き、格子のピッチと X 線波長で決まるある特定距離だけ下流に吸収格子を置く。 X 線の空間的可干渉距離が格子のピッチより長ければ、吸収格子背後にはモアレ縞画像が観 察される。位相物体における X 線の屈折を反映するモアレ縞の変形から、位相物体の構造を 検知することができる。縞走査法などのデジタル位相計測技術を使い、屈折によって X 線が 曲げられる角度分布(すなわち位相シフトの微分像)を取得することができる。位相物体を 回転させてこの計測を繰り返して得るデータから、位相物体の屈折率分布を示す三次元画像 を再構成することも可能である(位相 CT)。

X線 Talbot 干渉計は、エネルギーバンド幅の広いコーンビームで機能するので、スループ ットの高い撮像光学系が構築できる。したがって、シンクロトロン放射光源以外の様々なタ イプのX線源とも組み合わせが可能であり、広い場面でX線位相イメージングの利用が展開 できるものと期待できる。レーザー逆コンプトン散乱X線は、X線タルボ干渉計にとって適 度なエネルギーバンド幅を持つコーンビームであるので、ほぼ全ての発生 X 線がタルボ干渉 計で使用できる。すなわち、理想的な位相イメージングシステムが構築できるものと期待で きる。

最近、X線 Talbot-Lau 干渉計による位相イメージングが報告されている[4]。これは、空間 的可干渉性に乏しい、すなわち光源サイズの大きいX線源を用いても位相イメージングを可 能とする方式である。X線 Talbot 干渉計の構成に加えて、その上流にマルチスリットを配置 するものである。各々のスリットは Talbot 干渉計に要求される空間的干渉性を満たすように 狭くしておく。各スリットからのX線はそれぞれモアレ縞を生成するが、隣り合うスリット からのX線が作るモアレ画像がちょうど一周期ずれて重なるようにスリット間隔を設計して おけば、モアレ縞が消滅することはない。こうすることにより、空間分解能は一定量低下す るが、発光点サイズの大きいX線源でも位相イメージングが可能となる。マルチスリットは コヒーレンスフィルター機能を果す。

このように、X線 Talbot 干渉計による位相イメージングは柔軟性に富み、レーザー逆コンプトン散乱 X線との組み合わせは大いに期待できる。

- [1] A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 42, L866 (2003).
- [2] T. Weitkamp et al., Appl. Phys. Lett. 86, 054101 (2005).
- [3] A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 45, 5254 (2006).
- [4] F. Pfeiffer et al., Nat. Phys. 2, 258-261 (2006).

ERL研究会「コンパクトERLが拓く世界」



東京大学大学院新領域創成科学研究科 百生 敦

タルボ効果とタルボ干渉計

- 1836 タルボ効果 (W. H. F. Talbot)
- 1971 タルボ干渉計 (S. Yokozeki and T. Suzuki) (A. W. Lohmann and D. E. Silva)



- 1997 硬X線タルボ効果 (P. Cloetens et al.)
- 2003 硬X線タルボ干渉計 (A. Momose *et al.*)
- 2006 硬X線タルボ・ロー干渉計 (F. Pfeiffer *et al.*)







縞走査法による位相微分の定量計測

$$I_k(x, y, z) = A + \sum_{n \ge 1} B_n \cos \left[2\pi \frac{n}{d} \left(y\theta + z \frac{\lambda}{2\pi} \frac{\partial \Phi}{\partial x} + \frac{kd}{M} \right) \right]$$

回折格子の相対的位置ずれ: kd/M (M: integer)

$$\frac{\partial \Phi}{\partial x} \cong \frac{d}{\lambda z} \arg \left[\sum_{k=1}^{M} I_k(x, y, z) \exp \left(-2\pi i \frac{k}{M} \right) \right]$$







A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 42, L866 (2003).

吸収格子製作上の要請





SPring-8, BL20XU @12.4 keV





A. Momose et al., SPEI Proc. 5535, 352 (2004).

ウサギ肝臓 (VX2)

SPring-8, BL20XU @12.4 keV



A. Momose et al., Jpn. J. Appl. Phys. 45, 5254 (2006).





手羽



KEK-PF, BL-14C1 @27.6 keV

X線タルボ干渉計の利点

- ◆ コーンビームが使用可能
- ◆ 準単色X線 (△E/E < 0.1) が使用可能</p>
- ◆ 大きい回折格子が製作できれば、大視野化が可能
- ◆ 位相トモグラフィによる三次元観察が可能



コンパクトなX線源との組合せ

マイクロフォーカスX線源による位相イメージング

浜松ホトニクス、L9181S



タ−ゲット : W 120 μA/50 kV 焦点サイズ:5 μm







空間的干渉性の要請

X線タルボ干渉計 可干渉距離>格子ピッチ

X線タルボ・ロー干渉計 任意のX線源で機能する



レーザーコンプトン線源からの微小光源による X線イメージングの原理と応用

兵藤 一行

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設

X--ray imaging using laser-Compton X-ray source

Kazuyuki Hyodo (PF, KEK)

<Synopsis>

The research field of X-ray imaging using synchrotron radiation monochromatic X-rays at the PF has greatly advanced in recent five years. Especially, X-ray phase-contrast imaging methods, such as X-ray phase-contrast CT using an X-ray interferometer, X-ray diffraction enhanced imaging (DEI), X-ray dark field imaging (DFI), X-ray coherent diffraction microscopy, etc., were remarkably developed. On the other hand, if one considers the daily clinical use of monochromatic X-rays in a hospital, it is need to prepare a small compact source for monochromatic X-rays. A laser-Compton scattering source, which can generate the hard X-rays with high spatial coherence from 10 to 50 keV at narrow bandwidths, has the potential of improving the quality of images used in medical diagnostics by an edge effect due to phase contrast while potentially reducing the radiation dose to patients. The principle and some applications of this imaging method are presented.

レーザーコンプトン線源を X 線イメージングに用いる場合には、数十µm 程度の大きさの 微小焦点と準単色光により高空間分解能、高濃度分解能のイメージングが可能になると期待 され、多くのイメージングシステムの開発研究が行われている(1)。光学素子を必要としない こと、エネルギー可変であることも、イメージングに関して、特に医学イメージングに関し て大変優れた特長になると期待される。

微小焦点であることおよび発光点から被写体までの距離を大きく設定できることから、例 えば病院での通常のX線撮影装置に比較して半陰影による幾何学的画像のボケが大変小さく なり、被写体と検出器の距離を最適化することで、いわゆる屈折効果によるイメージングも 可能となる。将来的には、病院設置型小型装置の開発にも結びつけられると期待される。

我々は、現在まで放射光を用いて研究を進めてきた被写体の吸収効果によるイメージング 法(2,4,7,9)や屈折効果によるイメージング法(2,3,5,6,8)などから得られた知見をもとに、 ERL 実証機からのレーザーコンプトン X 線を用いたイメージング法の開発・評価を行うこと を計画している。超伝導キャビテイーを電子ビーム加速に用いた ERL 実証機では、単位時間 あたりの平均 X 線光子数を大きくすることができ、実用的なイメージング法の開発・評価が 可能になると期待される。

参考文献

- (1) 例えば、Proc. of the 3rd Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 31st Linear Accelerator Meeting in Japan, Proc. of SPIE annual meeting など。
- (2) K. Hyodo, et. al., Radiation 28(2002)269.
- (3) T. Takeda, et. al., SPIE Proc. 5535(2004)380.
- (4) S. Matsushita, et. al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A 548(2005)94.
- (5) D. Shimao, et. al., JJAP 44(2005)450.
- (6) M. Ando, et. al., Bioimages 13(2005)1.
- (7) S. Ohtsuka, et. al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A 548(2005)73.
- (8) A. Maksimenko, et. al., Appl. Phys. Lett. 86(2005)124105.
- (9) S. Akishima, et. al., Circulation Journal 71(2007)418.

2007年7月9-10日 KEK-PF

レーザーコンプトン線源からの 微小光源による X線イメージングの原理と応用 (イントロダクション)



高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設 (PF)


不可視情報の可視化





白色X線:単純撮影、CT **単色X線:放射光** 超音波 磁気共鳴現象:MRI 赤外線 RI: PET、SPECT

LCX-ray 準単色X線 装置の小型可 *医学応用 臨床応用 産業応用*

放射光単色X線を用いた撮影方法



X線の吸収を利用した画像診断 被写体 微小血管造影 蛍光体と



単色X線

amana

カメラ

冠動脈の攣縮 (筑波大学提供)

X線エネルギー	33.3 keV
照射面積	$25 \text{ mm}(\text{V}) \times 30 \text{ mm}(\text{H})$
空間分解能	28 <i>µ</i> m
照射時間	100 msec/image
撮像系	CCD-TV





腫瘍血管系 (東海大学提供)

X線エネルギー 33.3 keV 照射面積 空間分解能 照射時間 撮像系

 $25 \text{ mm}(V) \times 30 \text{ mm}(H)$ $25\,\mu$ m 33 msec/image HARP-TV



レーザーコンプトンX線(LCX-ray)の特性

発光点の大きさ(焦点サイズ):50 μ m 光子密度(40 keV):1.3×10⁶ photons/mm²/sec 照射面積:直径 100 mm 程度

小焦点、大きな照射面積、準単色×線、エネルギー可変 光学素子は使用しなくても良い 屈折効果の方向性がない 吸収効果+屈折効果による画像(照射×線の有効利用) 通常の×線発生装置に比較して、高空間分解能、高濃度分解能 装置を小型化できる可能性がある









E≧検出器空間分解能:R2の決定

S.W.Wilkins, et al., Nature 384(1996)335.

7

微小焦点によるイメージングⅡ







C. Honda,et al. コニカミ/ルタHPより

微小焦点によるイメージング Ⅲ



Fig.8 Radiographs of an extracted lung-specimen obtained with (a) a contact radiography and (b) a phase-contrast imaging. (The image size of the phase-contrast imaging was reduced to be equivalent with that of contact imaging for convenience in comparison.)



放射光によるファントーム撮影の例



Fig.7 Radiographs of an air-cap obtained with (a) a contact radiography and (b) a phase-contrast imaging. (The image size of the phase-contrast imaging was reduced to be equivalent with that of contact imaging for convenience in comparison.)

全方向に境界領域の画像強調が見られる。 焦点サイズ: 100 µ m、R1: 1m、R2: 0.5m Moターゲット

LCX-rayによるイメージングの可能性

臨床応用の可能性(高齢化社会への対応、スクリーニング検査への適応) 1.乳がんの診断(石灰化、乳腺異常部位の描出)、肺がんの診断

- 2. 骨、関節系疾患の診断
- 3. 抹消血管系の形態・機能の診断、血管内蓄積物質の診断
- 4. 薬の宅配便(標的組織)

基礎医学、生理学、動物学、薬学、、、、、

5. 小動物に対する診断(疾患の機序の解明、創薬、ペットの診断)

産業応用の可能性

1. 製品検査、荷物検査、、、

課題

各種診断に最適なパラメータの検討

得られる画像の医学的・臨床的評価 🖙 付加価値はあるか?

検出器

時分割イメージングの可能性

ERL 研究会「コンパクト ERL が拓く世界」

医学イメージングへの応用

酒井 俊

筑波大学大学院人間総合科学研究科循環病態制御医学

Implication of compact ERL to the medical imaging

Satoshi Sakai, MD, PhD

Cardiovascular Division, Medical Science for Control of Pathological Processes, Graduate School of Comprehensive Human Sciences, University of Tsukuba

<Synopsis>

The importance of medical imaging is well known for the diagnosis and therapy of patients. We physicians can say that the understanding and our therapeutic level of disease depends on the good imaging. Many imaging devices have been developed, such as angiography, nuclear imaging, computed tomography (CT) and magnetic resonance imaging (MRI). Compact ERL will be added in near future, because ERL has a lot of beneficial features, such as high resolution and low exposure; especially, it is hopeful for the application to diseases of soft tissue, bones and cartilages. From a viewpoint of medical fields, compact ERL should has following features for the medical implication: 1) clear imaging rather than CT and MRI imaging; 2) availability of 3D imaging; 3) low X-ray exposure; and 4) low cost and simplicity to handle.

<本文>

患者にとっての疾患診断と治療に対する医学イメージングの重要性は論を待たない。われわれ医療従事者にとっては、疾患の理解および病気の治療レベルは医学イメージングに依存するといっても過言ではない。これまでに、血管撮影・核医学イメージング・CT・MRIといった多くの画像診断装置が開発されてきた。それにコンパクトERLが近い将来加わるであろう。というのも、この方法は高解像度かつ低被爆といった優れた特徴を有しており、とりわけ軟部組織や骨・軟骨における疾患において期待が持てる。コンパクトERLが現場の医療に応用されるには次の特徴を有することが求められる。1)CT および MRI 画像より鮮明な画像を有すること、2)3 次元画像を構成できること、3)X 線被爆が少ないこと、4)低コストかつ簡便に操作できること。以上の点が解決されれば、現在のイメージング機器に代わって用いられていくものと思われる。

医学イメージングへの応用

筑波大学人間総合科学研究科 酒井 俊

我が国の主要死因別にみた死亡率



医学分野の画像診断

- 諸臓器の性状診断
 - 悪性腫瘍・炎症・形態異常
- 心血管系の描出
 - 動脈硬化・プラークの描出
- 骨・軟部組織の描出
 - 骨折・骨および軟骨の形態変化

心血管系

全身の動脈系



心臓の解剖



動脈硬化







冠動脈CT



放射光を利用した経静脈冠動脈造影





PF-AR NE1 (MPW beamline)

撮影結果の一例(筑波大学提供) 右冠動脈が明瞭に識別できる。

動脈硬化のプラーク



動脈硬化の性状診断







放射光を利用した微小血管系の評価



ラットの心血管系の撮影結果(筑波大学提供)

X線エネルギー	33.3 keV
照射面積	$25 \text{ mm}(V) \times 30 \text{ mm}(H)$
空間分解能	28µm
照射時間	100 msec/image
撮像系	CCD-TV

骨・軟骨部の関節

骨・軟骨・関節部



X線の屈折を利用した画像診断 IV



(a)X線吸収像

(b)暗視野像

軟骨、靭帯が識別できる。



暗視野撮影法によるシステム

PF独自の新しいイメージング法の可能性

2次元画像の実時間撮影(2次元動画像) 照射X線の有効利用

D. Shimao, et al., JJAP42(2003)58749

軟部組織

特に、乳腺疾患

微小魚点によるイメージング







C. Honda,et al. コニカミノルタHPより 18

健診分野への応用

健康診断における胸部X線



臨床側から期待する新規のイメージング

- CT, MRIより鮮明な画像
- 3D画像を構成できること
- X線被爆が少ない
- 低コストかつ簡便
- 機能的診断・質的診断もイメージング できることが望ましい。

産総研のレーザーコンプトン線源を用いたイメージング研究

 池浦広美¹、黒田隆之助¹、安本正人¹、豊川弘之¹、小池正記¹、 丸山耕一²、森浩一³、岡寛⁴
 ¹産業技術総合研究所、²秋田工業高等専門学校、
 ³茨城県立医療大学、⁴聖マリアンナ医科大学

<Synopsis>

A Laser-Compton Scattering X-ray source (LCS-X) is recently attracted to produce hard-x ray with sufficient brightness and superior compactbility. In National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), we are producing brighter and higher stabilizing LCS-X than the present status as well as doing basic research and application using LCS-X for the purpose of promoting medical and industrial use. The LCS-X has characteristics such as high-brightness, small size of light, and quasi-monochromatic beam. By further improvement of its compactbility and higher brightness, measurements conducted by large-synchrotron radiation facilities are expected to be possible using LCS-X operating at onsite hospital. One of our purposes for imaging research is application of tomosynthesis combined with reflection contrast imaging because it is difficult using an ordinary x-ray tube. Tomosynthesis allows us to obtain diagnostic tomographic images during a single breath-hold. Another research project of pulse imaging based on the advantage of short-pulse LCS-X is under developing.

近年、レーザーコンプトンX線(LCS-X)光源は小型で高輝度の硬X線源として注目されて いる[1]。産総研では、LCS-X光源の高輝度化、高安定化[2]と並行し、医療および産業利用推 進のための基礎研究を開始している。この光源は、高輝度・微小焦点・準単色性などの特徴 を持ち、さらなる装置の小型化・高輝度化を実現することによって、将来的には、大型放射 光を必要とする計測を病院などのオンサイトで行うことができるとして期待されている。産 総研では、LCS-X光源の利用研究のひとつとして、平成18年度から、茨城県立医療大学の森グ ループと協力し、医療診断を目指したX線イメージングの研究を行っている。この光源はサ イズを小さくすることができるため、試料中の境界における微小な密度差による屈折を検出 して画像化すること(屈折コントラストイメージング)が可能である。そのため、吸収がほ とんどない場合でも鮮鋭な画像が得られ、生体組織においては、特に組織と空気や骨との境 界を明確に可視化できる[3]。最近、X線管を用いた屈折コントラストマンモグラフィ装置や、 トモシンセシス法を用いたX線撮影装置の実用化研究が進んでいる[4,5]。産総研では、LCS-X 光源を用いて、従来のX線管では困難な、屈折コントラスト法でトモシンセシス撮影を行う ことを目標の一つとしている。これにより、1回の息止めのみで断層撮影が可能で、被曝量を 低減して立体画像情報を取得できるであろう。また、産業利用においても、半導体基板の検 査などに応用できると考えている。現状では、屈折コントラストイメージングの測定を始め たところで、多くは計画の段階に過ぎないが、その進捗状況について報告する。将来的には、 LCS-X光源のパルス特性を生かしたイメージング測定も行っていく予定である。

文 献

[1] 柳田達哉、中條晃伸、伊藤紳二、酒井文雄、応用物理、 74、482-486 (2005).

- [2] R. Kuroda et.al., Int. J. Mod. Phys. B 21, 488-496 (2007).
- [3] K. Mori et.al., J.Synchrotron Rad. 9, 143-147 (2002).
- [4] J.T. Dobbins , D.J. Godfrey, Phys. Med. Biol. 48, R65-R106 (2003).
- [5] D. Shimao, *et.al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L608-L610 (2007).



産総研のレーザーコンプトン線源を用いた イメージング研究

〇池浦広美、黒田隆之助、安本正人、豊川弘之、小池正記 産業技術総合研究所

丸山耕一 秋田工業高等専門学校 Advance

> 森浩一 一一一茨城県立医療大学

> > 岡寛 聖マリアンナ医科大学

> > > ERL研究会 2007.07.10

1



はじめに

- ・ 産総研LCS-X光源利用実験の概要
- PF BL14C光源との比較
- 解像度の光源形状依存性
- 医療用X線源との比較Stitute of
- ラット腰椎の屈折コントラストイメージング
- イメージング測定例chnology
- 今後の予定







Electron energy	20 ~ 40 MeV
Energy spread	0.2%
Bunch charge/bunch	0.8 nC
Bunch length (rms)	3 ps
Beam size (σ _x /σ _y)	40/30 μm

µm

Beam size (σ_x/σ_y)


LCS-X線装置の概要





LCS-X線の特長と利用

AISTの2	、ペック		利用	
エネルギー	10 ~ 40 keV	ニン エネルギー可変		
単色性	~ 5% (dE/E)	単単色 単単色	▶ 吸収端コントラスト	
フラックス(@165deg)	10^{7} (*10 ⁵) photons/s	高輝度	イメージング	
フラックス(@90deg)	10 ⁶ photons/s	nstitute of	動的現象(北亚海	
^{時間幅} Advar	150 fs ~ 3 ps		状態)の追跡	
取り出し角	15 mrad	──〉 広視野 ──	医療診断	
光源サイズ	40×40 μ m (σ) CO	微小光源 📃	屈折コントラスト	
繰り返し	10pps	ST		
安定性	~ 6% (15min)	偏光特性		

*実際に使用するフラックス



吸収端イメージング



6





$\begin{tabular}{ c c c c c c c c c c c c c c c c c c c$							
A	が習	画素数 画素サイズ	ダイナミッ クレンジ	分解能	解像度	- エネルギー 範囲	シンチレーター
PI-SCX: 1300-2.5 (PI)	65×65 mm	1340×1300 20×20 μ m	16bit 65536	60−80 µ m	<10 line pairs∕mm	8−17keV Be窓0.5mm	Gd₂O₂S:Tb ∼550nm
IP(FUJI) BAS- MS 2025	200×250 mm		16bit 65536	50 μ m	10 line pairs/mm		BaFBr:Eu2+ ~390nm
S8985-02 (HAMMATSU)	34×24 mm	1700×1200 20×20 μ m	12bit	25 <i>µ</i> m	20 line pairs/mm	25-80keV	CsI (FOP) ~ 550nm







解像度の光源形状依存性の実験



スリット 6(横)x6(縦)mm 拡大率 1

Advanced Indus

ビーム形状 114(横)×85(縦)ミクロン 縦横比1.34













- 試料中の境界における微小な密度差による屈折を 検出して画像化。
- 吸収がほとんどない場合でも鮮鋭な画像が得られ、
 生体組織においては、特に組織と空気や骨との境
 界を明確に可視化。







• 標準的なX線イメージング

撮像物全体を単一画像としてとらえるため、あらゆるものが一つの二次元画像 へ重なる。

• トモシンセシス

ー回の断層走査において、対象物をX線の照射角度を変えながら撮影し、任意の断層面を再構成する。低被曝で、障害陰影の無い画像が得られる。



ICチップ 33keV LCS-X @住重







X線管を用いてトモシンセシスやパルスイメージングの立ち上げを行っている。
 屈折コントラストイメージング実験が可能。



理学のX線管

パルスイメージング用検出器 (中性子標準グループの好意 により借りています)

全長3mのハッチ





X線チャートの測定から、ウィグラーX線より約3桁フォトン数 <u>/70 µ m²/sが小さい。 X線管との比較から10min照射で1</u> ~2mAs相当。 →光源強度は2~3桁上がる予定。 XCCDを用いて、 $60 \sim 80 \mu$ mの解像度の画像を取得。 "14Cレベル"の光源が実現可能!! ラット腰椎の屈折コントラストイメージを測定。 →屈折効果から光源の高い干渉性を示唆。 今後、屈折コントラストを利用したトモシンセシスやパルスイ メージングを行っていく。

放射光 X 線による 100 ピコ秒時間分解研究の現状と フェムト秒時間分解実験への期待

足立伸一 (KEK-PF)

Current status of 100picosecond-resolved X-ray studies using synchrotron radiation and future prospects of femtosecond-resolved X-ray research

Shin-ichi Adachi (KEK-PF)

<Synopsis>

100 picosecond-resolved X-ray experiments using synchrotron radiation sources are becoming general and powerful tools to explore structural dynamics of condensed matters in material and biological sciences. We have been exploring such capabilities of X-ray diffraction, scattering and absorption spectroscopy at 100-picosecond resolution at the beam line NW14A, PF-AR. The potential and limitation of the current method with 100-picosecond resolution forces us to pursue the femtosecond time resolution using the compact ERL. Based on our recent results, future prospects of femtosecond-resolved X-ray research will be presented.

<要旨>

レーザー光科学の進展により、超高速フェムト秒ダイナミクスの研究分野は大いに発展している が、X線領域における超高速ダイナミクス研究に限っていえば、これまでのところ適当な光源が少な く、ほとんど未開拓のままである。レーザーが主にカバーする赤外から紫外域は物質の価電子帯の 励起に相当するのに対して、X線領域は内殻電子の励起エネルギーに相当し、またX線と電子との 弾性・非弾性散乱過程を観測することにより、物質中の電子の密度分布や運動量分布をプローブ することができる。したがって、超短パルスX線光源が実現すれば、これまでのレーザー光科学では 得ることのできなかった情報、たとえば物質構造そのものの超高速ダイナミクスの直接観測、内殻 励起過程のダイナミクス観測などが可能となり、その利用研究は基礎科学のみならず応用分野に おいても多くのブレークスルーをもたらすことが期待される。

さて、シンクロトロン放射光は加速器中の高周波電場によってほぼ光速まで加速され、かつ数センチほどの長さにバンチ化された電子群から放出される電磁波であり、元来電子バンチ長程度の時間幅(σ~50 ピコ秒)を持つパルス光である。超短パルス X 線光源というには少しおこがましいが、サブナノ秒オーダー程度の時間分解実験には十分有用な短パルス X 線光源といえる。特に現在建設が進められている次世代 X 線光源の利用研究計画とも絡んで、パルス X 線の利用実験は近年世界各地で活発化しつつある。我々は高エネルギー加速器研究機構の放射光科学研究施設 PF-AR

を利用して、以下の表に示すようないくつかの測定系についてサブナノ秒分解 X 線実験を進めている。講演では、まず放射光を用いたサブナノ秒オーダーの時間分解 X 線回折実験の現状を報告し、その可能性と限界について述べる。さらに、その延長線上にコンパクト ERL において実現が期待されるサイエンス、X 線領域における超高速フェムト秒ダイナミクス研究への期待について述べ、以降の講演者の方々による話題提供のためのイントロダクションとしたい。

測定対象	測定手法	入射 X 線 エネルギー	入射 X 線の エネルギー バンド幅	繰り返し 周波数	入射光子数 photons/pulse	入射光子数 photons/sec
光反応性タンパク質結晶構造 の光誘起ダイナミクス	X 線回折 (Laue)	∼12keV	~10%	1Hz	10 ⁹	10 ⁹
レーザー誘起衝撃波圧縮によ る圧力相転移	X 線回折 (Laue)	∼15keV	~10%	single shot	10 ⁹	-
有機・無機単結晶中の分子の 励起状態構造解析	X 線回折 (Bragg)	10-18keV	~0.01%	10Hz-1kHz	10 ⁶	10 ⁹
遷移金属酸化物の 光誘起相転移	X 線回折 (Bragg)	10-18keV	~0.01%	1kHz	10 ⁶	10 ⁹
遷移金属化合物の 光誘起化学反応ダイナミクス	X 線吸収分光	5-9keV	~0.01%	1kHz	10 ⁶	10 ⁹
溶液中の有機・無機化合物の 光誘起化学反応ダイナミクス	X 線溶液散乱	15-18keV	~1%	1kHz	10 ⁸	10 ¹¹

放射光X線による100ピコ秒時間分解研究の現状と フェムト秒時間分解実験への期待



- はじめに
- 100ピコ秒X線研究の現状

1

• サブピコ秒X線への期待

光源のエネルギーとパルス幅



Bond softening in Bismuth (SPPS)

Phonon-polariton wave in LiTaO₃ (ALS)

Cavalleri at al. (2006) Nature 442 664.



Fritz et al. (2007) Science 315, 633.



Magnetic excitations in permalloy squares (SLS)

Raabe et al. (2005) Phys. Rev. Lett. 94,217204



esting dung used State

Ni(II) porphyrin (APS) Chen et al. (2001) Science 292, 262.

Time Domain Science with SR 最近の報告例



C₂H₄I₂ in methanol (ESRF) Ihee, et al., (2005) Science 309, 1223.



Mutant myoglobin (ESRF) Schotte et al. (2003) Science 300, 1944.

Femtosecond X-ray Pulses at 0.4 Å Generated by 90° Thomson Scattering: A Tool for Probing the Structural Dynamics of Materials

Schoenlein et al. (1996) Science 274, 236.



Fig. 1. Schematic of the femtosecond Thomson scattering geometry.



Fig. 2. False-color CCD image of the spatial profile of a 30-keV (0.4 Å), \sim 300-fs x-ray pulse striking a phosphor screen at a distance of 80 cm from the scattering point. Vertical and horizontal lineouts indicate a beam size of \sim 12 mm by \sim 8 mm (FWHM).

 Electron: 50 MeV, 1.3nC, 20 ps (FWHM)
 Smrac

 Laser: 60mJ, 100fs, 10Hz, 800 nm
 retical

 X-ray: 30 keV, ~300fs, 2 x 10⁵ photons/pulse/15%
 in the t



Fig. 3. Spectral measurements of the femtosecond x-rays at observation angles of $\theta_0 = 0 \text{ mrad}$, 5 mrad, and 10 mrad ($\phi_0 = \pi/2$). The detector lies in the yz plane. Also shown (solid lines) are theoretically predicted spectra corrected for detector sensitivity and window transmission as described in the text.

"Rapid advances in diode-pumped, solid state lasers and superconducting linac structures may provide substantially higher x-ray brightness in future Thomson sources by operating at very high repetition rates."

1996

Electron: 50 MeV, 1.3nC, 20 ps (FWHM) Laser: 60mJ, 100fs, 10Hz, 800 nm X-ray: 30 keV, ~300fs, 2 x 10⁵ photons/sec/15%b.w.



2007

Electron: 60 MeV, 0.1nC, 0.1 ps Laser: 10 mJ, 0.1 ps, 1 kHz, 800 nm X-ray: 42 keV, 1 X 10⁹ photons/sec/10%b.w. !!

Laser-Compton X-ray source at ERL test facility (60-150MeV)



 $E_{Xray} = 2\gamma^{2}E_{Laser}(1-\cos\theta_{L})/(1+\gamma^{2}\theta^{2})$ Flux = (N_LN_e/wh)(L_{eff}/L_b) σ_{c}

E_{Laser} = 1.55eV, E_{electron} = 60 MeV (γ=117), θ_L = 90 degree のとき、 軸上(θ=0)でE_{xray} = 42.4 keV



レーザーパルス(1.55eV, 10mJ)のフォトン数: $N_L = 4 \times 10^{16}$ photons 電子バンチ中の電子数(60MeV, 0.1nC): $N_e = 6 \times 10^8$ electrons 電子バンチの水平幅: $w = 50 \times 10^{-6}$ m 電子バンチの高さ: $h = 50 \times 10^{-6}$ m コンプトン散乱断面積: 1×10^{-28}

1パルスあたり、 $Flux = 1 \times 10^{6} phs/pulse/10\%b.w.$ 1 kHzのとき、 $Flux = 1 \times 10^{9} phs/sec/10\%b.w.$

既存放射光との比較

同じエネルギーバンド幅、繰り返し周波数で比較すると(10Wレーザー使用)、

- AR-NW14A: 10¹² phs/s/10%b.w. @ 1kHz

- Compact ERL: 10⁹ phs/s/10%b.w. @ 1kHz

- エンハンスメント共振器が使用できると、(小林 先生(産総研)の昨日の講演、1GHz、10µJ) レーザー出力は10Wから10kWへ。単位時間当 たりのX線フォトン数は1000倍。既存放射光と 同等以上。
 - -10⁹ 10¹² phs/s/10%b.w.

Source	Pulse length (fs)	Repetition rate (Hz)	Photon flux	Energy range
Compact ERL/Laser- Compton Source (1nC, 10kHz)	~150	1000	1 x 10 ⁹ phs/sec/10%b.w. 1 x 10 ⁶ phs/sec/0.1%b.w. 1 x 10 ⁶ phs/pulse/10%b.w.	10-100 keV
PF-AR NW14 (80nC, 794kHz, 60mA)	100 x 10 ³	794 x 10 ³	1 x 10 ¹⁵ phs/sec/10%b.w. 1 x 10 ¹² phs/sec/0.1%b.w. 1 x 10 ⁹ phs/pulse/10%b.w. 1 x 10 ⁶ phs/pulse/0.1%b.w.	5-30 keV
KEK-ERL Low-rep. mode (1nC, 10kHz, 0.01mA)	100 – 1000	10000	1 x 10 ¹¹ phs/sec/10%b.w. 1 x 10 ⁷ phs/sec/0.1%b.w. 1 x 10 ⁷ phs/pulse/10%b.w.	5-30 keV
Laser Bunch Slicing (ALS upgrade)	200	40000	5 x 10 ⁷ phs/sec/0.1%b.w.	0.2-10 keV
Laser-produced plasma X-ray	~100	10	6 x 10 ¹⁰ phs/pulse/4 π sr	8 keV (Cu-Kα)
Laser / high harmonic generation	100 - 0.1	10 - 10000	~ 10 ⁸ phs/sec/0.1%b.w.	10 eV-1 keV
Sub-Picosecond Pulse Source (SLAC)	80	10	2 x 10 ⁷ phs/pulse/1.5%b.w.	8-10 keV
KEK PF-BT line	500	20	~ 10 ⁷ phs/pulse/10%b.w.	0.2-10 keV
X-FEL (LCLS, SCSS, European XFEL)	230	120	2 x 10 ¹² phs/pulse/0.2%b.w.	1-10 keV

X-ray beam characteristics from superconducting-linac-based Laser-Compton X-ray sources

- High repetition frequency (< 1GHz)
- Hard X-ray available (~ 10-100 keV)
- Short pulse duration (~ 100 fs)
- Large beam divergence (~ 10 mrad)
- Relatively high average photon flux (~ 10¹⁰ photons/sec/~10%b.w. @ 10 kHz)

100ピコ秒X線研究の現状と サブピコ秒X線への期待



Nozawa et al. J. Synchrotron Rad. (2007). **14**, 313-319.

PF-AR NW14A 通年大強度単バンチ 時間分解実験に最適 ERATO腰原非平衡ダイナミクスプロジェクト

Bond softening in Bismuth (SPPS)

Fritz et al. (2007) Science 315, 633.



Photo-induced Phase Transition

Chollet et al. (2005) Science, 307, 86.





C₂H₄I₂ in methanol (ESRF) Ihee, et al., (2005) Science 309, 1223.

Mutant myoglobin (ESRF)

G helix

Leu104

H helix fore photolysis ter photolysis

10 A

Schotte et al.(2003) Science 300, 1944.

Motivations for femtosecond X-ray ex.1) coherent phonon

Ultrafast Bond Softening in Bismuth: Mapping a Solid's Interatomic **Potential with X-rays** Fritz et al. (2007) Science, 315, 633.



Laser Power: 0.7 (green), 1.2 (red), 1.7 (blue), and 2.3 (gray) mJ/cm²



100 meV

2.5

3.0

2.0

80

60

40

1.0

1.5

Shockwave-induced lattice deformation at NW14A



レーザー誘起衝撃圧縮下の CdSのナノ秒分解白色X線回折



Kouhei Ichiyanagi

・CdS単結晶は約3万気圧でウルツ鉱型から岩塩型構造になることが知られている。 ・時間分解分光衝撃実験によってナノ秒オーダーで変化し、寿命の短い中間相が存在することが示唆されている。

M. D. Kundson and Y. M. Gupta, et al. Phys. Rev. B. 59. 11704 (1999).

ナノ秒分解白色X線回折実験の セットアップ



実験条件 レーザー YAG 1064 nm, 850 mJ, 8 ns, 10 Hz Spot size 400 µ m X-ray 100 ps, white X-ray, 1 kHz Spot size 250x250 µ m

入射X線スペクトル



Motivations for femtosecond X-ray ex.2) photo-induced phase transition

Gigantic Photoresponse in 1/4-Filled-Band Organic Salt (EDO-TTF)₂PF₆ Chollet et al. (2005) Science, 307, 86.





Toward time-resolved electron density analysis @ NW14A

Matthieu Chollet

> MEM analysis 300K 700 me⁻/A³

> > 17

沖本洋一先生 「強相関電子材料における光誘起相転移の 超高速ダイナミクス」 Motivations for femtosecond X-ray ex.3) reaction dynamics in solution

Ultrafast X-ray Diffraction of Transient Molecular Structures in Solution Thee et al. Science (2005) 309, 1223.



Reaction dynamics in solution @ NW14





Collaboration with Hyotcherl Ihee Group (KAIST, Korea)





Solution scattering profiles



Before Calibration; detx=55



• After Calibration; new detx=51.8





UV spectroscopy revealed dumped oscillations in femtosecond time domain Caging and Geminate Recombination Following Photolysis of Triiodide in Solution

Gershgoren et al., J. Phys. Chem. A 1998, 102, 9-16



Figure 1. Transient transmission scans of triiodide in ethanol solution with both UV pump and probe pulses. The inset depicts the first 8 ps of probe delays, exhibiting a rapid decay of the initial bleach superimposed by impulsive Raman-induced spectral modulations. See text for details.

田原太平先生 「超高速反応する分子の核波束運動実時間観測と 励起状態ポテンシャル曲線のトポロジー」 21 Motivations for femtosecond X-ray ex.4) proteins

Watching a Protein as it Functions with 150-ps Time-Resolved X-ray Crystallography Schotte et al. Science (2003) 300, 1944.





Myoglobin (Mb)

- Stores molecular oxygen in muscle
 M.W. ~ 16,000
 - 1290 atoms
 - 153 amino acids
 - Contains 1 heme
- Reversibly binds O₂, CO, NO etc
Fe(II) porphyrin (heme) in myoglobin MbL + hv Mb + L (L=O₂, CO, NO, etc)







Photo-switchable

Structural distortion causes changes in electronic structure





Experimental setup



X-ray: 0.827 Å (15 keV) Laser: YAG SHG (532 nm) 15 kHz, 10 mW/mm² Sample temperature: 40 K Detector: marccd165

Data statistics:

Resolution: 50 – 1.1 Å No. of observations: 138,198 No. of unique refs: 37,292 Rmerge: 3.3 % Completeness: 94.7 % Redundancy: 3.7





Ayana Tomita

Visible absorption spectra of Mb and MbCO

MbCO + hv Mb + CO



Electron density of the heme before and after photo-excitation

Cyan: MbCO Magenta: Photo-excited

MbCO and Photo-excited overlapped

Switching protein structure by photo-excitation

Cyan: MbCO Magenta: Photo-excited

Summary

- X線を用いた時間分解測定法は、非平衡状態(短寿命種)の構造情報、電子密度分布を 直接観測できることが最大の利点。
- 現在の100ピコ秒分解能では不十分であり、
 サブピコ秒分解能が必要な実験系が多く存在する。
- そのためには、コンパクトERLによるサブピコ 秒X線光源が極めて有望。

Project members @ KEK NW14

Shunsuke Nozawa (ERATO)		Tokushi Sato (TI TECH DC)	
Ryoko Tazaki (ERATO)	60	Ayana Tomita (TITECH DC)	
Hirohiko I chikawa (ERATO)		Sachiko Maki (TI TECH MC)	E
Laurent Guérin (ERATO)		Jiro I tatani (Group Leader, LBNL)	
Kouhei Ichiyanagi (KEK PD)	1	Masahiro Daimon (Research Manager)	S
Matthieu Chollet (JPSJ PD)	Ser.	Shin-ya Koshihara (Project Director)	

Collaborators

Beam line NW14

- KEK
 - Hiroshi Sawa
 - Hiroshi Kawata
 - Takeharu Mori
 - Shigeru Yamamoto
 - Kimichika Tsuchiya
 - Tatsuro Shioya
 - and all Photon Factory Staffs

Myoglobin

- Yokohama City University
 - Sam-Yong Park

(EDO-TTF)₂PF₆

- Kyoto University
 - Hideki Yamochi
 - Gunji Saito

Time-resolved solution scattering

- Korea Advanced Institute of Science and Technology
 - Hyotcherl I hee
 - Kyung Huan Kim
 - Jae Hyuk Lee

Other collaborations

- Tokyo Institute of Technology
- The University of Chicago
- Univ. Rennes 1
- State Univ. of New York at Buffalo
- Univ. of Copenhagen
- Laurence Berkley National Lab.
- Oxford Univ.
- Tohoku Univ.
- Osaka City Univ.

光誘起キャリアとコヒーレントフォノンの超高速ダイナミクス

Ultrafasy dynamics of photo-induced carriers and coherent phonons

中村一隆 (東京工業大学応用セラミックス研究所) Kazutaka G. Nakamura, Materials and Structures Laboratory

<Synopsis>

Ultrafast dynamics of photo-induced carriers and coherent phonons are investigated by time-resolved x-ray diffraction. Transient lattice deformation by acoustic phonon in GaAs and coherent optical phonon vibrations are directly monitored.

コヒーレントフォノンは位相の揃った格子振動集団のことで、格子振動の振動周期よりも 十分に短いパルスレーザー光照射によって発生することができる。一般にコヒーレントフォ ノンのダイナミクスはフェムト秒の過渡反射率や過渡透過率測定により調べられている。ま た、光吸収のある物質では光誘起のキャリアの寿命計測も行われている。

我々のグループでは、半導体への光照射によって発生する、コヒーレントな音響フォノン パルスによる過渡格子変形のダイナミクス光学フォノン振動変位を、時間分解 X 線回折法を 用いて研究している。その結果について報告する。

超短パルス X 線は、50fs のレーザー光を 10¹⁷W/cm²以上の強度で金属に集光照射すること で発生し、ポンプープローブ法を用いてピコ秒およびフェムト秒時間分解での X 線回折測定 を行った。フェムト秒レーザー照射 GaAs(111)表面では、音響フォノンパルスの試料内部進展 に伴う過渡格子変形をピコ秒時間分解 X 線回折により直接計測した。また、フェムト秒レー ザー照射 CdTe(111)表面ではフェムト秒時間分解 X 線回折により、200fs 振動周期を持つコヒ ーレント光学フォノン振動を直接計測することに成功した。



東京工業大学応用セラミックス研究所

ERL@KEK(2007/7/10)

Outline

- イントロダクション(コヒーレントフォノン)
- パルスX線発生
- 時間分解X線回折測定
 - ピコ秒時間スケール:GaAs音響フォノンパルス伝搬
 - フェムト秒時間スケール:CdTe光学フォノン振動
- まとめ

フォノン(2原子直線格子)



$$M\frac{d^{2}U_{l}}{dt^{2}} = f(u_{l} + u_{l+1} - 2U_{l})$$
$$m\frac{d^{2}u_{l}}{dt^{2}} = f(U_{l} + U_{l+1} - 2u_{l})$$

$$\omega_{\pm}^{2} = \frac{f(M+m)}{Mm} \left[1 \pm \left\{ 1 - \frac{4Mm}{(M+m)^{2}} \sin^{2} \left(\frac{qa}{2} \right) \right\}^{1/2} \right]$$

i)
$$\omega_{-}$$
のモードはq->0で ω_{-} >0となり、 $u_{l} = u_{0}e^{-i\omega t}$
全ての原子は同位相かつ同振幅で振動
することにある: 音響的振動
ii) ω_{+} のモードはq->0で、 $\omega_{+}^{2} = \frac{2f(M+m)}{Mm}$

隣り合った異種原子がその質量に反比例して、 逆位相で(反対方向に)振動している :光学モード



熱振動とコヒーレントフォノン



熱振動:各原子の振動の位相がバラバラ



コヒーレントフォノン: 各原子の振動の位相が揃った状態

格子振動の振動周期よりも十分短いパルス励起で発生することができる

コヒーレントフォノン発生メカニズム

- 発生メカニズム
- DECP(displacive excitation of coherent phonon)
 - 光吸収による励起状態での振動:発生キャリア量に比例した変位
 - 無極性な半金属や無機物質
- ISRS (Impulsive stimulated Raman scattering)
 - 光励起による基底状態での振動:励起光強度の2乗、ラマン活性なモード
 - 吸収が無い物質
- USSC(ultrafast screening of space-charge field)
 - 光吸収により発生したキャリアによる表面電荷層のスクリーニング(バンドベングィングの減少)
 - 極性のある半導体

一般的計測方法:

フェムト秒レーザーの過渡反射率・過渡透過率測定

コヒーレントフォノンコントロール(Bi)



FIG. 1. Reflectivity change for Bi induced by two excitation pulses: (a) Reflectivity change induced by the first excitation pulse alone; (b) reflectivity change induced by the second excitation pulse alone. Inset: Fourier transform power spectrum of the time domain data.



FIG. 2. Double-pulse pump-probe data observed in a Bi film at room temperature. Δt is the time difference between two pulse components of the double-pulse excitation.



Hase et al. Appl. Phys. Lett., 69 (1996) 2474

- 光学測定を用いたコヒーレントフォノンの計測でフォノンの寿命、電子フォノン相互作用が研究されている。
- パルス波形整形によりコヒーレントフォノンを制御し、光による構造制御を 目指した研究行われている。

光学測定では、原子変位量や構造がよく分からない

超高速時間分解X線回折を用いたコヒーレントフォノン研究

Time-resolved measurement of coherent phonon

- Coherent phonon has been studied extensively using several optical measurement techniques: timedomain spectroscopy
 - reflection or transmission, SHG, THz radiation
 - T.K. Cheng, APL 59 (1991) 1923
 - M. Hase et al. PRL 88 (2002) 067401.
- Lattice displacement has been directly studied with Xray diffraction by several groups
 - Acoustic phonon propagation
 - A. Rousse et al. Nature 410 (2001) 65
 - Coherent optical phonon
 - K. Sokolowski-Tinten et al. Nature 420 (2003) 287.

Motivation: Materials Dynamics

Elucidate dynamics of phase transition of condensed matter and control

- •Transition time (Δt)?
- Pathway of structural changes (A1-A2) ?
- Transition structure (*) ?





<u>How</u>

Structural change is directly monitored by using ultrafast X-ray diffraction with pump and probe technique

Ultrashort pulsed X-rays are required!

Quantum emissions

High-energy short-pulsed beams of electrons, ions and photons (X-rays) generated from femtosecond intense laser field (>10¹⁶W/cm²).



Quantum emission

High-energy short-pulsed beams of electrons, ions and photons (X-rays) generated from femtosecond intense laser field (>10¹⁶W/cm²).



Cu-foil at I=2x10¹⁸W/cm²



Characteristic X-rays obtained by X-ray CCD camera at power density of 3×10¹⁶ W/cm².

Pulse width of CuKa

 6.5×10^{10} photons/ 4π sr/pulse





The temporal profiles obtained by the X-ray streak camera. The energy extends from 1 to 10 keV are accumulated. $I \sim 10^{17} \text{ W/cm}^2$

Picosecond time-resolved X-ray diffraction from femtosecond laser-excited GaAs(111):

Acoustic phonon propagation

Ref: C. Rose-Petruck et al., Nature 398 (1999) 310 H. Kishimura et al., JCP 117 (2002)10239

Schematic of experimental setup









Rate equations: N(x,t), T(x,t)

Diffusion equations: T(x,t) Hydro-dynamic equations: u(x,t)

Model of laser heating and phonon generation



Strain generated by impulsive laser excitation



$$\eta = \eta_0 \left[e^{-\frac{z}{\xi}} \left(1 - \frac{1}{2} e^{-\frac{vt}{\xi}} \right) - \frac{1}{2} e^{-\frac{|z-vt|}{\xi}} sgn(z-vt) \right]$$

η: strain

- V: sound velocity
- ξ : absorption length

C.Thomsen, et al., Phys. Rev. B 34, 4129 (1986)

Simulation of strain profile inside the GaAs(111) crystal



Maximum strain0.30%Absorption length255nm

Obtained effective absorption length in this study: ξ = 255 nm c.f. linear absorption length of GaAs at 800nm: ξ = 900 nm

$$\xi = \frac{1}{\alpha}$$

$$\alpha = \alpha_0 + I\beta$$
I: Intensity
$$\alpha$$
: An absorption coefficient
$$\alpha_0$$
: A linear absorption coefficient
$$\beta$$
: A two-photon absorption coefficient

Intensity $I = 1.17 \text{ GW/cm}^2$

 \rightarrow A two-photon absorption coefficient β = 27±11 cm/GW

c.f. β = 26±8 cm/GW (using ps laser pulse)

(T.F.Boggess, et al., IEEE J. Quantum Electron. 21, 5 (1985))

Femtosecond time-resolved X-ray diffraction from femtosecond laser-excited CdTe:

Coherent optical phonon

Ref: K. Sokolowski-Tinten et al., Nature 422 (2003) 287 and (2006): Bi-film Y. Hironka et al., Ultrafast Phenomena (2006)

- No change in diffraction angle
- Diffraction intensity changes as a change of structural factor: F

$$|F|^{2} = FF^{*} = I\sum_{l} f_{l}f_{l'} \exp(\frac{2\pi i}{\lambda}(S - S_{0})(R_{l} - R_{l'}))\exp(\frac{2\pi i}{\lambda}(S - S_{0})(\delta_{l} - \delta_{l'}))$$

$$\approx |F_{0}|^{2} + \sum_{l} iQ\exp(i\omega t + \theta_{l}) \qquad \text{(Thermal: Debye-Waller factor)}$$





Experimental geometry and diffraction image



fs-TRXD from 50-fs laser irradiated CdTe(111)



Temporal profile of diffracted X-ray intensity

No shift of the diffraction peak but modulation of diffracted X-ray intensity

Coherent optical phonons in CdTe(111):fs-TRXRD



Fourier power spectrum of modulation in X-ray diffraction intensities and normal Raman spectrum of CdTe (inset).

26

Phonon dispersion of CdTe



From J.M. Rowe et al. PRB10(1974)


Experimental setup for fs time-resolved optical reflection @NIMS





http://www.nims.go.jp/ldynami cs/Femto/SU.html

Fs-time resolved optical reflection from CdTe(111)



modulation in phonons (5mW): LO(CdTe): 4.97 THz, τ =2.39 ps A(Te): 3.82 THz, τ =1.49 ps

Fourier spectrum

K. Ishioka et al., Jpn. J. Appl. Phys.45 (2006) 9111

- Transient lattice deformation due to propagation of acoustic phonon and shock wave inside semiconductor crystals has been observed by picosecond TR-XRD
- Coherent optical phonons of CdTe (5THz) has been observed by femtoseconf TR-XRD
- Time-resolution of 200fs in TR-XRD has been achieved

Acknowledgement

• TRXRD

- TokyoTech: Prof. K. Kondo, Dr. Y. Hironaka, Dr. H. Kishimura, Dr. Y. Okano
- CP by optical reflection
 - NIMS: Prof. M. Kitajima, Prof. K. Ishioka, Dr. M. Hase

Coherent control in condensed matter

- Ohmori group, Matsumoto group (IMS), Kitajima group (NIMS)
- Funds: MEXT, IMS

強相関電子材料における光誘起相転移の超高速ダイナミクス

沖本洋一 東京工業大学大学院理工学研究科

Ultrafast dynamics of photoinduced phase transition in strongly correlated materials

Yoichi Okimoto Department of Materials Science, Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology

<Synopsis>

We performed femtosecond reflection spectroscopy on a charge and orbital ordered manganite, Gd0.55Sr0.45MnO3, locating near the phase boundary between the charge ordered state and the ferromagnetic metallic state. Just after the photo-irradiation, we observed a large increase of the reflectivity in the mid-infrared region. The optical conductivity spectrum after the photoirradiation obtained from the Kramers-Kronig analyses demonstrates a formation of a metallic state. This indicates that ferromagnetic spin arrangements take place within the time resolution through the double exchange interaction, resulting in an ultrafast switching from the charge/orbital ordered state to the ferromagnetic metallic state.

典型的な強相関電子材料の一つであるペロブスカイト型マンガン酸化物は、超巨大磁気抵抗 効果や磁場誘起絶縁体-金属転移の発見により大きな注目を集めている。特に後者の現象は、 Mn³⁺ イオンと Mn⁴⁺イオンが実空間で交互に並ぶ「電荷が整列した絶縁体」状態が、外部磁 場の印加により「強磁性金属」の状態へと変化する現象であり、これまでに類を見ない劇的 な「電子相制御」の例として現在でも盛んに研究が行われている。更に注目すべき点として、 このマンガン系の強磁性金属相転移は、磁場印加ばかりでなくレーザ光照射によっても引き 起こすことができることが挙げられる[1]。しかし、光生成された強磁性金属相がどのよう時 間スケールで生成し、そして緩和していくかという問題はまだ明らかになっていない。今回 の講演では、典型的な電荷整列絶縁体である Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO₃ 結晶におけるフェムト秒レーザ パルスを用いた時間分解反射分光の結果について報告し[2]、マンガン酸化物で見られる「光 誘起相転移」の超高速ダイナミクスについて詳細に議論する。(本研究の主要部分は、強相関 電子技術研究センターにて行われたものであり、松原正和、富岡泰秀、小笠原剛、岡本博、 十倉好紀の各氏との共同研究である。)

- [1] K. Miyano et al. Phys. Rev. Lett. 78, 4257 (1998).
- [2] Y. Okimoto et al., J. Phys. Soc. Jpn. 76, 043702 (2007).

強相関電子材料における光誘起相転移の 超高速ダイナミクス

東工大院理工 沖本洋一

Collaborators

¹CERC-AIST, ²Univ. of Tokyo
 松原正和1、松崎弘幸^{1,2}、富岡泰秀¹、I. Kezsmarki²、
 小笠原剛¹、岡本博^{1,2}、十倉好紀^{1,2}
 東工大院理工
 遠藤将人、腰原伸也
 東北大多元研
 有馬孝尚

ERL研究会「コンパクトERLが拓く世界」

1

1. Introduction...

ペロブスカイト型Mn酸化物の電荷整列絶縁体一強磁性 金属相転移とPhoto-induced phase transition (PIPT)

- 2. フェムト秒レーザを用いた 電荷整列絶縁体Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO₃ 結晶の 超高速ポンププローブ分光
- ① 反射率変化 ΔR/R *電荷の応答*

Y.Okimoto et al., JPSJ 76, 043702 (2007).

② カー回転 △ *θ*スピンの応答

M. Matsubara, Y.O. et al., submitted.

- 「光誘起強磁性金属状態」はどのように光で見えるのか?
- ・その生成・緩和の時間スケールはどうなっているのか?
- 3. 光誘起強磁性金属相の緩和状態は???

Introduction

マンガン酸化物 ⇒ 全く異なる二つの基底状態



3

Miyano *et al.*, PRL (1998): current infection is essential to keep the photo-induced FM domains. ⇒ 光照射によって発生したドメインはそのままでは維持 できず、始状態へ緩和して行く





フェムト秒レーザパルスを用いた時間分解反射分光

時間分解ポンププローブ反射分光



Target: Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO₃



① Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO₃の時間分解測光: 反射率変化





•Response:
$$f(t) = a_1 e^{-\frac{t}{\tau_1}} + b_1 (1 - e^{-\frac{t}{\tau_1}})$$
高速成分 Flat成分

•Spectral function: 畳み込み (★) with pump & probe pulse (gaussian-type) $I(t) = [f(t) \star e^{-\frac{t^2}{\tau_{pump}^2}}] \star e^{-\frac{t^2}{\tau_{probe}^2}}$



Power dependence in $\Delta R/R$



光誘起状態の考察



Linear combination of the initial and final states:

$$\varepsilon(z) = (1 - \gamma e^{-z/d})\varepsilon^{\text{CO}} + \gamma e^{-z/d}\varepsilon^{\text{PIPT}}$$

 ε ^{CO}: dielectric constant of GdSrMnO₃ (*known*) ε ^{PIPT}: dielectric constant of the photo-induced phase (*unknown!*)

 $\Delta R/R は \epsilon^{PIPT} = (n^{PIPT} - i k^{PIPT})^2)の関数として計算される。$ (多層膜の複素フレネル係数の計算) \mathcal{Z}

光誘起状態の誘電関数 *ε* PIPTの算出



光誘起相の電子状態……光学伝導度スペクトル

⇒光学伝導度(光吸収)スペクトル: σ^{PIPT}=ωIm ε^{PIPT}/4 π



電荷整列絶縁体マンガン酸化物 Gd_{0.55}Sr_{0.45}MnO₃に対して超高速分光を行った。

★<u>反射分光の結果</u>:

- ・反射率スペクトルの瞬間的(パルス幅以内)変化
- ・スペクトルの形状の変化:絶縁体的⇒強磁性金属的
 ・緩和の時間スケール ~240 fs, at 0.12 eV

★カー回転測定の結果:

- ・光照射により正のカー回転角⇒強磁性ドメインの生成
- ・ *△ Θ*は~1psかけて増大し、~10psかけて減衰

マンガン系の光誘起相転移⇒

光誘起強磁性ドメインの緩和 と ドメインが回転し磁場方向にそろう効果 の二つの要因で説明可能

超高速反応する分子の核波束運動実時間観測と 励起状態ポテンシャル曲面のトポロジー

田原太平 (理化学研究所 田原分子分光研究室)

Observation of nuclear wavepacket motion in ultrafast chemical reactions and the topology of the excited-state potential energy surfaces

Tahei Tahara Molecular Spectroscopy Laboratory, RIKEN

<Synopsis>

Thanks to the advance of ultrafast lasers, we are now able to use sub-10-fs pulses in a variety of femtosecond spectroscopy. This kind of short optical pulse can excite bunch of vibrational eigen states coherently, and the evolution of the vibrational coherent state induces real-time nuclear motion of molecules (nuclear wavepacket motion). Creation and observation of the nuclear wavepacket motion is one of the most important aspects of femtosecond spectroscopy and is attracting much interest. Especially, the observation of the wavepacket motion of short-lived excited states that undergo ultrafast chemical reactions provide crucial information about the topology of the relevant potential energy surfaces that is essential for understanding of realistic reaction coordinates of polyatomic molecules.

<本文>

チタンサファイアレーザーの発明をはじめとする超高速レーザー技術の長足の進歩を背景に して、われわれは現在、10 fs をきる短い時間幅の光パルスを比較的自由に様々な実験に用い ることができるようになっている。このような極短パルスを用いた分光実験の大きな特長の 一つは、その広いエネルギー幅を利用して、一群の振動固有状態をコヒーレントに励起でき ることである。このようにコヒーレントに励起された状態は時間発展するが、これは古典的 にいうところの分子の核の運動にほかならない。すなわち、極短パルスを用いたフェムト秒 分光では、一般的に、分子の核運動(振動)が直接、分光信号の時間変化として観測される。 振動分光学の立場にたつと、このような分子の核の運動(核波束運動)の実時間観測は、「時 間領域の振動分光 time-domain vibrational spectroscopy」であると考えることできる。時間領域 の振動分光は、原理的には、スペクトル測定を行う伝統的な振動数領域の振動分光 frequency-domain spectroscopyと等価な情報を与える。しかし、超高速反応する電子励起状態 のように、極めて短い寿命しかもたない化学種の研究においてはきわめて強力であり、これ によって、本質的に多次元である、多原子分子の反応性エネルギーポテンシャル曲面に関す る貴重な情報を得ることができる。講演では、われわれが最近行った、1 ピコ秒、あるいは それ以下の寿命しかもたない"反応する"電子励起状態の核波束運動の観測について述べ、 そこから得られた多原子分子の反応座標に関する新しい知見について議論する。

参考文献

- 1. T. Tahara, S. Takeuchi, K. Ishii, J. Chin. Chem. Soc., 2006, 53, 181-189.
- 2. S. Fujiyoshi, S. Takeuchi, T. Tahara, J. Phys. Chem. A, 2003, 107, 494-500.
- 3. S. Takeuchi, T. Tahara, J. Chem. Phys., 2004, 120, 4768-4776.
- 4. S. Takeuchi, T. Tahara, J. Phys. Chem. A, 2005, <u>109</u>, 10199 -10207.
- 5. K. Ishii, S. Takeuchi, T. Tahara, Chem. Phys. Lett., 2004, <u>398</u>, 400-406.
- 6. S. Takeuchi, S. Ruhman, K Ishii, T. Tahara, Ultrafast Phenomena XV, in press.
- 7. S. Takeuchi, S. Ruhman, T. Tsuneda, M. Chiba, T. Taketsugu, T. Tahara, in preparation.
- 8. M. Iwamura, S. Takeuchi, T. Tahara, J. Am. Chem. Soc., 2007, 129, 5248-5256.
- 9. M. Iwamura, H. Watanabe, K. Ishii, S. Takeuchi, T. Tahara, in preparation.

超高速反応する分子の核波束実時間観測と 励起状態ポテンシャル曲面のトポロジー

Real-Time Observation of Nuclear Wavepacket Motion of Reacting Molecules and Topology of Potential Energy Surfaces

> Molecular Spectroscopy Laboratory, RIKEN JAPAN

Tahei TAHARA



ER研究会, July 9, 2007



for Gaussian

Observation of Nuclear Wavepacket Motion





Time-domain vs Frequency domain

MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB

Probe

time

τ

 Λ

RIKEN

Heterodyned Impulsive Stimulated Raman of CCl₄





Time-domain vs Frequency domain

Heterodyned Impulsive Stimulated Raman of CCl₄



Time-domain vibrational data is equivalent to frequency-domain data. They are converted to each other by Fourier transformation.



Molecular Spectroscopy Lae

Time-domain vibrational spectroscopy is very powerful to study excited-state molecules, especially when they have only very short lifetimes.

We can get insight about reactive potential energy surfaces, which are not simply harmonic!

Ultrafast reactions are weird special problems?



Nuclear Wavepacket Motion of Potential Energy Surface



MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB **Photodissociation Excited-State Proton Transfer Photoisomerization** Diphenylcyclopropenone 10-Hydrobenzoquinoline cis-Stilbene hν, hν hy parallel perpendicular assist

Observation of nuclear wavepacket motion of "reacting" short-lived excited states

- Photoisomerization of *cis*-stilbene
- Photo-induced structural change of bis(2,9-dimethyl-1,10-phenanthroline)copper (I)



Photoisomerization of *cis*-stilbene

Stilbene: A Fundamental Molecule in Organic Photochemistry

Performance





NOPA

Tunability	500 – 750 nm
Pulse Duration	10 – 15 fs
Pulse Energy	10 µJ
Rep. Rate	1 kHz



Two Color Pump-Probe Experiments

Pump	250 - 375 nm, 20 fs
Probe	500 - 750 nm, 10 - 15 fs
Time Resolu	tion 30 fs
Sensivitity	0.03 mOD

Apparatus: Tunable Two-Color Pump-Probe Spectrometer based on NOPA

MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB

C

RIKEN



Time-Resolution of UV-vis Two Color Pump-Probe: 30 - 40 fs (Cross Correlation)

Photoisomerization of Stilbene





Photoisomerization of Stilbene





Absorption Spectra of *cis*-Stilbene










Time-Resolved Absorption Signal of *cis*-Stilbene

MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB

pump 315 nm; probe 660 nm; 5x10⁻³ M



Time-Resolved Absorption of *cis*-Stilbene









The wavepacket motion is insensitive to the change of solvent.

Wavepacket Motion in Photoisomerization of cis-Stilbene





The observed wavepacket motion is "perpendicular" to the reaction coordinate. RIKEN





Observation of Raman-Induced Wavepacket Motion in S₁ *cis*-Stilbene





Observation of Raman-Induced Wavepacket Motion in S₁ *cis*-Stilbene





Mutlidimensional S₁ Potential of S₁ *cis*-Stilbene







Photoinduced Structural Chage (Jahn-Teller Distortion) of Cu complex

Bis(2,9-dimethyl-1,10-phenanthroline)copper (I): A Fundamental Molecule in Inorganic Photochemistry

Bis(2,9-dimethyl-1,10-phenanthroline)copper (I):



MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB



[Cu(I)(dmphen)₂]+

Promising as the photocatalyst and photosensitizer in solar energy conversion

© Candidate for molecular switch

© Real-time observation of Jahn-Teller Distortion

Flattening distortion takes place.



Femtosecond Time-Resolved Fluorescence Spectra



MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB



27





Fluorescence Spectral Change Corresponding to Flattening Distortion





MOLECULAR SPECTROSCOPY LAB

RIKEN



Ultrafast Pump-Probe Signal of [Cu(dmphen)₂]⁺













Direct Information on Structural Change

Pulse width > 100 fs (or 1 ps)

Structural Information of Short-Lived Transients

Pulse width < 100 fs (or 1 ps)</p>

Direct Observation on Coherent Motion

Seeing what we could not see before creates new science.

Collaborators



Molecular Spectroscopy Laboratory, RIKEN



- Satoshi TAKEUCHI Shoichi YAMAGUCHI Kunihiko ISHII Haruko ISHII Haruko HOSOI Kentaro SEKIGUCHI Munetaka IWAMURA Hidekazu WATANABE Takumi NAKAMURA Satoshi NIHONYANAGI Sobhan SEN Pratik SEN
- Prof. Sanford RUHMAN (Hebrew Univ.)

Akiko ZUSHI

Members, April 2007

総合討論 ーコンパクトERLが拓く世界ー

コンパクトERLが目指すもの



第1段階:低電流運転でも可能なレーザーコンプトンを用いたX線イメージング研究、フェムト秒サイエンスを展開。(レーザーのタイミング系の開発を含む)

第2段階:数10mA電流の運転を実現し、テラヘルツ光源を用いたサイエンスを展開。

第3段階:エネルギー増強(~200MeV)により、高輝度短パルスVUV光源を用いたサイエンスを展開。

実機ERL(5GeVクラス)の要素技術の取得、実験測定技術の取得 ⇒ 実機の実現へ

本研究会の目的

- コンパクトERLの技術的な可能性(加速器技術として)は?
- THz領域のCSRで展開可能となる応用研究 は?
- レーザー・コンプトン散乱によって展開可能と なる応用研究は?
- 1)X線イメージング(微小光源を利用した)
- 2) サブピコ秒のX線パルスを用いた応用研究

コンパクトERLの技術的な可能性は? (加速器技術として)

• THZ光源(CSR)

原理的に可能ただし以下のような点を考慮する必要あり。

〇0.1 psのバンチ圧縮は400pC程度のチャージ量が現時点の最適化での限界。 〇加速エネルギーが高いほど良い。

OCSR取り出しのミラー等の真空ダクト内の設計は注意が必要。

• レーザー逆コンプトン散乱X線源

すでに多くの常伝導加速器を用いての実績があり、超伝導加速器で の高繰り返しは実用強度を得る有力な手法。

〇電子ビーム(電子銃ドライブレーザー)と衝突レーザーの同期を確実に取ることが必須。

〇電子ビームの高品位化だけではなく。レーザーの高強度化(エンハンスメント・キャビティー) が有効。ただしこの技術は100MHz以上の繰り返しが必要でイメージングにのみ有効。

〇サブピコ秒時間分解の場合には10kHz程度のパルス周波数が最適。この場合どうするか?

上記の加速器技術として高輝度性、短パルス性、高繰り返し性がどの程度必要か整理する必要あり。

THz領域のCSRで展開可能となる応用研究は?

- 情報通信、バイオサイエンスのプラットホーム
- 励起光としての展開(ポンプ・プローブ実験としての 励起光源)
- 半導体のプロセス技術光源(不純物拡散の制御)の
 可能性
- 分子振動、回転モードの測定による物質科学、材料 化学の展開

レーザー・コンプトン散乱による応用研究は? 1)X線イメージング(微小光源を利用した)

- 微小光源のため、屈折イメージング光源として十分な性能を 有している。
- タルボ干渉計によって吸収率、屈折率の分離したイメージン グを大強度で可能(良いマッチング)
- コンパクト化による一般臨床用として医学イメージング装置としての期待および実現性が高い。
- 時間分解イメージングの可能性(タービン等の産業応用)

強度の更なる増大の可能性⇒エンハンス・キャ ビティーの導入(100MHz以上)

レーザー逆コンプトン散乱X線源の可能性

 $Flux = (N_L N_e / wh)(L_{eff} / L_b)\sigma_c$

電荷量 (nC)	繰り返し周波数 (Hz)	電流 (mA)	レーザーパ ワー (mJ/pulse)	フラックス (光子/秒 /10%b.w.)	運転モード
0.1	1k	0.01	10	1x10 ⁹	時間分解・モード
0.1	1G	100	1x10 ⁻⁵	1x10 ⁹	イメージング・モー ド
0.1	1G	100	1X10 ⁻²	1x10 ¹²	エンハンスメント・ キャビティー利 用
1	10	1x10 ⁻⁵	200	~1x10 ⁷	AIST

繰り返し周波数 x レーザーパワー (パルス) = 一定、として評価

レーザー・コンプトン散乱による応用研究は? 2)サブピコ秒のX線パルスを用いた応用研究

100ピコ秒から100フェムト秒へ
 〇コヒーレントフォノン

(THz光源の励起状態の計測) 〇光誘起反応の初期過程の解明

強相関電子系物質材料 バイオマテリアル、溶液反応 etc.

レーザーコンプトン散乱の強度はどこまで上げられるか? 集光光学系は必須?

コンパクトERL実現に向けて

コンパクトERLで展開できるサイエンスを提案し、加速器開発とサイエンスを両輪にして進める。

〇ユーザー・コミュニティーの形成の スターティング・ポイント 〇種々の予算獲得への原動力 (2008年度の学術創成等の外部資金獲得へ)



ERL 研究会「コンパクト ERL が拓く世界」の報告

- 放射光科学第二研究系 河田 洋
- 放射光科学第二研究系 足立 伸一
- 放射光科学第二研究系 平野 馨一
- 放射光科学第一研究系 兵藤 一行
 - 放射光源研究系 原田健太郎
- 分子科学研究所 極端紫外光研究施設 木村 真一

2007 年 7 月 9,10 日,KEK 4 号館 1 階セミナーホールにおいて標記研究会が開催された。 総勢 70 名の参加があり,盛況な研究会となった。現在,60~200 MeV 程度の小型 ERL(コン パクト ERL)を KEK つくばキャンパスの東カウンターホールに建設することが予定されてお り,その技術的可能性とそれが拓くサイエンスを明確にすることを目的として研究会が開催 された。

コンパクト ERL の特長の一つは, テラヘルツ・遠赤外領域で大強度のコヒーレント放射光 (CSR)が得られることである。また, レーザー逆コンプトン散乱を利用すれば微小光源でフ ェムト秒X線を発生させることができるため, X線イメージング研究や時間分解・ダイナミ クス研究等にも大いに有用である。そこで研究会の構成を,光源,テラヘルツ CSR 利用研究, イメージング研究,時間分解・ダイナミクス研究の四部構成とした。

最初の光源に関するセッションでは、CSR 及びレーザー逆コンプトン散乱による光を発生させる装置に関して講演が行われた。ユーザーにとって最も気がかりな光の強度については、 CSR の場合 E = 10 meV で約 10¹⁶ photons/sec/

mrad²/0.1%b.w.となること,レーザー逆コンプトン散乱では E = 43 keV の X 線がパルス幅 0.3

psで約10⁶photons/pulse 得られ ることが示された。これは新しい サイエンスを拓くのに十分な強 度であり,コンパクト ERL が原理 実証機としてだけでなく利用研 究にも役立つことが確認された。 さらに,バンチ圧縮の可能性に関 するシミュレーション結果,ATF や産総研におけるレーザーコン プトン散乱実験の現状等が紹介 された。

次のセッションでは, テラヘル





ツ放射光利用研究の現状と,大 強度テラヘルツ CSR によって可 能となる利用研究に関する講演 が行われた。まず現状について は,テラヘルツ帯には様々な物 質の特徴的現象が存在すること, そのため工業・医療・バイオ・ 農業・セキュリティ・情報通信 等の広範な分野で利用研究が急 速に進みつつあることが示され, 聴衆の強い関心を集めた。また, 京大原子炉ライナックや原子力 機構 ERL におけるテラヘルツ

CSR 研究の現状についても紹介された。次にコンパクト ERL によって得られる大強度テラヘ ルツ CSR の利用研究については,近接場分光や半導体中不純物の拡散制御への応用,励起光 としての利用等が提案された。

三番目のセッションでは,レーザー逆コンプトンX線源(LCX)によるX線イメージング研 究に関する講演が行われた。LCX では光源サイズは約 50 mm と小さくなり,光源点から 10 m 離れた地点におけるビームサイズは直径約 100 mm,ビーム強度は約 10⁶ photons/sec/mm² と なる(E = 40 keV,繰り返し周波数 10 kHz の場合)。このことから LCX は伝搬ベースの位相 イメージングに適した光源であると言える。また,タルボ干渉計を用いた位相イメージング は非常に柔軟性に富んだ強力な手法であり,LCX を含む従来型のX線発生装置にも適用可能 である。将来的に LCX は病院設置型の小型装置へ発展する可能性があるが,臨床応用のため には被写体の立体的情報表示と機能評価イメージングが特に重要であるとの指摘がなされた。

最後のセッションでは,LCX からのフェムト秒 X線を利用した時間分解・ダイナミクス分野 の利用研究の可能性について講演が行われた。まず,100 ピコ秒分解能の X線研究の現状に ついて,衝撃波圧縮,光誘起相転移,溶液反応,タンパク質構造解析の4つの例が紹介され た。続いてフェムト秒レーザーとレーザープラズマ X線を組み合わせたコヒーレントフォノ ンの観測例,ペロブスカイト型マンガン酸化物における光誘起強磁性金属相転移,溶液反応 のフェムトケミストリーの最先端等が相次いで報告され,この分野の著しい発展ぶりを聴衆 に印象づけた。

研究会最後の総合討論では,研究会提案代表者である河田が全体のまとめを行い,聴衆に コンパクト ERL 計画への協力を呼びかけて研究会を終了した。以下にプログラムを記す。尚, 研究会での講演要旨,発表スライドについては以下のサイトを参照。 http://pfwww.kek.jp/pf-seminar/ERL/ERL 07July.html

参加者リスト(敬称略・あいうえお順)

氏名	所属	氏名	所属
朝倉 大輔	KEK PF	島田 美帆	分子研
芦田 昌明	阪大院基礎工	下村 理	KEK 物構研
足立 伸一	KEK PF	白井 光雲	阪大産業科学研究所
飯田 厚夫	KEK PF	杉山 弘	KEK PF
池浦 広美	産総研	清紀弘	産総研
市川 広彦	KEK PF	大門 正博	KEK PF
一柳 光平	KEK PF	高橋 俊晴	京大原子炉
伊藤 功	東大物性研	武田 佳彦	東大院新領域創成科学
伊藤 健二	KEK PF	竹中 久貴	NTTアドバンステクノロジー(株)
岩住 俊明	KEK PF	田崎 遼子	KEK PF
梅森 健成	KEK PF	田中耕一郎	京大院理
浦川 順治	KEK·加速器	田原 太平	理研
岡村 英一	神戸大理	斗内 政吉	阪大レーザーエネルギー学研究セ
沖本 洋一	東工大理工	富田 文菜	東工大
春日 俊夫	KEK PF	虎谷 秀穂	リガク X線研究所
川合 將義	KEK 加速器研究施設	永井 良治	原研機構
河田 洋	KEK PF	永園 充	理研推進本部
菊澤 信宏	原研機構	中村 一隆	東工大応用セラミックス研
菊谷 英司	KEK 加速器研究施設	中村 典雄	大学物性研
木村 真一	分子研	並河 一道	東京学芸大教育部
栗木 雅夫	KEK 加速器研究施設	難波 孝夫	神戸大院理
黒田隆之助	KEK 加速器研究施設	西森 信行	原研機構
小池 正記	産総研	野澤 俊介	KEK PF
小出 常晴	KEK PF	野村 昌治	KEK PF
腰原 伸也	東エ大フロンティア創造共同研究セ	羽島 良一	原研機構
小林 幸則	KEK PF	原田健太郎	KEK PF
小林 洋平	産総研	原田 仁平	リガク
酒井 俊	筑波大人間総合科学	東保男	KEK 機械工学センター
阪井 寛志	東大物性研	兵藤 一行	KEK PF
酒井 文雄	住友重機械	平野 馨一	KEK PF
櫻井浩	群馬大工	藤澤 正美	東大物性研
佐藤 篤志	東工大	松下 正	KEK PF
佐藤康太郎	KEK 加速器研究施設	百生敦	東大院新領域創成科学
沢村 勝	原研機構	矢橋 牧名	理研
篠原 邦夫	高輝度光科学研究セ	若槻 壮市	KEK PF