

平成17年度学術フロンティア推進事業(継続)
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」

シンポジウム

「理想的なX線像とその活用」
「近赤外自由電子レーザー(FEL)とその活用」

平成18年3月16日～17日
会場: 日本大学理工学部船橋校舎13号館2階1325室

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設
Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA),
Nihon University

平成17年度学術フロンティア推進事業(継続)
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」のシンポジウム・プログラム

職：敬称： 省略

開催年月日 平成18年3月16日～17日

開催場所 日本大学理工学部船橋校舎13号館2階1325室

3月16日 シンポジウム:「理想的なX線像とその活用」

開会の辞	(9:50～10:00)	日本大学大学院総合科学研究科	佐藤 勇
招待講演	(10:00～10:50)		
パラメトリック X 線研究をふりかえる		広島大学大学院先端物質科学研究科	遠藤一太
コーヒブレーク	(10:50～11:05)		
特別講演	(11:05～12:25)		
北大に於けるパラメトリックX線の現状		北海道大学大学院工学研究科	秋本 正
リニアックと PXR による波長可変 X 線源の現状と展望		日本大学量子科学研究所	早川恭史
昼 食	(12:25～13:25)		
招待講演	(13:25～14:15)		
屈折原理による2D, 3DX 線画像の開発: 「放射光利用臨床・病理学診断の試み」		KEK:物質構造科学研究所	安藤正海
特別講演	(14:15～14:45)		
干渉計を用いた位相X線イメージング(医学生物学応用)		筑波大学大学院人間総合科学研究科	武田 徹
コーヒブレーク	(14:45～15:00)		
一般講演	(15:00～16:00)		
LEBRA-PXR と FEL の生体硬組織への応用研究 「-化石鉱物からインプラントまで-」		日本大学松戸歯学部	寒河江登志朗
PXRを用いた位相コントラストイメージング		日本大学理工学部	高橋由美子
屈折原理にもとづく X 線 CT の生体試料への応用		総合研究大学院大学先端科学研究科	橋本英子
自由討論	(16:00～16:20)		
研究施設見学	(16:20～17:20)		
懇親会	(17:30～19:00)	理工学部船橋校舎食堂(ダビンチ)	

KEK : 高エネルギー加速器研究機構

LEBRA: 電子線利用研究施設(日本大学)

3月17日 シンポジウム:「近赤外自由電子レーザー(FEL)とその活用」

基調報告 (10:00～10:30)

LEBRA Linacの特性	日本大学量子科学研究所	早川 建
----------------	-------------	------

一般講演 (10:30～11:10)

自由電子レーザー転写による機能性材料の直接描画	日本大学理工学部	鈴木 薫
-------------------------	----------	------

学術フロンテア(5年間)の成果と学術フロンテア継続(3年間) における生体高分子構造研究グループの展望	日本大学医学部	穴倉文夫
--	---------	------

コーヒブレーク (11:10～11:25)

一般講演 (11:25～12:25)

自由電子レーザー照射により生成した振動励起分子の Two-Color イオン化法による検出	日本大学工学部	奥山克彦
光励起によるフラーレンポリマーの合成	日本大学理工学部	岩田展幸
光エネルギーを利用した絶縁膜の低温成長	日本大学理工学部	稲野 正

昼食 (12:25～13:25)

基調報告 (13:25～13:55)

2005年度共同利用状況及び施設の現状	日本大学量子科学研究所	田中俊成
---------------------	-------------	------

一般講演 (13:55～14:35)

動物実験系を応用したレーザーの生物学的効果の検証	日本大学松戸歯学部	多田充裕
機能ゲノム科学応用による光照射生物学的効果の機序解明	日本大学松戸歯学部	柴田恭子

コーヒブレーク (14:35～14:50)

一般講演 (14:50～16:10)

レーザーアブレーション法による光機能性膜の開発と新装置試作研究	日本大学文理学部	石渡謙一郎
光機能性物質 SrTiO_3 と、高イオン導電体 $\text{AgI} \cdot \text{SrTiO}_3$ の物性研究	日本大学文理学部	藤代 史

LEBRA における生命科学系利用者に対する研究環境の整備状況	日本大学大学院総合科学研究科	桑田隆生
---------------------------------	----------------	------

LEBRA Linacのビーム自動調整	日本大学理工学部	中尾圭佐
---------------------	----------	------

自由討論 (16:10～16:30)

閉会の辞 (16:30～16:35)

LEBRA:電子線利用研究施設(日本大学)

講演要旨

招待講演

パラメトリック X 線 (PXR) とは

遠藤一太

広島大学大学院先端物質科学研究科

パラメトリック X 線の存在は 1960 年代に執筆(英語版は 1972 年発行)された TerMikaerian の電磁物理学の教科書に予言されているが、実験的に確認されたのは 1980 年代である。旧ソ連以外で PXR 実験を行ったのは、1991-2 年日米ほぼ同時であったらしい。相対論的エネルギーの電子線ビームを単結晶にあてるだけで単色エネルギーの X 線が出てくるので、実験は簡単である。

その後いろいろな条件で測定がおこなわれた。当初は発生メカニズム(理論式の妥当性)が興味を中心であった。偏光についても TerMikaerian の式であらわされる方向に見事に合致した直線偏光をしていることが実験的に証明された。実用的単色 X 線源とするには、なんとか強度増大の方法を考えねばならない。

広島大学では、1) 多層単結晶からの PXR 2) 薄い単結晶に多重回電子通過にともなう PXR。3) チャネリング放射と PXR の重畳 4) テクスチャー構造をもつ金属多結晶箔からの PXR について試みた。

特別講演

北大に於けるパラメトリック X 線の現状

秋本 正

北海道大学大学院工学研究科

45MeV 電子線型加速器 (LINAC) により、シリコン (Si) 単結晶を用いて 8~30keV パラメトリック X 線 (PXR) を発生した。PXR は単色性、指向性がよく、結晶を回転させることにより連続的にエネルギーを変えることができる、コヒーレントであるなど優れた特徴がある。PXR による良質の単色硬 X 線場の作成のための適切な条件、すなわち高強度で単色性のよい P X R を発生する条件を理論解析と実験により求めた。P X R の硬 X 線源としての利用の一例として PXR のエネルギー範囲に K 吸収端を持つ物質の光子の質量減衰係数測定を行った。これにより 8~30keV の領域の PXR による X 線標準場の作製のための基礎データを得、標準場作製のための諸要件を示した。また標的結晶の結晶性の評価への PXR の利用の一環として、結晶のオフ角の評価や PXR のエネルギー拡がりから標的結晶の格子歪みなどの評価への利用を検討した。

リニアックと PXR による波長可変 X 線源の現状と展望

早川 恭史

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) において、125MeV 電子リニアックとパラメトリック X 線放射 (PXR) を組み合わせた波長可変単色 X 線源を実現するためにシリコン単結晶を用いた 2 結晶型システムの開発を進め、2004 年 4 月に X 線ビームの取り出しに成功した。基礎的な特性研究が進むにつれ、2 結晶システムからの PXR ビームはイメージングに適しており、また PXR の持つ線形なエネルギー分散を利用した XAFS 測定の可能性が示唆されている。また、PXR の優れた空間コヒーレンシーにより完全結晶の回折を用いた位相コントラストイメージングを実現している。リニアックの制約としてビームデューティーが低いという問題はあるが、パルス構造の特性を生かしたポンププローブ的な手法や、高感度な X 線検出器の導入により、先進的で S/N 比の良い実験が期待できる。

招待講演

屈折原理による2D, 3DX 線画像の開発——放射光利用臨床・病理学診断の試み

安藤正海

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所（併任：総合研究大学院大学
高先端科学研究科 光科学専攻エネルギー加速器科学研究科 物質構造科学専攻）

放射光の医学利用専用光源へ向けて、高いコントラストによる関節軟骨と乳ガンの描画を目指して開発中である。我々のグループは(Ⅰ)X線暗視野法と(Ⅱ)X線CT用屈折原理にもとづくアルゴリズムを世界初考案した。これを用いて(Ⅰ)関節軟骨と乳ガン組織の高性能2次元X線画像を得た。さらに(Ⅱ)非浸潤性乳管ガン試料と肺胞の3次元像の合成に成功している。これらの理論背景、アルゴリズム、撮影されたX線画像を紹介したい。また被曝線量と医用画像専用放射光源について言及したい。

○Simple X Ray Dark- and Bright- Field Imaging Using Achromatic Laue Optics: M. Ando, A. Maksimenko, H. Sugiyama, W. Pattanasiriwisawa, K. Hyodo and C. Uyama, Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) L1016-L1018.

○Construction of X-ray Dark-Field Imaging with a View Size of 80 mm Square and First Visualization of Human Articular Cartilage at Femoral Head Under a Nearly Clinical Condition: M. Ando, H. Sugiyama, T. Kunisada, D. Shimao, K. Takeda, H. Hashizume and H. Inoue, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L1175 - L1177.

○Computed Tomographic Reconstruction Based on X-Ray Refraction Contrast: A. Maksimenko, M. Ando, H. Sugiyama, T. Yuasa, Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 124105-1~124105-3

○Attempt at Visualizing Breast Cancer with X-ray Dark Field Imaging: M. Ando, K. Yamasaki, F. Toyofuku, H. Sugiyama, C. Ohbayashi, G. Li, L. Pan, X. Jiang, W. Pattanasiriwisawa, D. Shimao, E. Hashimoto, T. Kimura, M. Tsuneyoshi, E. Ueno, K. Tokumori, A. Maksimenko, Y. Higashida, M. Hirano: Jpn. J. Appl. Phys. 44, (2005) L528-L531.

○Attempt at 2D Mapping of X-ray Fluorescence from Breast Cancer Tissue
M. Ando, K. Yamasaki, C. Ohbayashi, H. Esumi, K. Hyodo, H. Sugiyama, G. Li, A. Maksimenko and T. Kawai, Jpn. J. Appl. Phys. 44 (2005) L998-L1001.

○2D and 3D Visualization of Ductal Carcinoma in situ (DCIS) due to X-Ray Refraction Contrast: M. Ando, A. Maksimenko, T. Yuasa, E. Hashimoto, K. Yamasaki, C. Ohbayashi, H. Sugiyama, K. Hyodo, T. Kimura, H. Esumi, T. Akatsuka, G. Li, D. Xian and E. Ueno, Bioimages 13 (2005) 1-7.

○ルポ先端人：バイオニクス, 2 (2006) 20-22.

特別講演

干渉計を用いた位相イメージング

武田 徹、呉 勁、Thet-Thet-Lwin、米山明男¹、兵藤一行²、平井康晴¹
筑波大学大学院人間総合科学研究科、¹日立製作所基礎研究所、
²物質構造科学研究所

位相コントラスト X 線画像は、生体組織を構成する H,C,N,O 等の低元素物質に対し、非常に高感度で従来吸収法に比べて感度が約 1000 倍以上高い。我々は、種々の位相 X 線イメージング法の中で最も高感度な計測が可能な X 線干渉計を用いた生体イメージング装置の開発及び応用に関する研究を行っている。特に生体試料ではサイズが大きいものが多いため、大視野の画像が収集でき、試料を透過しやすい高エネルギー X 線で撮影できる X 線干渉計システムの開発が不可欠である。現在、撮影エネルギー 35keV で、25mm 角の視野が得られる一体型干渉計撮像装置と、生体の放射熱による影響を抑制できる分離型 X 線干渉計を用いた撮像装置が作られている。これらの装置を用い、ホルマリン固定生体試料(癌、種々の臓器)や、生きたヌードマウスに移植した大腸癌の観察にも成功している。ここでは、干渉計を用いた位相型 X 線撮影装置でどのような生体試料観察が可能か紹介する。

一般講演

LEBRA-PXR と FEL の生体硬組織への応用研究 「-化石鉱物からインプラントまで-」

寒河江登志朗(松戸歯学部、助教授)、早川 徹、岡田裕之、中田浩史(松戸歯学部、専任講師)佐藤由紀江(松戸歯学部、非常勤講師)、佐藤俊紀、浅賀知記、諏訪武利、豊田千枝、沼田靖子(松戸歯学部、大学院)、笥 光夫(明海大学歯学部、講師)、Prof. Racquel Z. LeGeros, Prof. John P. LeGeros (New York Univ.)

LEBRA が発生するパラメトリック X 線と自由電子レーザーを用いた生体組織に関する研究実験の中間報告を行う。LEBRA-PXR は多くの特性・特徴を有するが、X 線透過実験としてインプラントを埋入したウサギ脛骨および骨芽細胞様細胞培養実験で形成された細胞培養ディッシュ上のノジュールを撮影できた。現在は位相コントラスト法に挑戦している。LEBRA-PXR の波長可変性を利用して、化石恐竜卵殻中に Sr 元素による X 線吸収端を見出すことが出来た。LEBRA-PXR による X 線回折実験として、結晶鉱物を用いた基礎的な回折実験に成功した。LEBRA-FEL の波長可変性を利用して、歯の硬組織に対するレーザー ablation の波長依存性を観測できた。FEL power の同時モニター装置によって、歯のレーザー照射によるピット深さと power との相関を計ることが出来た。また、予備実験用 X 線回折装置によるいくつかの研究実験例を紹介する。

PXRを用いた位相コントラストイメージング

高橋由美子^a、早川恭史^b、桑田隆生^c、森 啓^d、高野良紀^a、飯田厚夫^e

^a日本大学理工学部、^b日本大学量子科学研究所、^c日本大学大学院総合科学研究科、

^d日本大学薬学部、^e高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所

PXRがパルス光源であることを利用した時分割測定、その指向性、コヒーレンシーによる位相差イメージング、波長可変性を活用した異常散乱測定とこれらの複合化システムを構築し、液晶・高分子などのソフトマターにおける階層的秩序形成過程、熱・電場・磁場などへの応答特性、反応過程を明らかにすることを目的として実験を行っている。

その中でも位相差イメージングは軽元素領域で吸収コントラストの約1000倍の感度が期待できるため、比較的軽い元素で構成されるソフトマターの内部構造観察に適している。今回は回折法によるイメージングの現状を中心としてこれまでの成果を報告する。

屈折原理にもとづくX線CTの生体試料への応用

橋本 英子^{*a}、マクシメンコ アントン^b、杉山 弘^{a, b}、兵藤 一行^{b, c}、島雄 大介^c、湯浅 哲也^c、

西野 義則^d、石川 哲也^d、新井 嘉則^e、安藤 正海^{a, b, c}

^a総合研究大学院大学先端科学研究科

^b高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所

^c総合研究大学院大学高エネルギー加速器科学研究科

^d山形大学工学部、^e理化学研究所播磨研究所、^f松本歯科大学歯学部

死亡率が増加しつつある乳ガンに注目し、その早期発見に向けた診断方法の開発をおこなっている。最近、我々のグループによって屈折原理3次元像再合成のためのCTアルゴリズムが開発された[1][2]。この手法は屈折コントラストを用いて画像化しているため、乳ガンを含む軟部組織についても高いコントラスト分解能が期待できる。実験は、PF BL14B および SPring-8 BL29XU で行った。入射X線のエネルギーは17.5keVである。試料を透過する際、試料各部で屈折を起こしたX線を Diffraction Enhanced Imaging (DEI) 法により角度分解する。試料には平面波を照射する必要があるため試料の前に非対称角 9.5° の Si(220)非対称結晶を配置し平面波を試料に供給する。アナライザーとして Si(220)対称反射結晶を用いた。検出器としてはピクセルサイズ 6.7 μm の CCD カメラを用いた。ゴニオメータ上に置いた試料は 0.1 度ずつ 180 度にわたって回転させ、各投影方向で撮影し、計算機に取り込んだ。

発表においては従来型の吸収コントラストによる同じ試料の CT とも比較する。

[1] A. Maksimenko, M. Ando, H. Sugiyama and T. Yuasa: Appl. Phys. Lett. **86** (2005) 124105.

[2] A. Maksimenko, M. Ando, H. Sugiyama and E. Hashimoto: Jpn J. Appl. Phys. **44** (2005) 633.

基調報告

LEBRA Linacの特性

早川 建

日本大学量子科学研究所

LEBRA Linac はこれまでの改良の結果、相当に安定な電子ビームを供給できるようになってきたが、いまだ十分とはいえず、FEL、PXR に不安定性を残している。この不安定性の原因を追求すべく、BPM、コアモニターなどを用いて、加速器とビーム輸送系に沿って、電子ビームの位置と電流値を監視した。得られたデータから、電子銃の放出電流が時間的に変動しており、これと加速エネルギー、電子銃付近の真空度との間に強い相関があることが見出された。また、加速管冷却水の温度変動が加速エネルギーを変化させることが明らかとなった。

一般講演

自由電子レーザー転写による機能性材料の直接描画

鈴木 薫

日本大学理工学部電気工学科

レーザー光を物質に照射すると瞬間的な加熱による爆発的な蒸発が生じる現象をアブレーションと言い、これは成膜面積が狭く不均一になりやすいと言う欠点がある。これを逆に利用した方法である、レーザ誘起前方転写法はドットマークをコンピュータ支援デザインにより、あらゆる機能性材料を直接的に微細な回路や素子として描画できる。機能性材料に固有な分子振動に共鳴吸収する波長を選択できる自由電子レーザーを光源とし、識別用蛍光剤を添加した生分解性樹脂のポリ乳酸を真珠核にマーキングする方法と、光歪素子への応用が期待される PLZT の直接描画について報告する。

学術フロンティア(5年間)の成果と学術フロンティア継続(3年間)における

生体高分子構造研究グループの展望

宍倉文夫^a、桑田隆生^b、高木 尚^c、鈴木知彦^d

^a日本大学医学部、^b日本大学大学院総合科学研究科、^c東北大学理学部、^d高知大学理学部

生体高分子構造研究グループの5年間に亘る学術フロンティアの成果は、次の2点である。アルダブラゾウガメの HbD の立体構造モデルの構築(PDB ID: 1V75, IWMU), アカムシの Hb V と Hb VII の立体構造モデルの構築(PDB ID: 1X3K と IX46)。学術フロンティア継続期間(平成17年度～19年度)に、脊椎動物(Ambystomamexicanum)の Hb と無脊椎動物(Haemadipsa zeylanica, Cryptogena soyoae)の Hb(共同研究:高知大・鈴木知彦教授)の立体構造の解明と他研究者(東北大・高木尚教授)と当該施設の利用研究を目指す。

自由電子レーザー照射により生成した振動励起分子の Two-Color イオン化法による検出

奥山 克彦^a、田中誠一^b、武田 敏治^b

^a 日本大学工学部物質化学工学科、^b 日本大学工学研究科物質化学工学専攻

自由電子レーザー(FEL)の優れたパフォーマンスを分子分光学において活用するためには、FEL 励起によって生成した振動励起分子を何らかの手段で検出しなければならない。

本研究では ArF エキシマーレーザーアシストによる(1+1') Two-Color イオン化法を試みた。ジェット冷却されたペリレン C₂₀H₁₂ を研究対象とし、3350 cm⁻¹ の CH 伸縮振動準位を中間状態とした。その結果、現段階では S/N=1 と決して大きなものではないが、検出の兆候を得たので報告する。

光励起によるフラーレンポリマーの合成

岩田展幸^a、山本寛^a、橋本亮二^b、安藤慎悟^b

^a 日本大学理工学部、^b 日本大学大学院理工学研究科

本研究の目的は、C₆₀ 分子同士を sp₃ 的な共有結合で 3 次元ポリマー化させることにより画期的な新材料を開発するところにある。本研究では全く新しいプロセスとして、光励起・援用によってホールドーピングと高分子化反応を同時に進行させることを試みた。レーザー照射で原子、分子結合を操作する場合、エネルギーが熱として散逸するため、その熱緩和プロセスよりも短い時間で処理する必要がある。自由電子レーザー (FEL) の、波長可変特性と ps オーダーの超短パルス、ハイパワーという特徴は、本研究の光源として有用であり、波長可変特性を生かしてポリマー化の波長依存性の検討も行った。

光エネルギーを利用した絶縁膜の低温成長

稲野 正^a、大西一功^b、高橋芳浩^b、海老原 司^a、西村 剛^c

^a 日本大学理工学研究科電子工学、^b 日本大学理工学部電子情報工学科、

^c 日本大学理工学部電子情報工学科

近年の半導体集積回路の微細化に伴い、シリコン酸化膜の薄膜化は限界に近づいており、誘電率が酸化膜より大きなシリコン窒化膜について注目されている。本研究では、低温プロセスにて良好な界面特性を有する窒化膜の製膜を目的に、紫外線による光励起反応を用いた直接窒化について検討を行った。Si 基板を低圧アンモニアガス雰囲気中に設置し、基板に向けて紫外線を導入した結果、基板温度 180℃ 以下で窒化が進行していることを確認した。窒化後の基板表面は強い耐酸化性を有することもわかった。また、作製された膜の電気伝導機構を評価した結果、Poole-Frenkel 伝導が支配的であることを確認した。

基調報告

2005年度共同利用状況及び施設の現状

田中俊成

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

2005年度の学術フロンティア推進事業における、2005年4月以降の電子線利用研究施設の加速器共同利用運転状況、および共同利用研究テーマのマシントime提供状況について報告する。また、自由電子レーザーの出力に関して、共振器ミラーの交換による効果と、1年以上にわたる自由電子レーザー利用の記録に基づく光出力の時間的推移について考察を行い、光出力の高いレベルでの安定供給を目指した加速器運転の参考としたい。

一般講演

動物実験系を応用した自由電子レーザーの生物学的効果の検証

多田 充裕^a、久保山 昇^b、木場 秀夫^c、岸川 道子^d

^a 日本大学松戸歯学部歯科総合診療学、^b 日本大学松戸歯学部口腔分子薬理学

^c 日本大学松戸歯学部口腔病理学、^d 日本大学松戸歯学部生化学・分子生物学

動物実験としてラットを用い、背部にⅡ型コラーゲンを抗原として皮内注射し、関節リウマチの疾患モデルとした。動物は1群3匹として3群にわけ、第1群は無処置群、第2群は初回感作と同時に実験終了まで数日おきにレーザー未照射で動物を固定するだけとした vehicle control 群、第3群は最終感作から数日おきにレーザー照射を行うレーザー照射群とした。実験期間中は、動物の一般状態を毎日観察し、週1回体重測定および膝関節部分の腫脹をノギスで測定した。その結果、レーザー照射群では、対照群と比較して腫脹が軽減しており、レーザー照射によって抗炎症効果が得られたものと考えられた。

機能ゲノム科学応用による光照射生物学的効果の機序解明

柴田恭子、安孫子宜光

日本大学松戸歯学部生化学・分子生物学

IL-18 は関節リュウマチの発症因子であることから、患者膝滑膜細胞樹立株 MH7A に IL-18 を作用させ、SuperLizer 照射(1050nm)および Dexamethasone 投与を行い、IL-8 の産生抑制モデル実験を構築した。培養細胞から mRNA を回収し Affymetrix Gene Chip (Focus Array; 8,500 遺伝子)を用いて、トランスクリプトーム解析を行い、さらに情報伝達系をコアとするデータベースツール(Ingenuity Pathway Analysis System; IPA)を用いて解析した。SL、Dex とともにキモカイイン遺伝子発現を抑制するが、Dex は多数の遺伝子発現を無秩序に変動させ、SL は選択的に変動させる傾向が認められた。

レーザーアブレーション法による光機能性膜の開発と新装置試作研究

石渡謙一郎^a、望月章介^a、飯野晃弘^b

^a日本大学文理学部、^b日本大学文理学部・4年

これまでに現有する Nd³⁺-YAG レーザーよりの第3高調波を用いて Eu₂O₃, SrTiO₃ ほかのナノ粒子膜と平滑膜の作製を行い、膜の形態、構造、光学的性質等を調べてきた。今回の講演では、これらについて概要を報告するとともに、量科研よりの研究費補助を得て試作し、現在調整・テスト中のマイクロ波プラズマアシステッドレーザーアブレーション装置の概要を報告する。

光機能性物質 SrTiO₃と高イオン導電体 AgI-SrTiO₃の物性研究

藤代 史^a、芝田浩平^b、石渡謙一郎^c、望月章介^c

^a日本大学大学院総合基礎科学研究科、^b日本大学文理学部 4 年、^c日本大学文理学部

量子常誘電体、紫外光誘起誘電率増強ほか興味深い現象を示すチタン酸ストロンチウム SrTiO₃ 単結晶と、この SrTiO₃ のナノ粒子を超イオン導電体であるヨウ化銀 AgI に分散して得られる高い伝導度を示す高イオン導電体の興味ある物性現象の研究成果を報告する。あわせて、赤外線レーザー光や X 線で誘起されるであろう現象を今後の利用計画との関連で述べる。

LEBRA における生命科学系利用者に対する研究環境の整備状況

桑田隆生^a、早川 建^b、田中俊成^b、早川恭史^b、境武志^a、野上杏子^b、佐藤勇^b

^a 日本大学大学院総合科学研究科、^b 日本大学量子科学研究所電子利用研究施設

日本大学電子線利用権施設では、自由電子レーザー及びパラメトリック X 線の開発を進めと共に、その共同利用に向けて研究環境の整備を進めてきた。結果、一部の利用研究に対してはその研究環境が整いつつあるが、現在、本格的な利用実験を開始していない研究者にとっては未だ研究環境が不十分、または未知の部分が多いのが現状である。本発表では、今後必要となる改善点を明確にするため、施設現有の実験設備・機器、特に生命科学分野に対する研究環境の整備状況を報告する。

LEBRA Linacのビーム自動調整

中尾圭佐^a、早川建^b、田中俊成^b、早川恭史^b、境武志^c、野上杏子^b、佐藤勇^c

^a 日本大学大学院理工学研究科、^b 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

^c 日本大学大学院総合科学研究科

加速器は、中心軌道と呼ばれる軌道をビームが通るものと仮定して設計される。しかし現実には、加速器を構成する機器の製作誤差、設置誤差、地磁気、外部磁場等の影響により、ビーム軌道を中心軌道に一致させることは難しい。ビーム軌道を補正するために、加速器およびビーム輸送ラインにステアリングコイルとビーム位置モニタ(BPM)が設置されている。これらを用いて、加速器の中心軌道に自動的にビームを通すシステムを開発した。本発表ではこのシステムの概要を報告する。

講演スライド集

平成17年度学術フロンティア推進事業(継続)
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」

シンポジウム:
「理想的なX線像とその活用」
「近赤外自由電子レーザーとその活用」

日本大学大学院総合科学研究科
佐藤 勇

平成18年3月16日~17日
日本大学理工学部船橋校舎13号館2階1325室

Policy

- ・私立大学でも実施できるプロジェクト規模
- ・実現性の高い研究開発を伴うもの
- ・学際的な学術研究を対象に実験ができる
- ・先端的な研究が可能
- ・具体的には加速器を基盤

プロジェクトの方向を探る
⇒歴史的バードウオッチ

19世紀の科学 (光と粒子)

赤外線 (1800) W.ハーシェル(英)

紫外線 (1801) リッター(独)

ブラウン運動 (1827) ブラウン(英)

蛍光 (1845) J.ハーシェル(英)

陰極線の蛍光作用 (1858) ブリュッカラー(独)

気体分子運動の基礎 (1859) マックスウエル(英)

光の電磁波説 (1861) マックスウエル(英)

陽子線 (1886) ゴルトシュタイン(独)

光電効果 (1887) ヘルツ(独)

電磁波の実験的証明 (1888) ヘルツ(独)

X線 (1895) レントゲン(独)

電子の存在確認 (1897) J.J.トムソン(英)

20世紀前半の科学 (よりミクロの世界へ)

原子模型の理論 (1904) 長岡半太郎(日)

陽子線分析 (1907) J.J.トムソン(英)

分子実在性の証明 (1908) ペラン(仏)

α粒子の実証 (1908) ラザフォード(ニ)、ロイズ(英)

原子核の存在 (1911) ラザフォード(ニ)

結晶によるX線回折 (1912) ラウエ(独)

コンプトン効果 (1922) コンプトン(米)

物質波の概念 (1923) ド・ブロイ(仏)

電子線の回折 (1927) デヴィソン(米)、G.P.トムソン(英)

サイクロトロン (1930) ローレンス、リビンガストン(米)

電子顕微鏡 (1931) クノル、ルスカ(独)

シンクロトロン (1945) マクミラン(米)、ベクスラー(ソ)

20世紀後半の科学（ミクロからマクロへ）

ATPの合成
DNAの構造決定
新粒子（ハジミ）発見
反陽子の創製
レーザーの発明
DNAの酵素合成
電子反ニュートリノの実証
クォーク理論
統一理論
J/ψの発見
τ粒子の発見
導電性高分子の発見
W、Z粒子の発見
フラーレンC₆₀の発見
光合成細菌反応中心の3次元構造
セノムの解明
カーボンナノチューブ発見

(1948) トット(英)
(1953) ワドソン(米)、クリック(英)
(1949-1959)
(1955) セグレ(伊)
(1958) シャーロー、タウンズ(米)
(1958) コーンバーグ(米)ら
(1959) ライナス(米)
(1964) ゲルマン(米)ら
(1967) ワインバーグ(米)、サラム
(1974) リヒター、テイン(米)
(1975) パール(米)
(1977) 白川英樹(日)、ビーガー(米)
(1983) ルビア(伊)ら
(1986) カール(米)ら
(1986) タイゼンホーファー(独)ら
(1992) 国際協力
(1995) 飯島達男(日)

電子線利用研究施設(LEBRA)の目標
125MeV電子リニアックの高度活用

赤外線からX線の波長領域まで同じ特色を保有

- 可変波長
- 高輝度
- 単色性
- コヒーレント

自由電子レーザーとパラメトリックX線の組合せ

研究課題名 「可変波長高輝度単色光源の高度利用」
学術フロンティア 14億1911万円 平成12～16年度
学術フロンティア(継続分) 2億9400万円 平成17～19年度

研究課題名と研究分担者

1. 可変波長単色光源の開発研究

波長可変単色X線源の開発（総括）
FELの開発自由電子レーザー(FEL)の短波長化
電子線形加速器の高性能化
パラメトリックX線(PXR)の高性能化
PXR計測系の高度化
共同利用実験システムの高性能化、
タンパク質の構造解析

佐藤 勇
早川 達
田中 俊成、境
早川 恭史
藤 啓
桑田 隆生
桑田 隆生

2.1 新素材・極微量定量方法の開発研究

FEL・PXR照射による3次元フラレンポリマーの合成、
FEL撮像薄膜形成プロセスの開発
FELアプレーションによる新機能性薄膜形成
PXRを用いた動的精密結晶構造解析

山本 寛
山本 寛
岩田 慶幸
高橋 由美子

2.2 新素材・極微量定量方法の開発研究

FEL・エキシマレーザーの2フロンティアによる
環境半導体成膜
PXRによるワイドバンドギャップ発光体のXAFS観測
MIS構造素子の放射線照射効果
FELによる半導体薄膜の生成
機能性膜化物の粉末X線回折
[FELによる物質の光誘起構造変化・光誘起
価数変化の研究とフォトモリ材料開発への
応用]
PXRを用いた高圧下におけるX線回折の研究

鈴木 薫
鈴木 薫
大西 一功
高橋 芳洋
内木 文男
望月 章介、浅地 哲夫
石渡 誠一郎
滝沢 武男、高橋 博樹
川上 隆輝
奥山 克彦、沼田 靖

3.1 生物学・医療・歯科医療の基礎研究

FELによる光の脳神経に与える影響・遺伝子損傷 石川 敏

一、近野 信次

虚血状態のグルタミン酸受容体動態 浅井 隆

単色X線の培養細胞に及ぼす放射線損傷 田中 良明、齋藤 孝

FELを用いた尿路結石砕石効果および生体組織 滝本 至得、吉田 利夫

に与える影響の検討 吉川 哲夫

生体高分子のX線結晶構造解析 大倉 文夫

分泌型 IgA構成成分の構造解析 茂呂 周、浅野正岳

骨質生用スキャホールドの多孔性化における FELの応用 西山 賢、佐藤 吉則

PRP内の骨芽細胞分化因子タンパク質の 深瀬 蔵公

立体構造解析 清水 典佳、石丸 9

自由電子レーザーの生物学的効果に関する研究 「組織再生および抗炎症効果の検討」

電子

近赤外自由電子レーザーの実用化

普通の電子リニアックの100MeV超の電子ビームの高品質化に成功 ⇒ 短波長FELの可能性

- ・ 単RF窓短パルスクライストロンの長パルス稼働
- ・ 電子ビームの低エミッタンス化
- ・ パルス電源の超安定化
- ・ 高周波の位相安定化
- ・ 電子エネルギーのオクタブ可変
- ・ 電子ビームのパンチ圧縮
- ・ 光空洞共振器に銅鏡
- ・ モニターの強化

11

3.2 生物学・医療・歯科医療の基礎研究

金属タンパク質のNO補捉能の解明 奥 忠武

「機能ゲノム科学の応用による自由電子レーザー」

生物学的効果の機序解明」 安孫子 宣光、柴田 森子

FELによる骨質蒸散後の構造変化について 池見 老司、深澤 正幹

IPXR-XFDによる生体結晶の構造解析、 森河江 登志

朗、中田 浩史

PXR-XAFSによる生体組織の微細構造解析、 早川 徹

広領域FELレーザーの生体物質・生体代替材料 に対するablation効果の研究」

Spike FELレーザーを利用した細胞と生体物質 志朗、中田 浩史

の分析 森河江 登

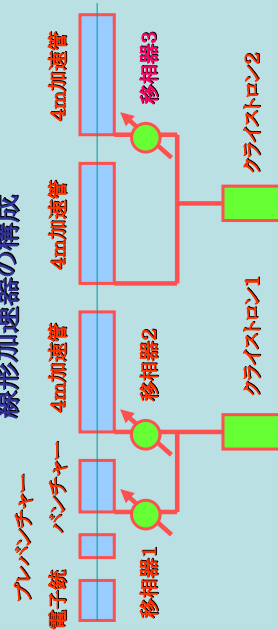
「自由電子レーザー、レーザー波長、生物学的効果、 炎症、疼痛、創傷治癒、骨形成、Gene-Chip、MALDI-TOF-MS、機能ゲノム科学」

多田 充裕、岸川 道子

岡田 裕之

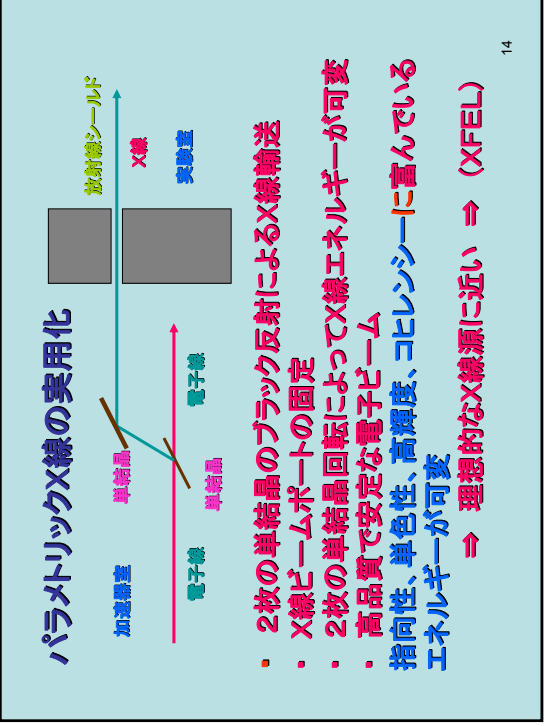
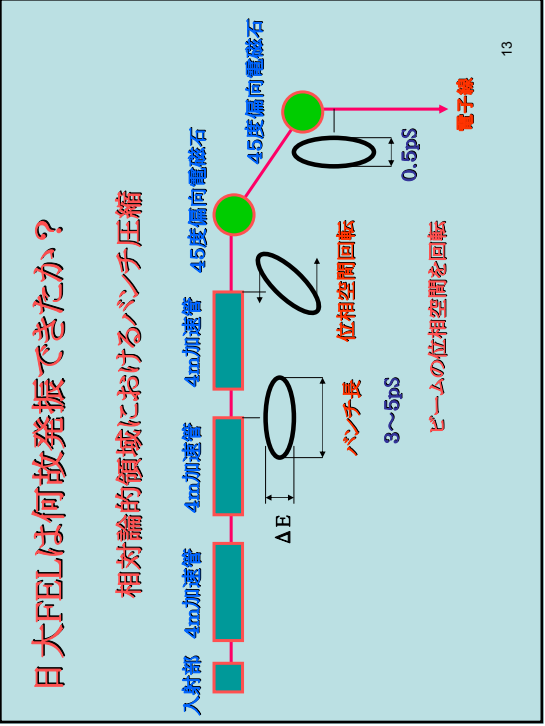
普通の電子線型加速器 ⇒ 短波長FEL発振

線形加速器の構成



植敷のクライストロンによる安定な短波長FELの発生
⇒ XFELの可能性における実証試験

12



本シンポジウムの趣旨

コンパクトな光源の実現(安価で高性能)
⇒ 社会的認識が薄い
(啓蒙の必要性)

周期性の活用(単結晶)
⇒ 理想的なX線源に繋がる？

理想的なX線源で何が分かるか？
⇒ その活用方法は？

周期性の活用(アンジュレーター)
⇒ 理想的なレーザーなのか？

まとめ

19世紀の科学 (光と粒子)
20世紀前半の科学 (よりミクロの世界へ)
20世紀後半の科学 (ミクロからマクロへ)
21世紀の科学 (超分子の生成と機能の解明)

超分子の生成 : 可視光から近赤外線
(多水素結合)

軽い元素で構成される : 理想的なX線による
超分子の内部構造 3次元構造解析

赤外線からX線まで ⇒ 可変波長、単色、コヒーレント光源が実現

理想的な光源の実現に一歩近づいたとの認識

パラメトリックX線研究を ふりかえる

遠藤一太

平成18年3月16日

日大シンポジウム

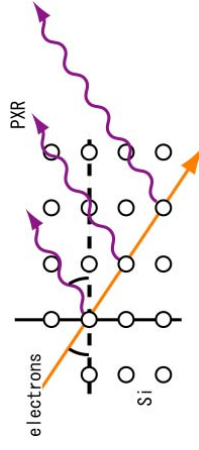
1

なぜ？

- TerMikaelianの教科書(英語版1972年)に記載されている。(相対論的電子の物質中の放射)
- 真空中の等速直線運動 → 放射なし
- 一様な物質中 → チェレンコフ放射の可能性
- 電子の進行方向に誘電率が1次的に変化 → トランジション放射
- 誘電率が3次的に変化するとき
 - ・ 小角度 → コヒーレント制動放射
 - ・ 大角度 → PXR

3

パラメトリックX線(PXR)



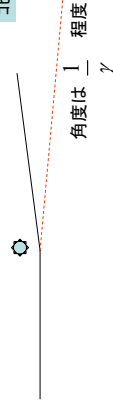
・パラメトリックX線とは、結晶に高速電子が入射した時に、ブラッグ条件とほぼ同じ角度・エネルギーで放射される単色X線

2

素過程で考えると

制動放射

単結晶中では干渉効果で
コヒーレント制動放射がおこる



分極放射

単結晶中では干渉効果で
パラメトリックX線が発生

(量子論的定式化・・・H.Nitta)

4

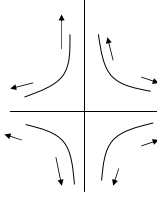
別の言い方

- 仮想光子のX線回折
- 結晶中の分散関係の特徴によりX線領域でおこるチェレンコフ放射

5

原理的問題

- 高次効果 (e.g. Barishevskii's Formula)
dynamical theory
制動放射のdiffraction
transition radiation の diffraction
 - 通常影響小
- 偏光
 - TerMikaelianの式に一致



6

実用的問題

- エネルギー分解能は？
 - PXRピーク内でも光子エネルギーはブラッグ角からわずかに比例してエネルギーが変化する。(スリットでしぼるとエネルギー幅が狭まるー>無限小幅では？)
- 偏光度は？
- 強度は？――>電子あたりの光子数少ない
 - 大強度電子ビームに結晶が耐えられるか？
 - 多重回衝突
 - 多層結晶板(コヒーレントラジエーション放射の併用)

7

広大グループの実験の歴史

- PXRの結晶温度依存性(トムスク)
- PXRの絶対強度と多重散乱の影響(核研)
- 角度分布(核理研)
- 結晶厚さ依存性(核研)
- Ge結晶からのPXR; K吸収端付近での振舞い(核研)
- 電子多重回通過(トムスク)
- 多層単結晶(核研、広島)
- チャネリング条件下でのPXR(核研、広島)
- テクチャー構造をもつ多結晶からのPXR(広島)
- ビーム強度モニタとしての利用(核研)
- 内部標準的有效サイズ測定への応用(核研)

8

Radiation from Textured Polycrystal

Presented at Belgorod W.S. (Sep. 2004)
by I. Endo
based on the collaboration with
C. Moriyoshi, A. Shchagin,
Y. Takabayashi, K. Ueda,

9

700MeV Storage Ring

電子蓄積リング

150MeV Microtron

超高速電子周回装置

放射線干渉計設置ライン

電子ビーム発生装置

電子ビーム輸送ライン

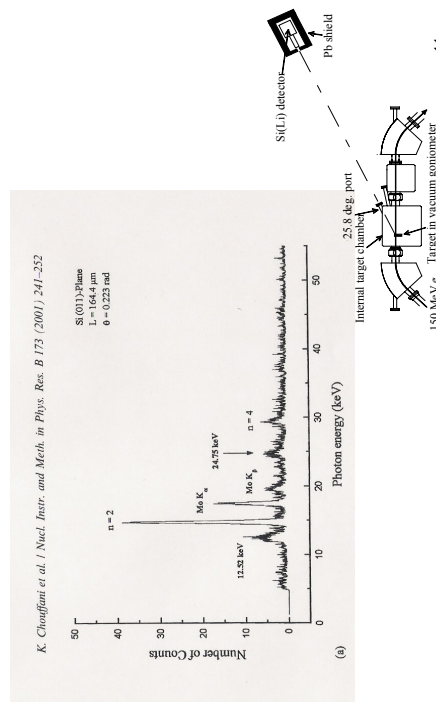
放射線干渉計設置ライン

放射線干渉計設置ライン

放射線干渉計設置ライン

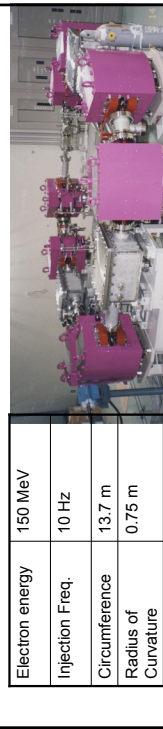
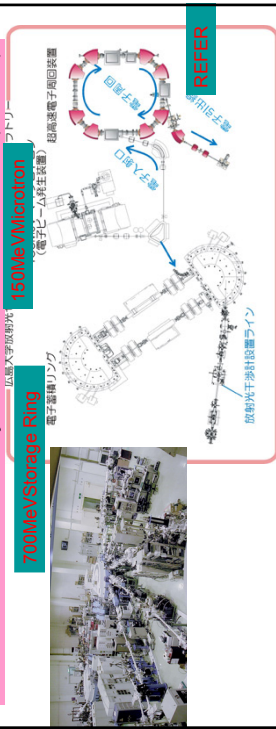
Electron energy	150 MeV
Injection Freq.	10 Hz
Circumference	13.7 m
Radius of Curvature	0.75 m

First Result from REFER: PXR from Si crystalline foiles+ Mo



11

Relativistic Electron Facility for Education and Research (REFER)



NIMB 49847 13 March 2004 Disk used ARTICLE IN PRESS No. of Pages 5, DTD=4.3.1

Available online at www.sciencedirect.com
SCIENCE @ DIRECT®
NIMB
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B xxx (2014) xxx-xxx
www.elsevier.com/locate/nimb

Letter to the Editor

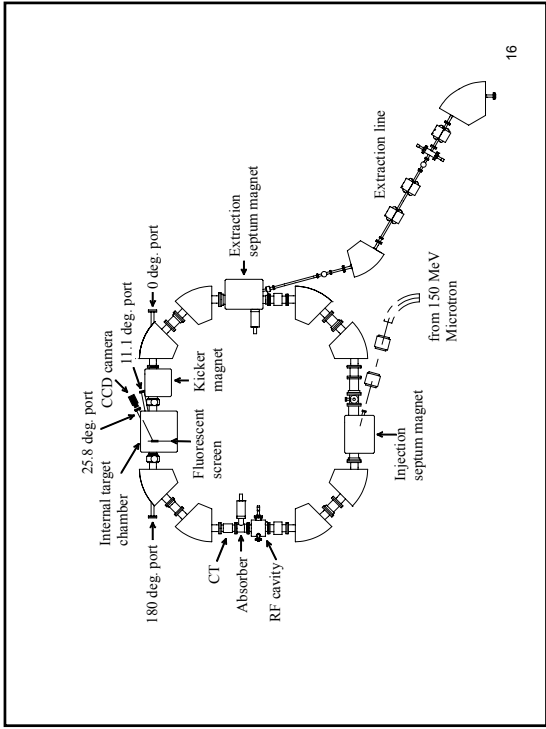
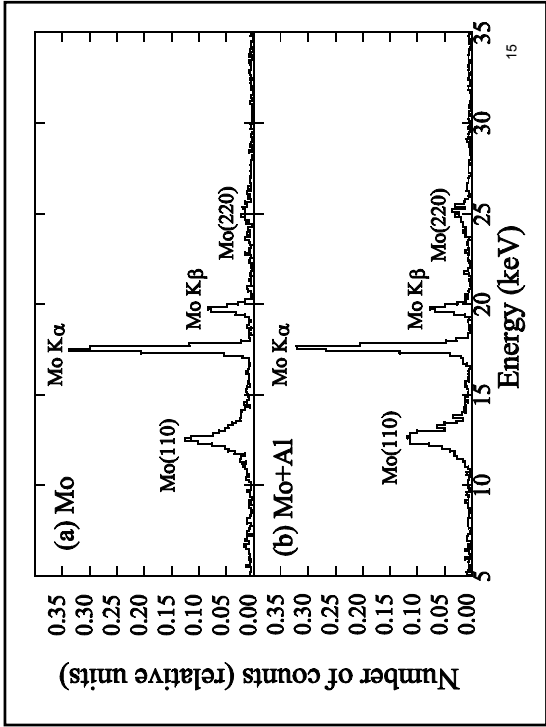
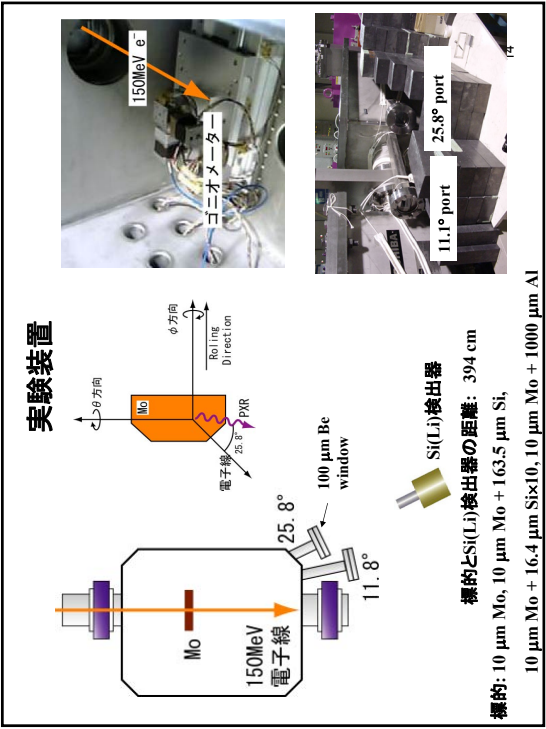
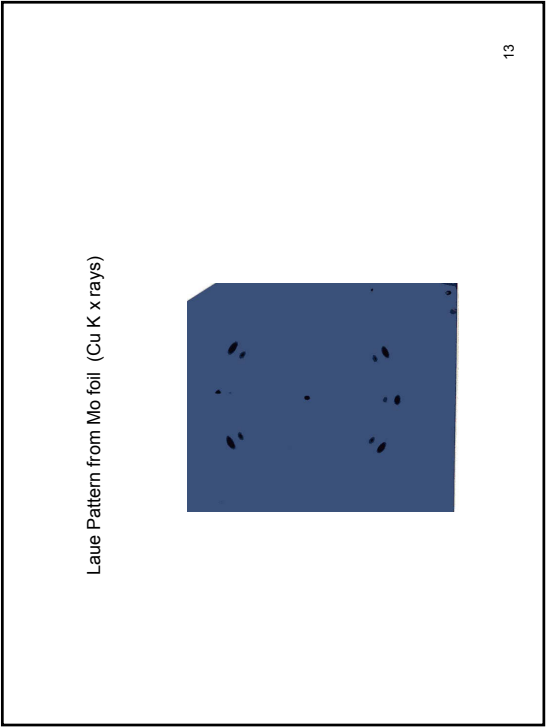
On the origin of mysterious X-ray spectral peaks observed at the REFER electron ring

I. Endo^{a,*}, D. Iseki^{a,1}, T. Ohnishi^a, C. Moriyoshi^b, A.V. Shchagin^{c,2}

^a Graduate School of Advanced Sciences of Matter, Hiroshima University, 1-3-1, Kagurizaka, Higashi-Hiroshima 738-8510, Japan
^b Graduate School of Science, Hiroshima University, 1-3-1, Kagurizaka, Higashi-Hiroshima 738-8526, Japan
^c VPL, Hiroshima University, 2-3-1, Kagurizaka, Higashi-Hiroshima 738-8527, Japan

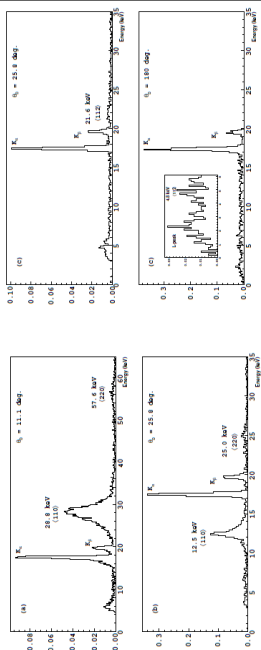
Received 7 January 2004

12

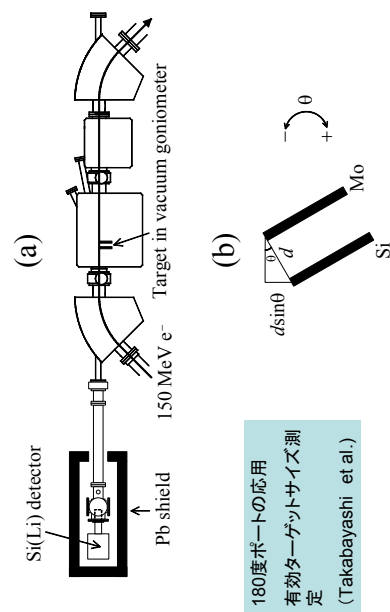


最近、11.1度ポートでも測定した(約30keVのX線)

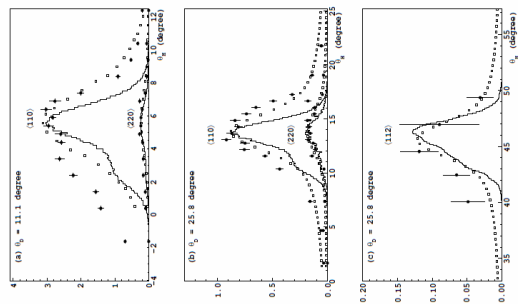
S.A. Nawang et al.



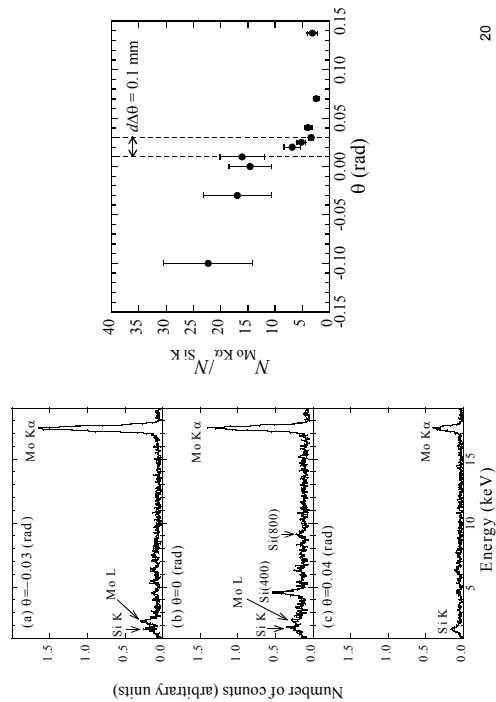
17



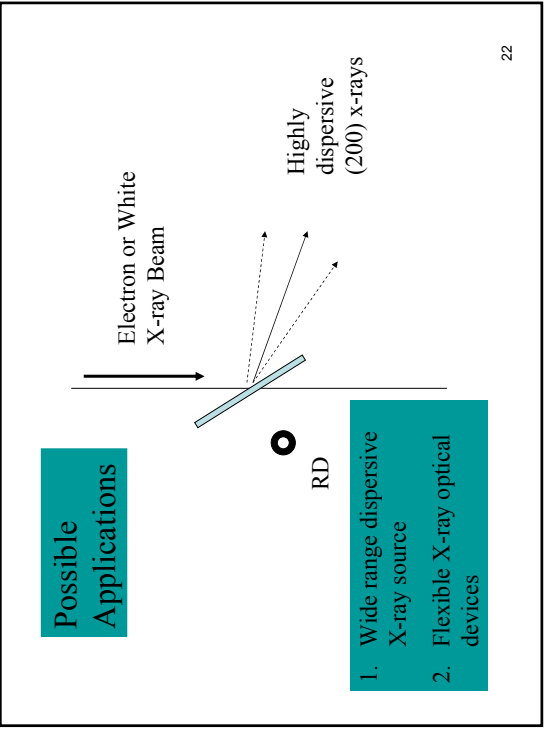
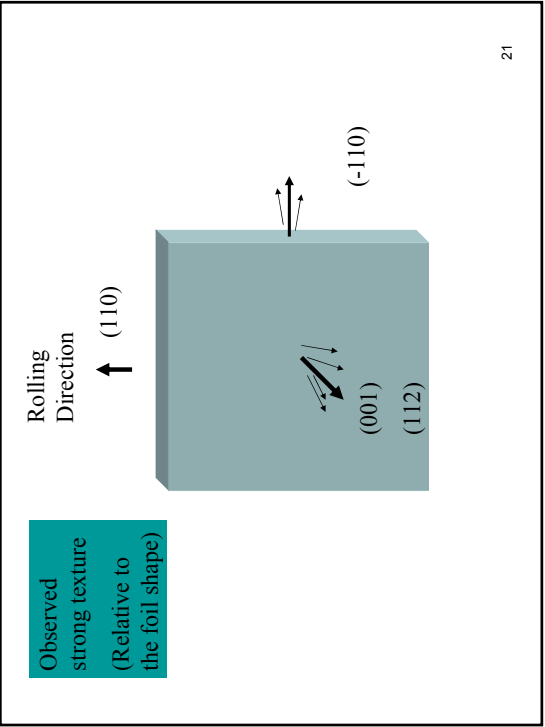
19



18



20



おわりに

- いよいよ実用化にむけて

23

北大におけるパラメトリックX線の現状

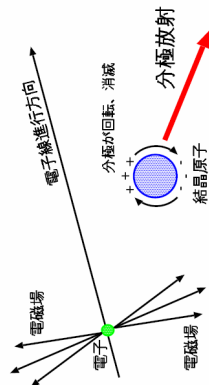
北海道大学大学院工学研究科
秋本正

日本大学理工学部船橋校舎
平成18年3月16日

1

PXRの発生

- 分極放射
 - 入射荷電粒子の電磁場により、媒質原子が分極し、その分極が回転、消滅する際に光子を発生する
- 分極放射が、結晶構造により干渉しPXRとなる



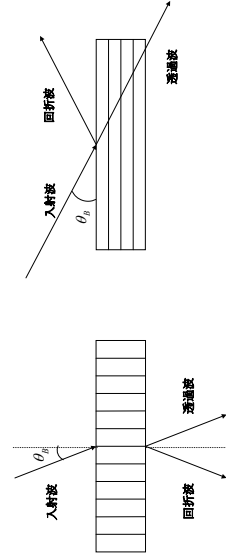
3

内容

1. 緒言
PXRの発生と特徴
PXRの利用
2. 目的
PXRの発生条件
強度
単色度
3. 実験
PXRの発生条件
PXRの利用例
4. 結言

2

結晶配置 (ラウエケースとブラッグケース)



ラウエケース

ブラッグケース

4

PXRの特徴

- 単色性がよい
- 標的結晶を回転することで、X線エネルギーを連続的に変化させることができる

$$E = \hbar \frac{bv \sin \phi}{1 - \beta \cos \theta}$$

- X線エネルギーは入射荷電粒子のエネルギーには依存しない
- コヒーレント光である
- 指向性がよい
- 小型加速器でも、ビーム上に結晶を置くだけで、容易に硬X線が発生可能

5

PXRの利用

- エネルギー連続可変の単色硬X線源
 - 物質の質量減衰係数の測定
 - 硬X線領域のX線標準場
 - コヒーレント源としての利用
- 測定データから標的結晶の特性を解析

6

PXRの特性に影響を与える因子

	LINAC	ターゲット	検出器
強度特性	電子エネルギー 電流 パルス幅	種類 厚さ 材質 結晶回転角	検出角
エネルギー特性	電子エネルギー 電流	種類 厚さ 材質 結晶回転角	検出角

7

実験の概要

1. 結晶を回転させたときの变化 (結晶回転角依存性)
2. X線検出器の角度 (観測角度)を変えたときの变化 (検出角依存性)
3. 電子エネルギーを変えたときの变化 (電子エネルギー依存性)
4. 電流を変えたときの变化 (電流依存性)
5. 結晶の厚さを変えたときの变化
6. PXRのエネルギー特性 (単色性)
7. ターゲット結晶の種類を変えたときの变化

8

実験

①8~30keV領域のPXRの発生

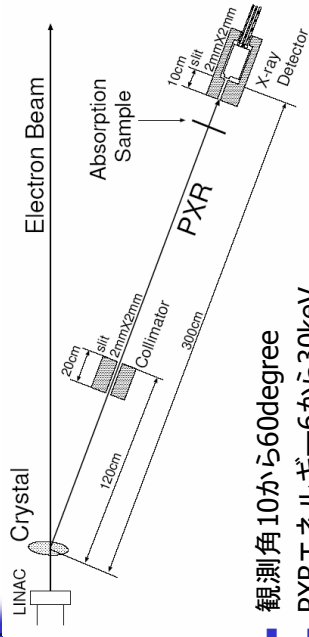
- 結晶回転角依存性
 - 検出角依存性
 - 結晶厚さ依存性
- 等の測定により、PXRの強度・エネルギー特性を評価

②PXRの利用

- 種々の材料の質量減衰係数の測定
- ターゲット試料のオフ角の測定
- 質量減衰係数測定による標的結晶の結晶性の評価

9

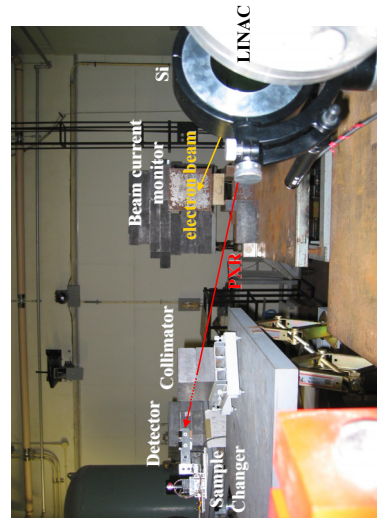
実験体系



- 観測角10から60degree
- PXRエネルギー6から30keV

10

実験体系



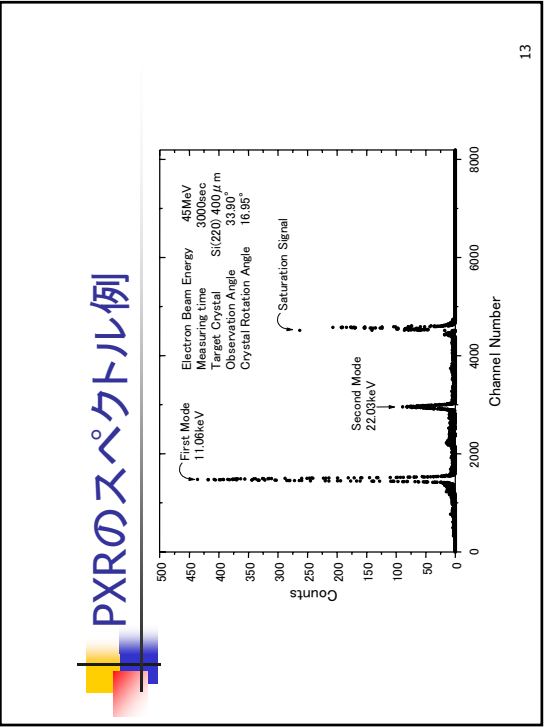
11

検出器: AMPTEK社XR-100T

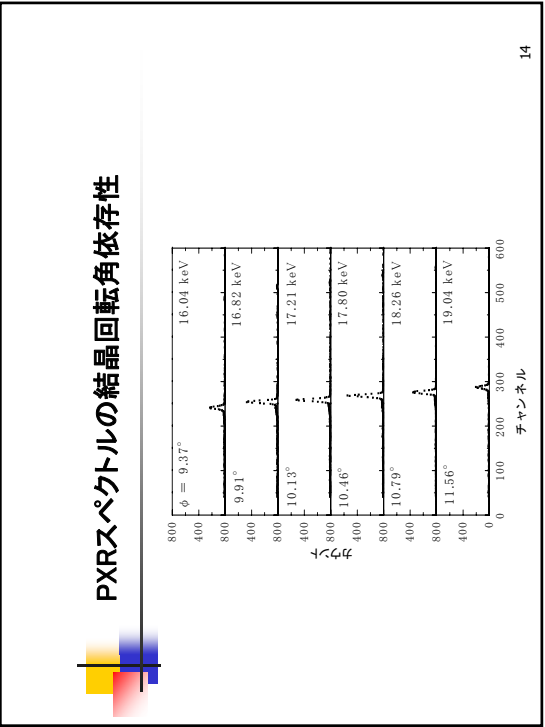


検出器の型: Si-PINフォトダイオード
検出器の大きさ: 13mm²
検出器の厚さ: 500 μm
検出器窓: Be (25 μm)

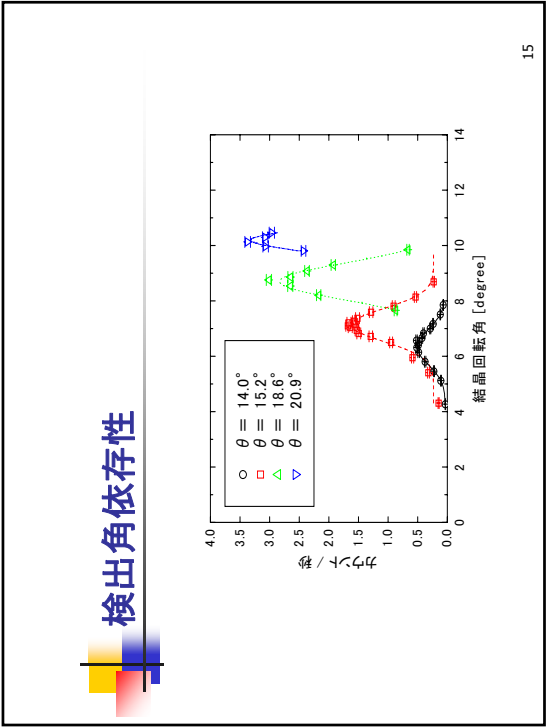
12



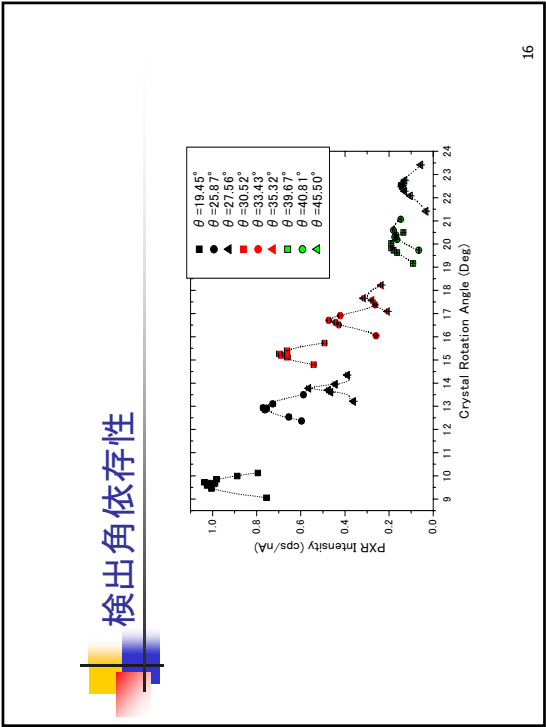
13



14

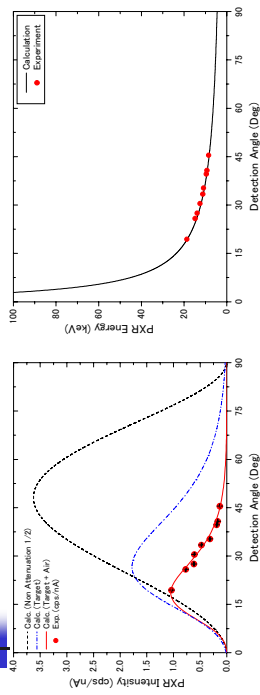


15



16

PXRの検出角依存性

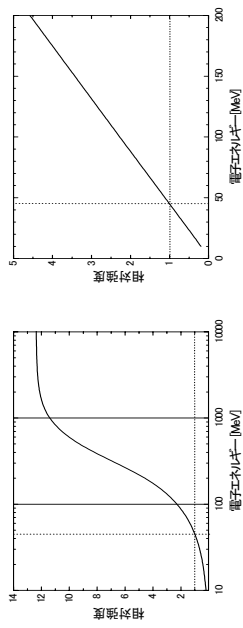


強度 : 20° 付近で最大 (※Si(220)、400 μ m)

エネルギー : 検出角が大きくなるにつれて減少

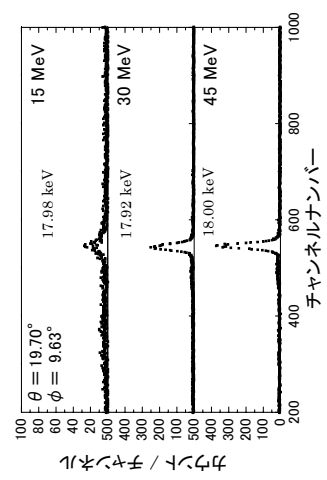
17

PXR放射強度の電子エネルギー依存性



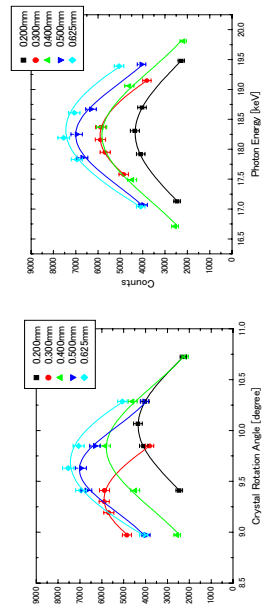
18

電子エネルギー依存性



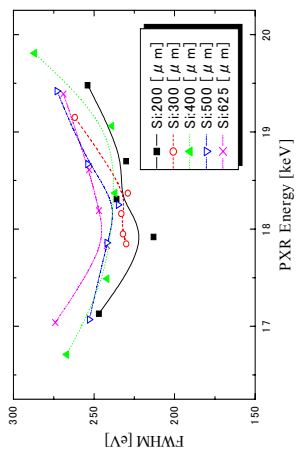
19

PXR計数の結晶厚さ依存性 (Si)



20

結晶の厚さとPXRエネルギーの拡がりの関係



21

質量吸収係数測定試料

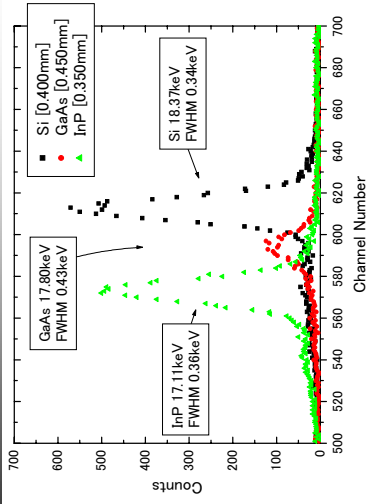
- 硬X線領域にK吸収端エネルギーを持つ物質

	K吸収端 (keV)
Mo	20.002
Nb	18.987
Zr	17.998
Ge	11.103
GaAs	11.867 (As)
	10.367 (Ge)
Ni	8.333

- K吸収端近傍で質量減衰係数の測定

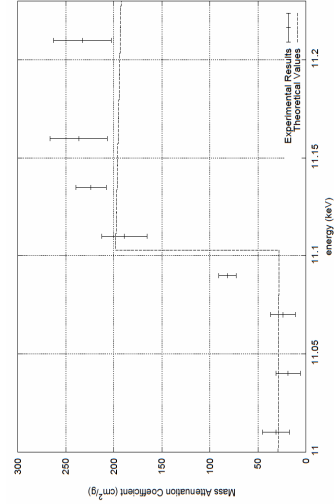
23

Si, GaAsおよびInPから発生するPXRスペクトルの比較



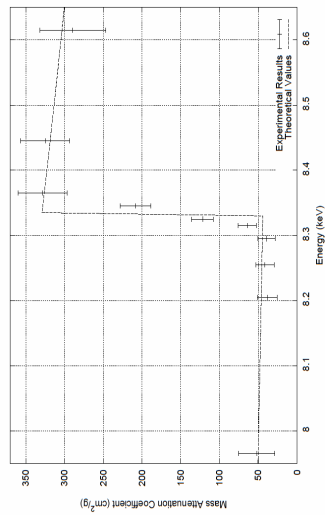
22

Geの測定結果



24

Niの測定結果



25

PXR-X線を用いた標準場の概要(1)

- 供給可能なX線のエネルギー範囲
- 単色度 (FWHMのパルス校正値から逆算)
- X線強度 (光子フルエンス率での表記が望ましい)
- X線強度の角度依存性
 - (X線強度のエネルギー依存性と同義)
- 高次放射線の寄与に関する角度依存性
 - (絶対寄与率での評価要)
- 制動放射線の寄与に関する角度依存性
 - (絶対寄与率での評価要)

27

結言(1)

- PXRを用いて、微小なエネルギー間隔で質量減衰係数を測定できた
- 数keVから数十keVの領域でエネルギー連続可変な単色硬X線源として利用可能
 - 硬X線領域の標準場の作成
 - 医学分野におけるX線イメージング法の検討
 - コヒーレント性を利用した位相コントラスト法
 - X線光電子分光やX線吸収微細構造分析の検討

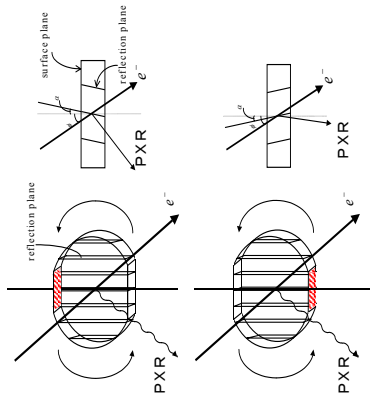
26

PXR-X線を用いた標準場の概要(2)

- 散乱線の寄与に関する角度依存性
 - (絶対寄与率での評価要)
- X線強度の時間安定度
- X線強度の温度安定度
- 産総研と相互比較した低エネルギー用小型電離箱を用いた場の照射線量値付け (C/kg換算)
- 検定済みRIとの線量率比較時における幾何効率補正手法
- 照射サービース時の線量率モニタ方法

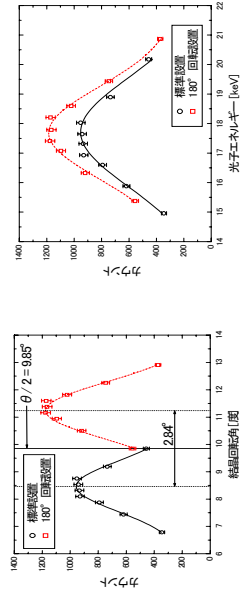
28

結晶試料の模式図



29

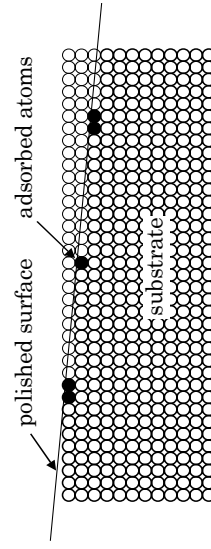
GaAs試料のオフ角の測定



オフ角 1.42°

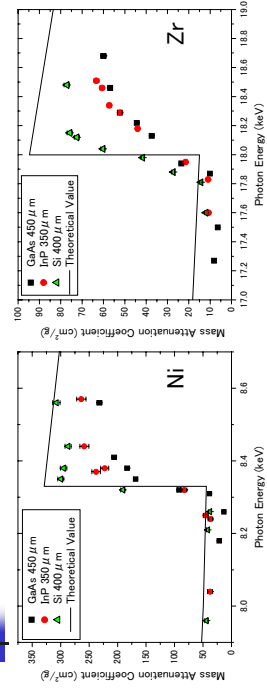
30

結晶基板の模式図



31

PXRによる標的結晶の評価



標的結晶によってPXRのエネルギー広がり大きさが異なる

結晶性の評価がPXRで行える

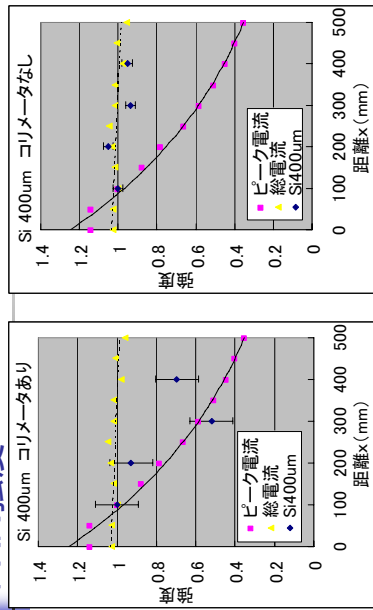
32

結言(2)

- K吸収端での質量減衰係数の変化に幅が見られる
 - PXRのエネルギー拡がり原因
 - 実験体系の幾何学的要因
 - 入射電子線の拡がり
 - 標的結晶の不完全性
- 標的結晶の結晶性の評価

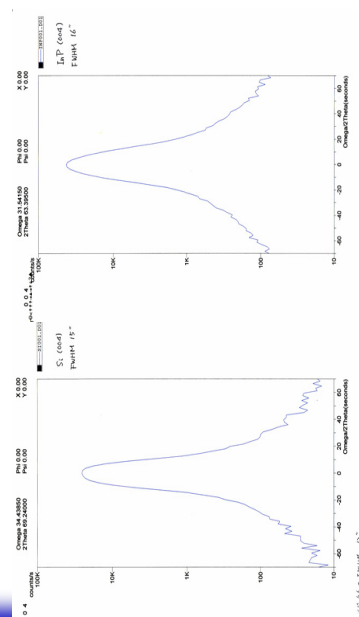
33

PXR強度



34

Si、InP(004)のロッキング曲線



35

リニアックとPXRによる波長可変X線源 の現状と展望

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA)

早川 恭史

2006年3月16日 シンポジウム「理想的なX線源とその活用」

1

LEBRA

LEBRA放射光計画

波長可変単色光源の開発

- > 可視～紫外自由電子レーザ (FEL)
 - ↓ アンジュレータ磁場劣化、短波長FELの難しさ
- > 近赤外FELに変更
 - 発振波長: 1～6 μm
- > アンジュレータ放射光・FEL高調波
 - 近赤外～可視光(3次、5次高調波)

波長可変単色X線源の要望が強い

(電子エネルギーの制約でアンジュレータ等では実現が困難)

3

LEBRA

電子線利用研究施設 (LEBRA)

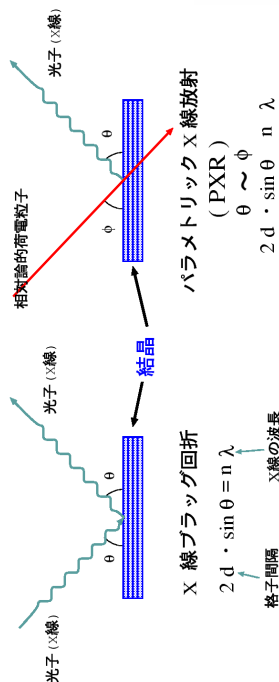
Laboratory for Electron Beam Research and Application
Nihon University

S-band 電子線形成加速器	
最大エネルギー	125 MeV 100MeV(typ.)
マクロパルスビーム電流	100 mA
マクロパルス幅	≤ 20 μs
繰り返し	12.5 Hz 2Hz (typ.)
最大平均電流	25 μA
ΔE/E	～ 1%
規格化エミッタンス	～15π mm mrad



LEBRA

パラメトリックX線放射 (PXR)



パラメトリックX線放射 (PXR)

数10～100MeV程度の電子でX線の発生が可能
結晶の回転により波長を連続的に変えられる

4

LEBRA

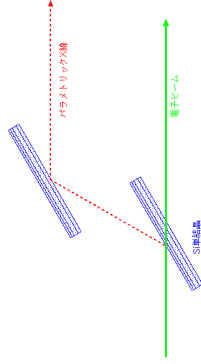
X線源としてのPXRRの特色

- 電子エネルギー数10〜100MeV程度で波長可変単色X線が得られる
- 電子ビームがターゲット結晶により劣化ビームの再利用には制約（ビーム使い捨て）
中規模電子リニアック向きの放射源
- X線のエネルギー（波長）に応じて放出方向が変わる
波長可変X線源としては何らかの工夫が必要

5

LEBRA

完全結晶を用いたPXRRの輸送

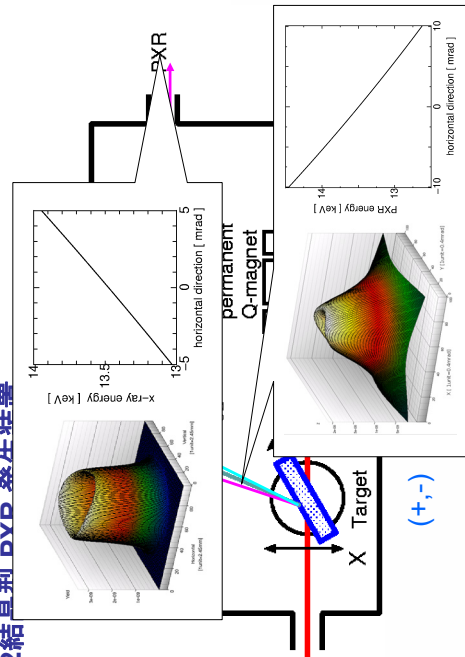


- 基礎実験で確認されたPXRRの特性（強度分布、エネルギー分布）は運動学的理論と良く一致
- 完全結晶によるX線動力学的回折理論は確立されている
→ これらの組み合わせによる光線追跡計算で検討

6

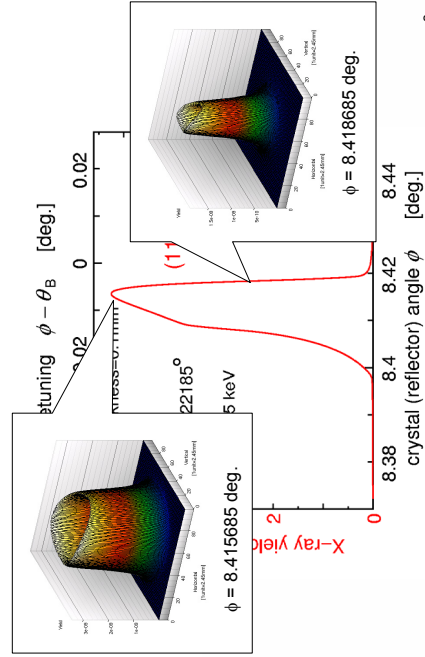
LEBRA

2結晶型PXRR発生装置



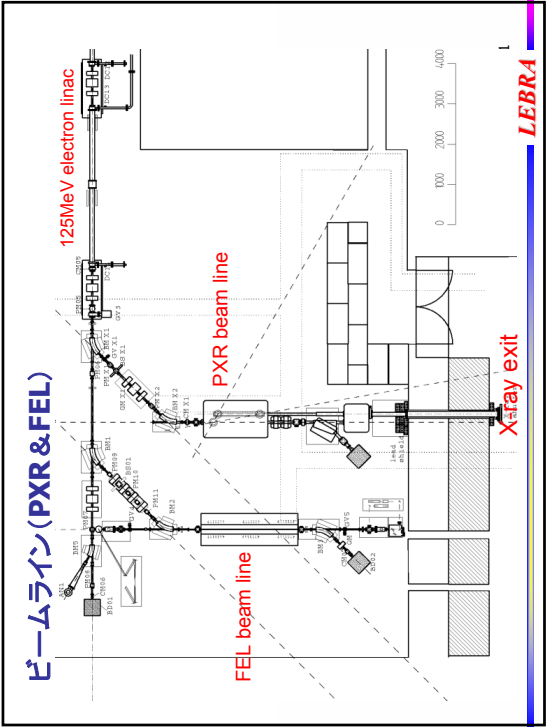
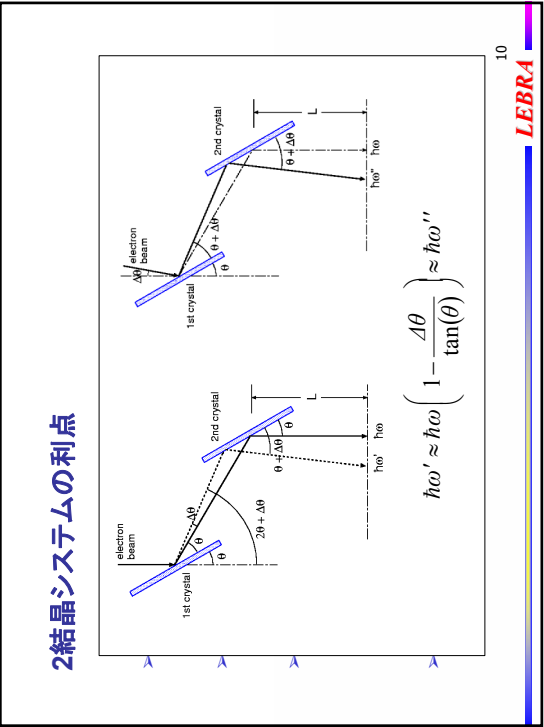
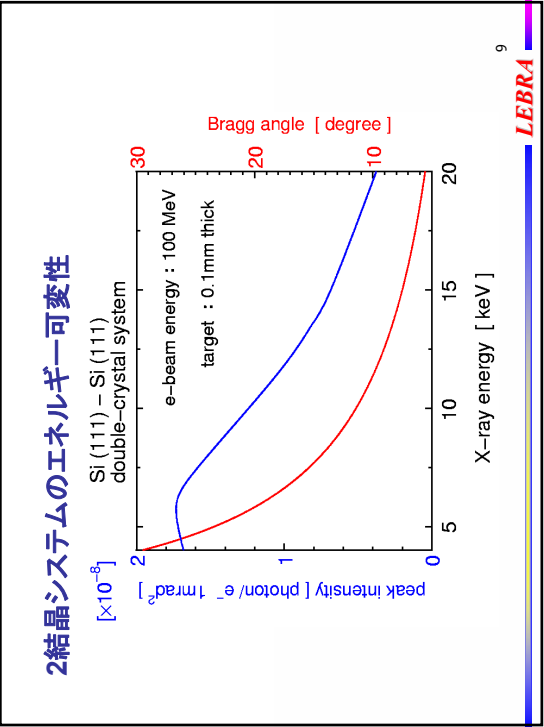
LEBRA

第2結晶による回折

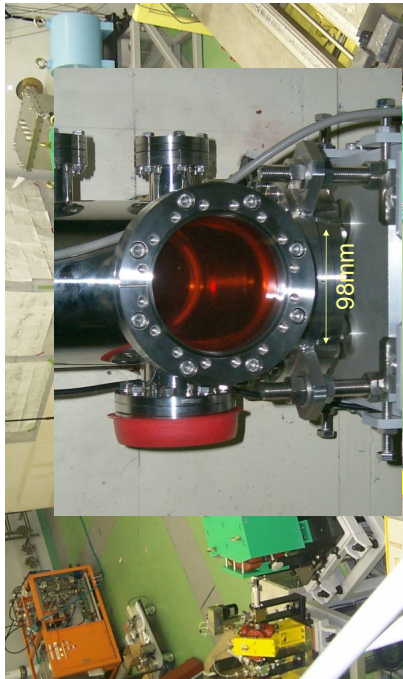


8

LEBRA



PXRビームライン & X線取り出しレポート



13

LEBRA

PXR発生装置のスペック

ゴニオメータ

axis	range	resolution
θ_z (回転)	+5.5 ~ +35 deg.	11.6 μ rad
θ_x (スイベル)	-10 ~ +10 deg.	52.4 μ rad
θ_y (スイベル)	-10 ~ +10 deg.	35 μ rad
γ (並進)	-10 ~ +1030 mm	5 μ m

PXR エネルギー範囲

Si (111)	3.95 ~ 20.6 keV
Si (220)	6.46 ~ 33.6 keV

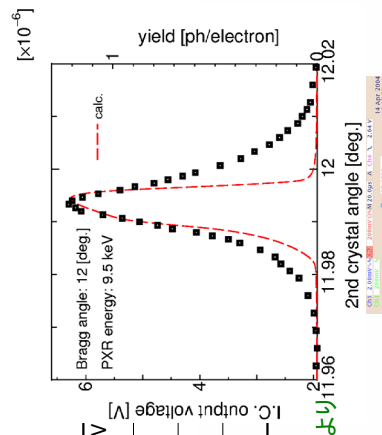
14

LEBRA

PXRビーム初観測

Apr. 14th, 2004

electron energy	100 MeV
beam current	90mA
macropulse	20 μ s
repetition rate	2Hz

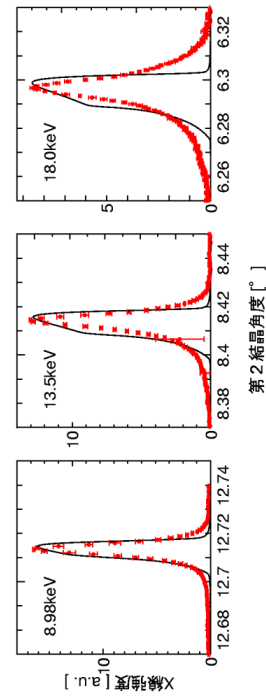


第2結晶角度スキャンにより
電離箱出力が変化

15

LEBRA

第2結晶角度への依存性



高エネルギーになるに従って角度幅が広がる傾向
理論計算(光線追跡)の結果と整合

16

LEBRA

9.5keV

16keV

18.8keV

PXRによるX線透過像

Polaroid Type 57(ISO3000)

X線エネルギー範囲(実績): 6keV - 20keV

LEBRA

17

8.0 keV

11.0 keV

14.5 keV

PXRビームプロファイル

結晶内での電子の多重散乱による
PXRプロファイルの均一化を示唆

LEBRA

18

54m

ICカード

イメージングプレート(IP)による撮像

LEBRA

19

AgBrのBr-K吸収端 (13.47keV)

K吸収端によるコントラスト

Cu (K-edge: 8.981keV)

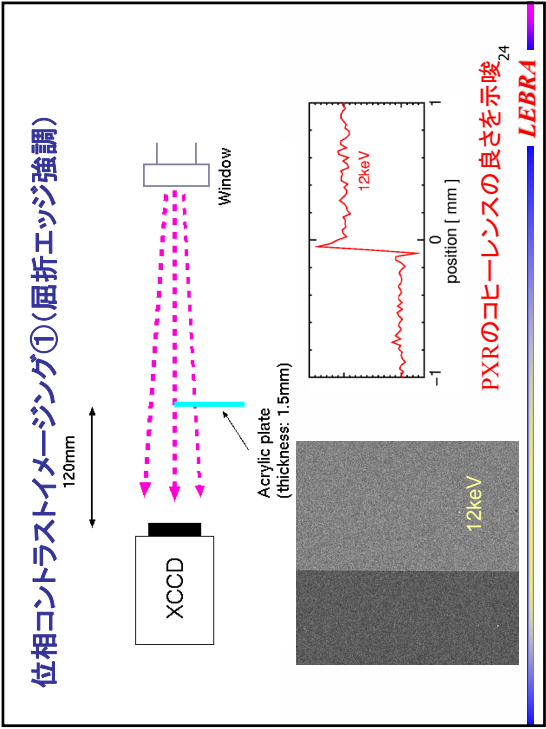
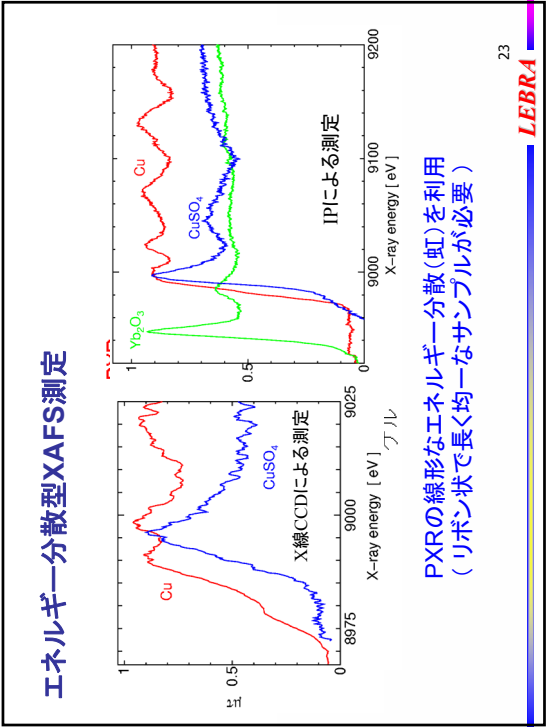
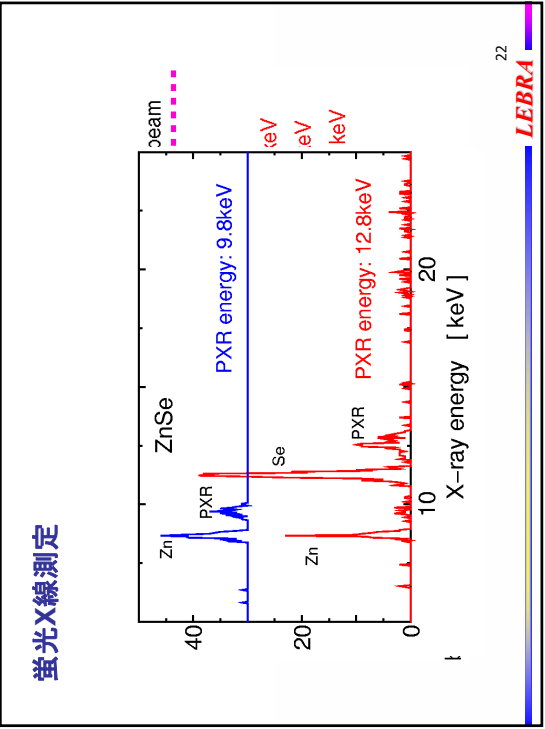
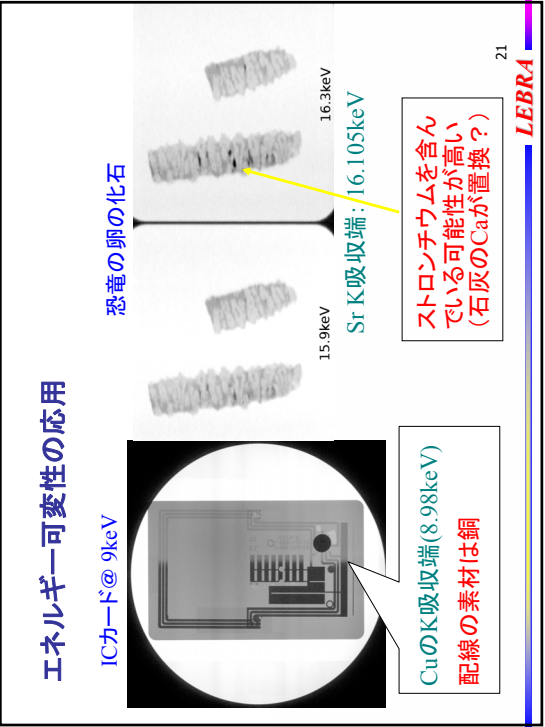
Zn (K-edge: 9.661keV)

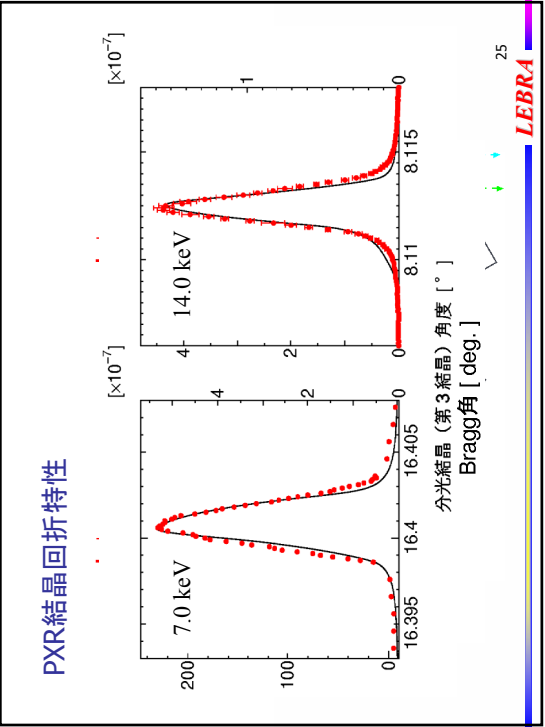
原子番号: Zn(30) > Cu(29)

PXR: 9keV

LEBRA

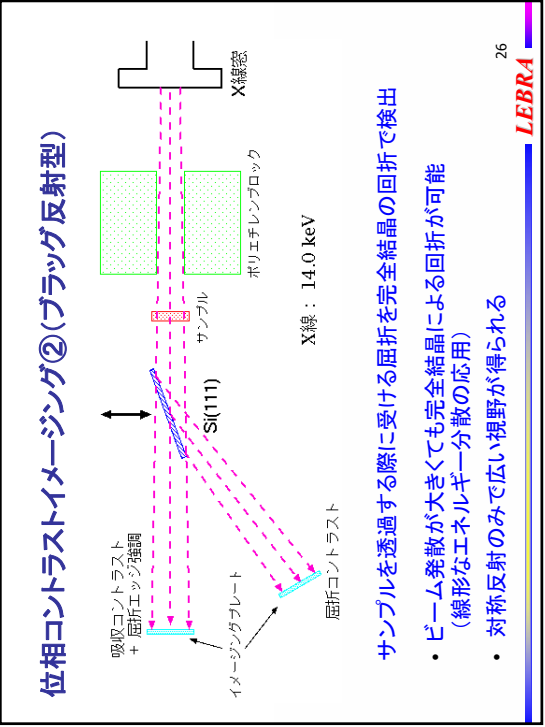
20





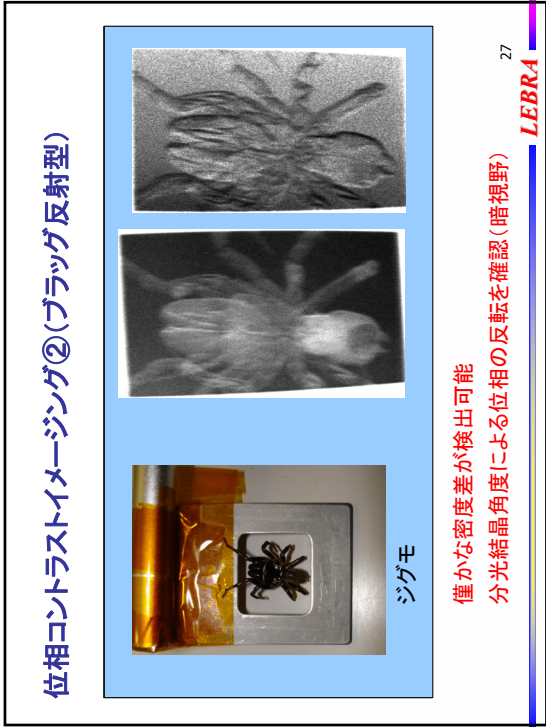
25

LEBRA



26

LEBRA



27

LEBRA

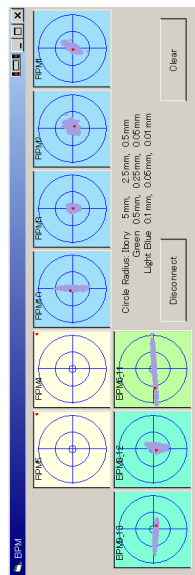


28

LEBRA

種々の不安定性

X線の強度・エネルギーの変動は測定精度にとって問題

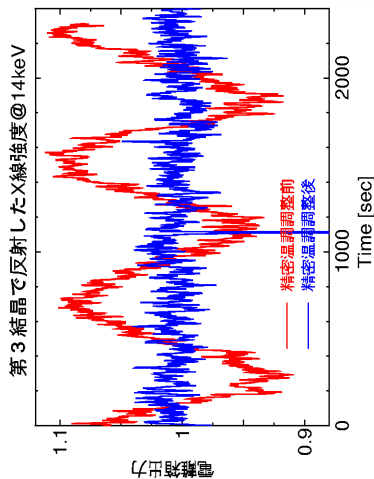


- > ターゲット結晶に起因する不安定性
 - > 結晶ホルダー冷却水配管(チューブ)の振動
 - > 冷却水精密温調の精度不足
- 調整により改善

29

LEBRA

冷却水の温度変動による不安定性

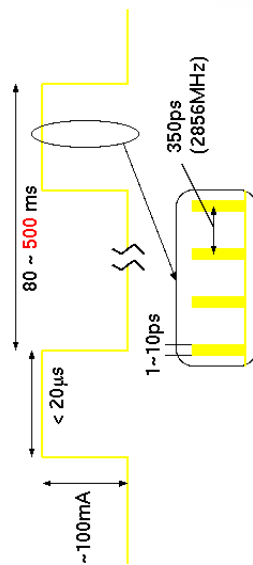


精密温調: $\pm 0.2^{\circ}\text{C}$, 15分周期 $\rightarrow \pm 0.1^{\circ}\text{C}$, 10分周期

30

LEBRA

パルス性とビームデューティ



- > 現在の運転パラメータ (typ.)
 - 100MeV, 120mA, 10μs, 2Hz (平均電流: 2.4μA)
 - (最大平均電流: 5.0μA)
- > X線の積分強度は平均電流で制約
 - $\rightarrow$ パルス性を利用した測定

31

LEBRA

現状のまとめ

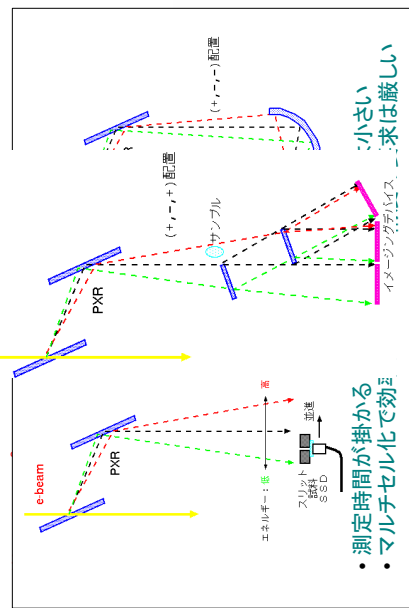
- > 100MeVクラスの電子リニアックと完全結晶2結晶システムの組み合わせによるPXR線源開発に成功
- > エネルギー(波長)可変性、指向性、ビームプロファイルの均一性を確認 $\rightarrow$ イメージングに適したビーム
- > リニアなエネルギー分散(虹)を維持したままX線ビームが輸送される $\rightarrow$ エネルギー分散型XAFS
- > 優れた空間コヒーレンス
 - $\rightarrow$ 位相コントラストイメージング (エッジ強調、屈折コントラスト法)
- > 更なる安定化が必要 (電子ビーム軌道、ターゲット周り)

32

LEBRA

今後の展望(基礎研究)

- XAFSへの応用の高度化



- 測定時間が掛かる
- マルチセル化で効率的

今後の展望(産業応用)

應用

- 高度な非破壊検査(元素同定可能)
- 超微細X線プロセス
- (エネルギー選択性・単色性による高精度化)
- 低線量医療診断(吸収端、位相コントラストの利用)
 - アンギオグラフィー
 - マンモグラフィー
- ガン治療などの医療照射
 - DDS(ドラッグデリバリーシステム)との組み合わせ

今後の展望(産業応用)

- 加速器技術としてはHigh dutyのリニアックは可能 (LEBRA-PXRの平均電流は現状: 2~5μA)
 - Xバンド, Cバンドによる加速器の小型化
 - 超伝導キャビティ, エネルギーマイニングによる省電力化・バックグラウンド放射線低減
 - 結晶冷却(ターゲットの回転など)
- 等の実現により産業応用は十分可能
- 並行して、PXR(パルス線源)向きの高感度検出器の開発

現状:DC的な線源を前提とした

photon counting / 積分計測手法

↑ 測定効率向上の制約

謝辭

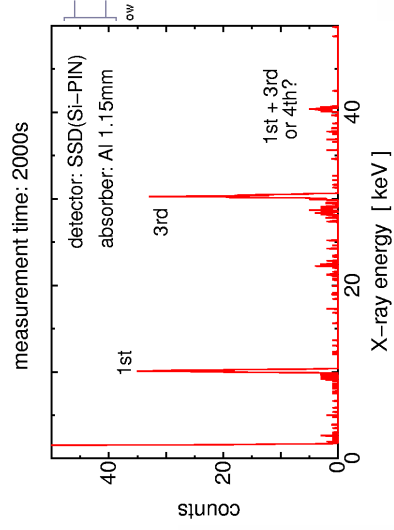
- ・文部科学省「学術フロンティア推進事業」
2000-2004; (継続) 2005～
- ・科研費 (15760039, 17760058, 17560046)
- ・日本大学学術助成金総合研究
「パラメトリックX線を用いた生体硬組織・生体材料
の評価システムとその応用」(2004～2005)

Appendix

37

LEBRA

Energy spectrum by SSD



38

LEBRA

Estimation of photon rate

Transmittance

Al 1.15mm: 3.32×10^{-4} @10keV, 0.723@30keV

Air 180cm: 0.348@10keV, 0.932@30keV

SSD efficiency: 0.85@10keV, 0.09@30keV

counting rate@10keV

> 232 counts/(4026 shots x 3.32×10^{-4} x 0.348 x 0.85)
= 590 counts/shot = 84 counts/shot mm²

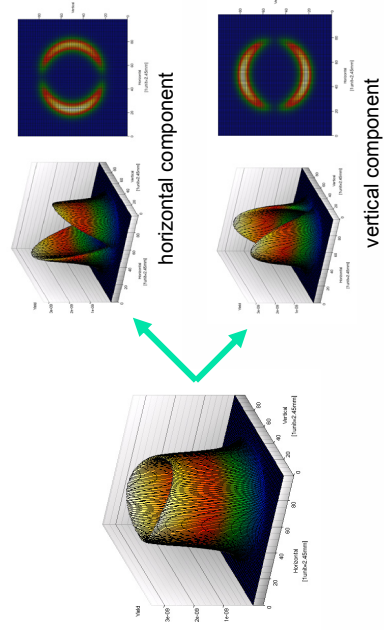
@30keV(3rd harmonics)

> 216 counts/(4026 shots x 0.723 x 0.932 x 0.09)
= 0.88 counts/shot = 0.13 counts/shot mm²

39

LEBRA

Polarization of X-ray beam



40

LEBRA

Formula of PXR yield

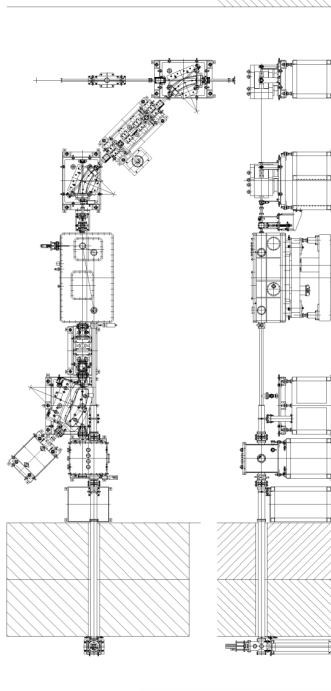
$$\frac{dN}{d\Omega} = \frac{e^2 n \omega L |\chi_g(\omega)|^2}{2\pi \hbar \varepsilon_0 v (c^* - \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\Omega})} \cdot \frac{\left| \frac{\omega}{c^2} \boldsymbol{\Omega} \times \left(\frac{\omega}{c^2} \mathbf{v} + \mathbf{g} \right) \right|^2}{\left\{ \left| \frac{\omega}{c^2} \boldsymbol{\Omega}_\perp - \mathbf{g}_\perp \right|^2 + \frac{\omega^2}{v^2} \left[\gamma^{-2} + \frac{v^2}{c^2} (1 - \varepsilon_0) \right] \right\}^2},$$

g: reciprocal lattice vector of the crystal
v: electron velocity
 $\boldsymbol{\Omega}$: direction of photon emission
L: crystal thickness
 ω : angular frequency of photon

41

LEBRA

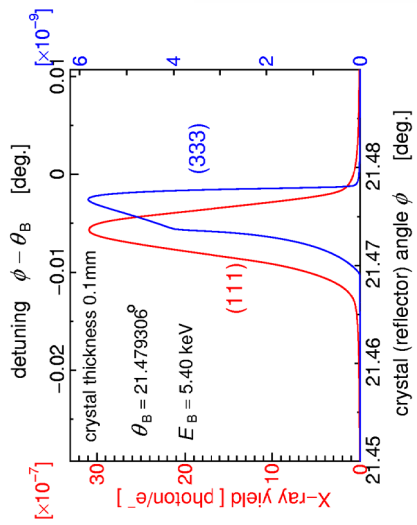
Beam line for PXR generator



42

LEBRA

Filtering effect for higher harmonics



43

LEBRA

2006.03.16 日本大学理工学部13号館
平成17年度学術フロンティア推進事業
“可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究”

屈折原理による2D, 3DX線画像の開発 ——放射光利用臨床・病理学診断の試み——

Development of 2D and 3D X-Ray Image due to Refraction and Attempt at Early Clinical & Pathological Diagnosis Using Synchrotron Radiation

1

安藤正海 Ando Masami

高エネルギー加速器研究機構 KEK: High Energy Accelerator Research Organization 総合研究大学院大学 Graduate University for Advanced Studies

KEK

総研大
名古屋医療センター
神戸大
山形大
国立癌センター
筑波大
九州大
九州工大
北京高能研
中日友好病院
大邱基督教大
Seoul大

杉山弘
兵藤一行
島雄大介
市原周
山崎克人
湯浅哲也
江角浩安
植野映
豊福不可依
近浦吉則
黎剛
陳志華
金鐘基
錢相勳

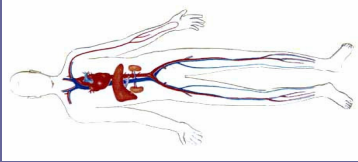
Maksimenko Anton
橋本英子
遠藤登喜子
大林千穂
坂東裕子
徳森謙二
東田善治
唐朝天
朴成煥
李昌炫

早期診断に使える？ 早期診断に使えない？

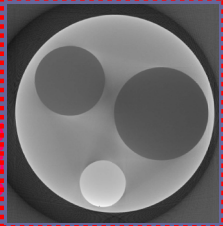
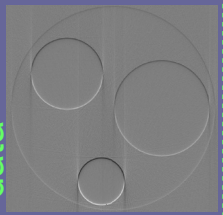
- X-ray:
- Ultra-sound
- MRI
- PET
- etc

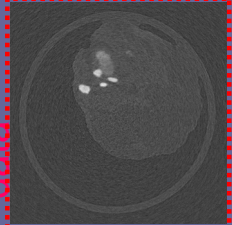
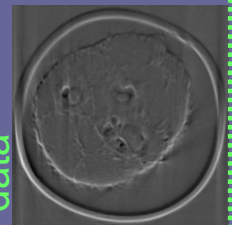
4

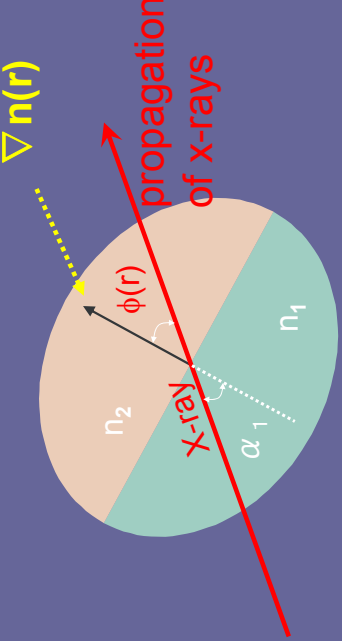
visible by x-rays

bone	blood vessel	digestion tube
		
hard	agent	agent

5

absorption data	refraction data
	
absorption algorithm	refraction algorithm

absorption data	refraction data
	
absorption algorithm	refraction algorithm



8

Refraction law

$$0 = \int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \cos \phi dr$$

$$\Delta \alpha = \int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \sin \phi dr$$

new

classical

$\Delta \alpha$ refraction angle
 ∇n gradient of electron density
 ϕ angle between ∇n and S

Refraction law

The gradient $|\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})|$ is the potential field ($\text{rot} \times \text{grad} \equiv 0$) therefore

$$0 = \int_{S+S'} |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \cos \phi dr =$$

$$\int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \cos \phi dr +$$

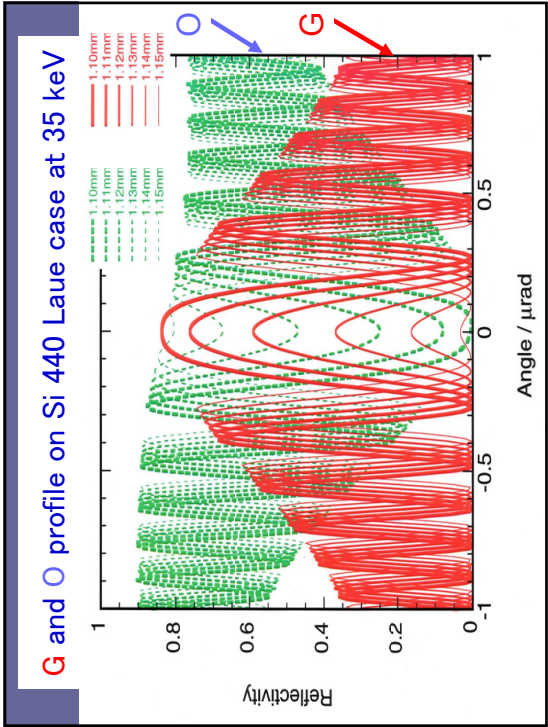
$$+ \int_{S'} |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \cos \phi dr =$$

$$\int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \cos \phi dr = 0$$

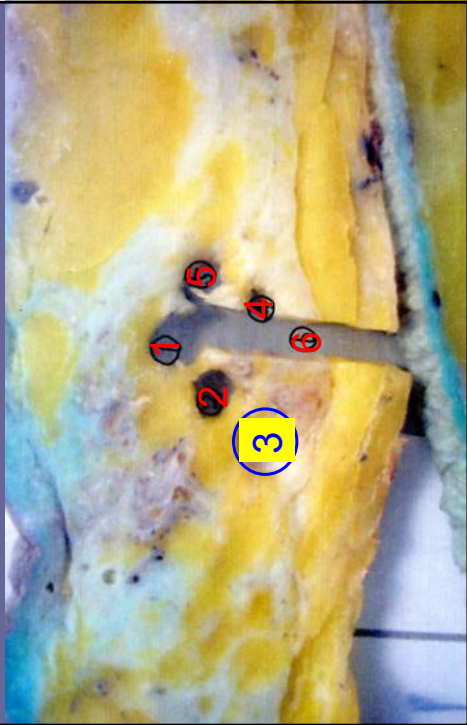
10

5keV~60keV x-ray n=1-delta n : refraction

energy(keV)	graphite	Al	Ca
5	1.9e-05	2.2e-05	1.3e-05
10	4.7e-06	5.4e-06	3.2e-06
15	2.1e-06	2.4e-06	1.4e-06
20	1.2e-06	1.4e-06	7.9e-07
25	7.5e-07	8.6e-07	5.1e-07
30	5.2e-07	6.0e-07	3.5e-07
35	3.8e-07	4.4e-07	2.6e-07
40	2.9e-07	3.4e-07	2.0e-07
45	2.3e-07	2.7e-07	1.6e-07
50	1.9e-07	2.2e-07	1.3e-07
55	1.6e-07	1.8e-07	1.0e-07
60	1.3e-07	1.5e-07	8.8e-08



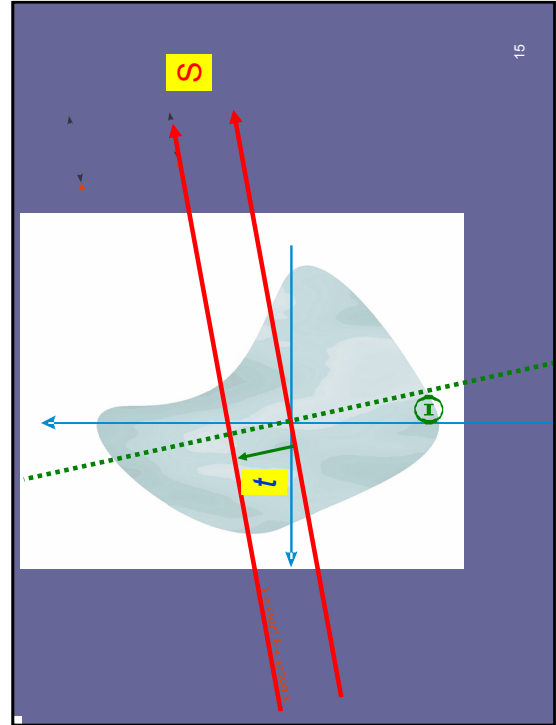
非浸潤性乳管癌



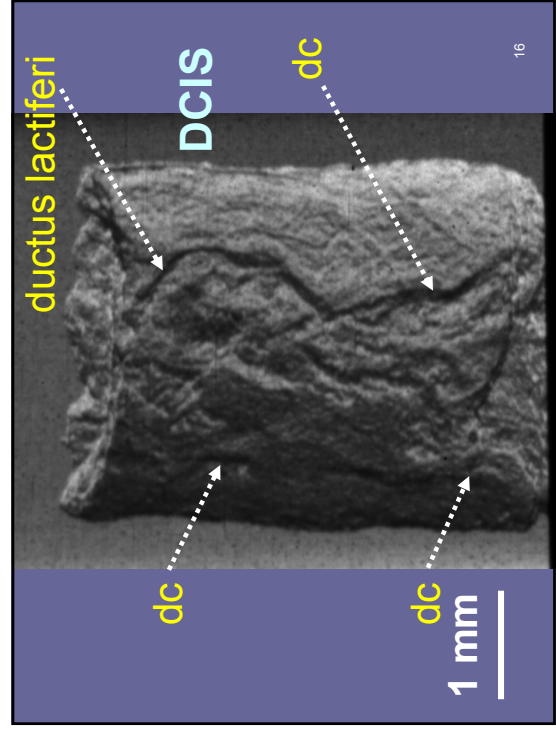
$$\Delta\alpha(\Theta,t)e^{i\Theta} = \int_S |\nabla \tilde{n}| e^{i\varphi} ds$$

Θ specimen rotation angle
 t beam position

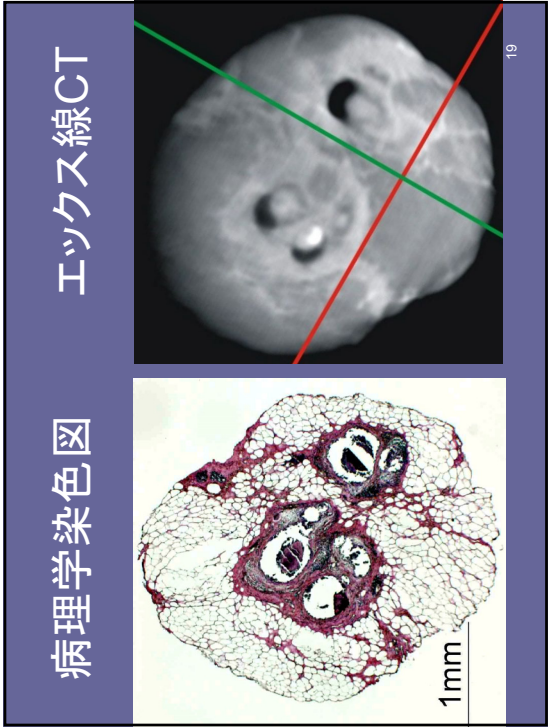
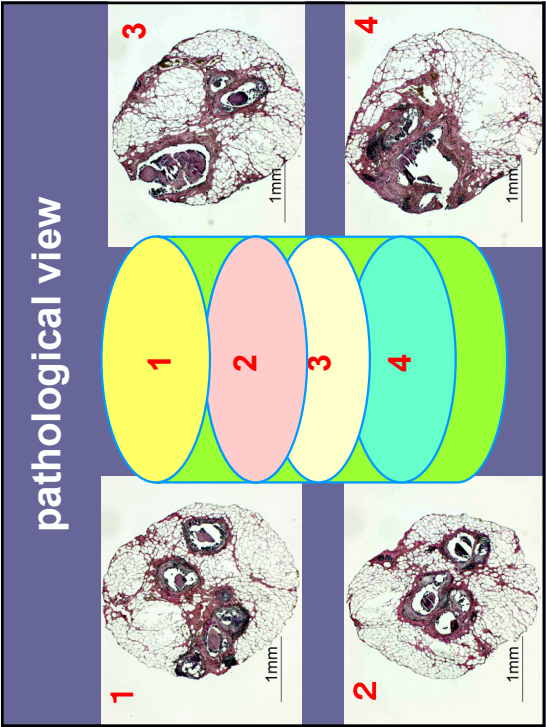
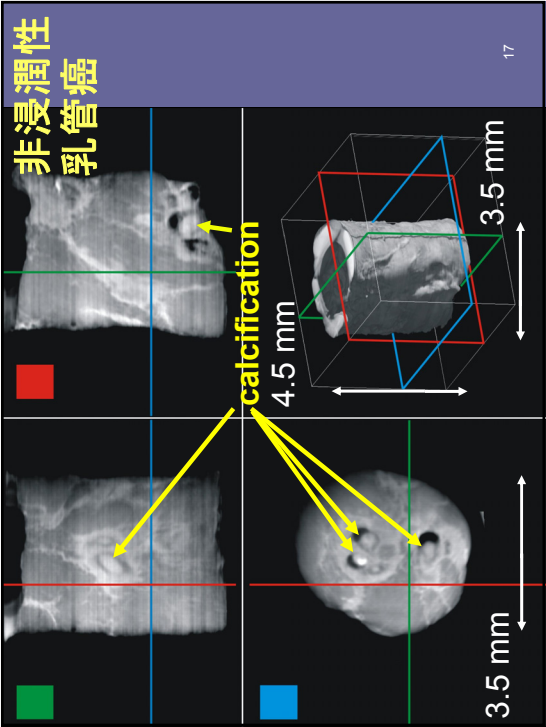
14



15



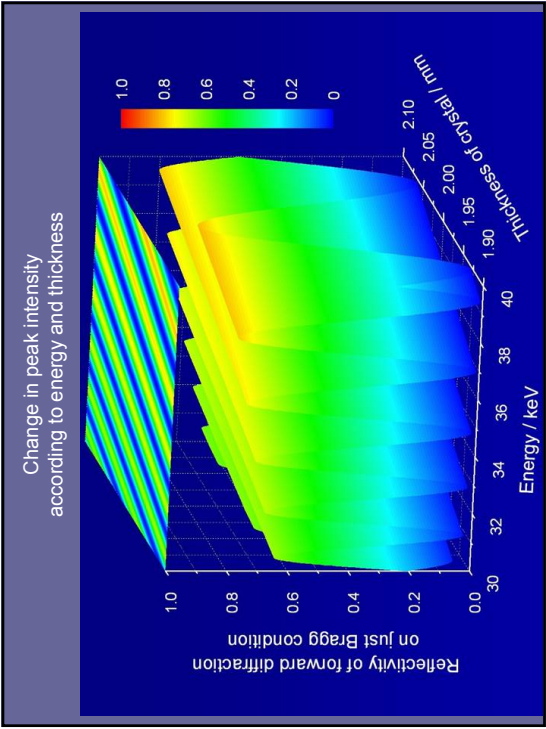
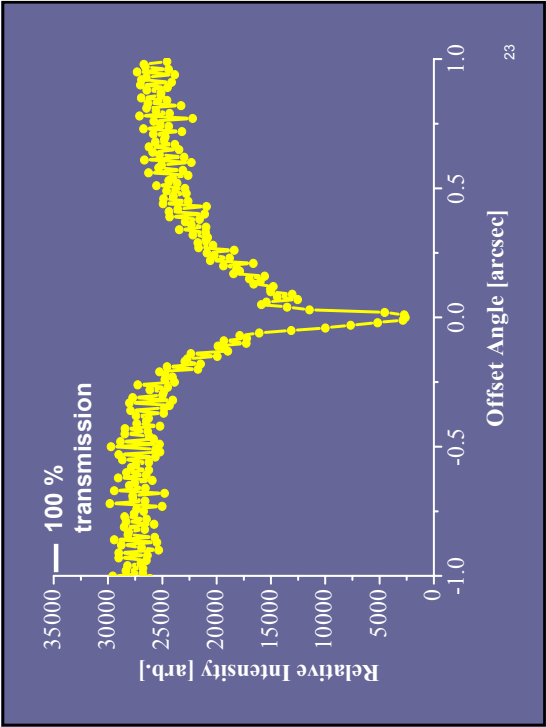
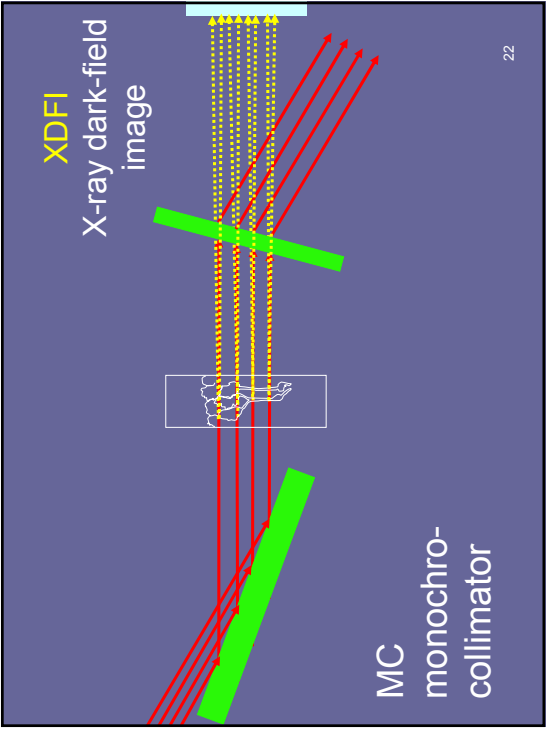
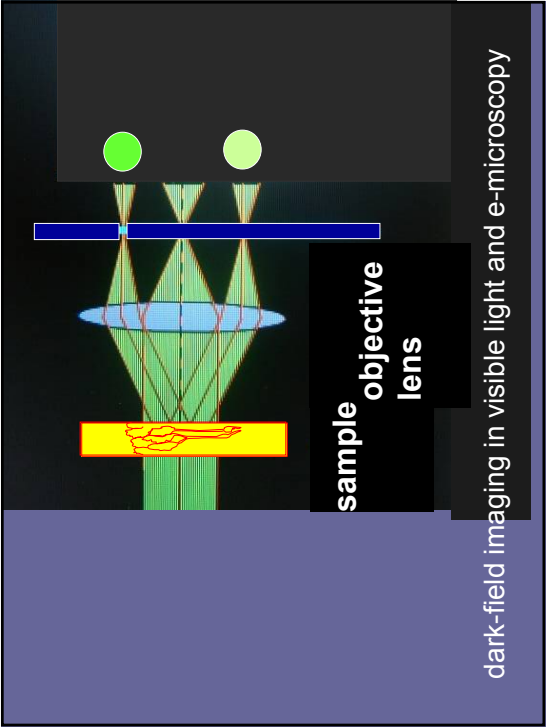
16



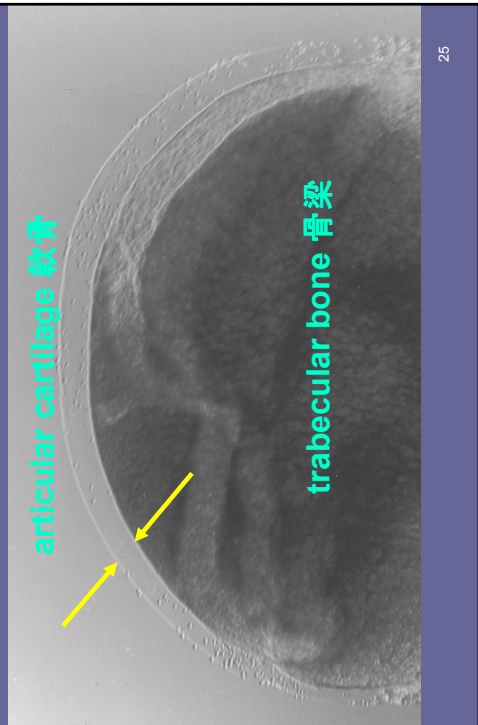
present

	2D	3D
	□	●
Clinical	90 mm □	-----
Pathological	10 mm □	5 mm ●

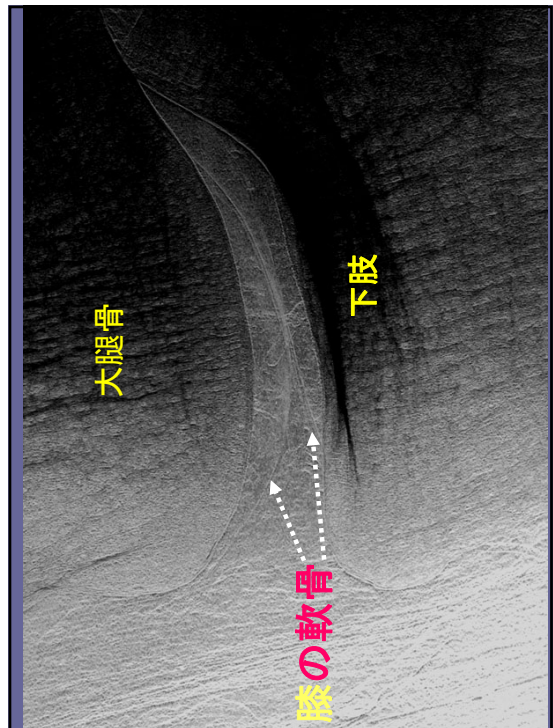
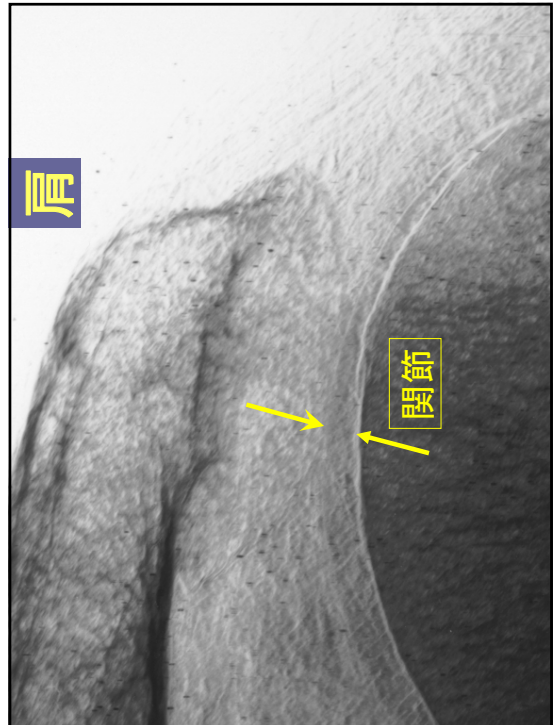
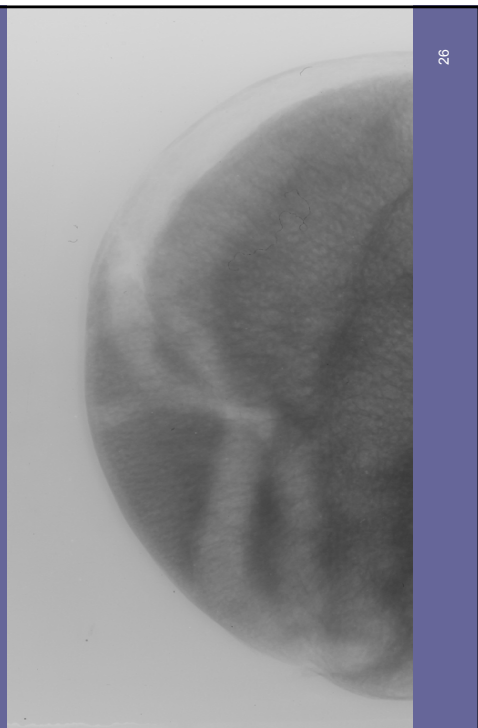
20

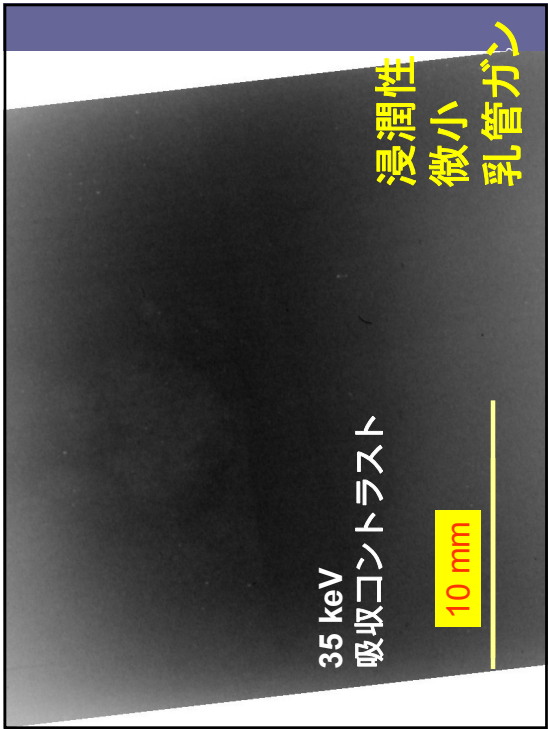
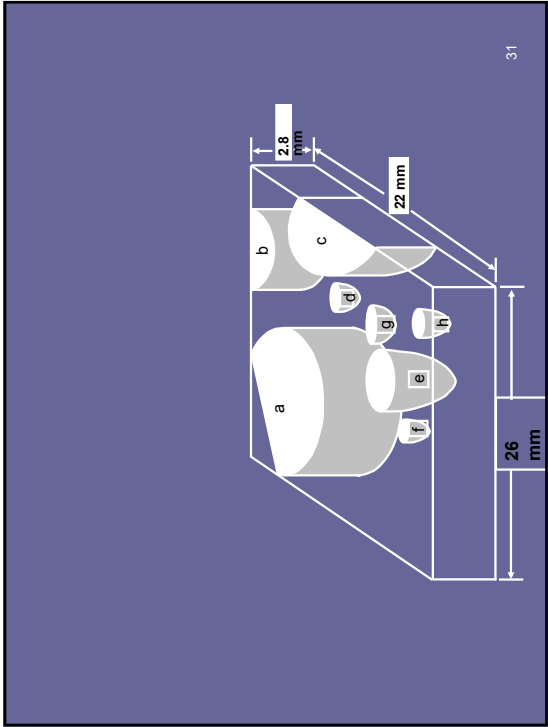
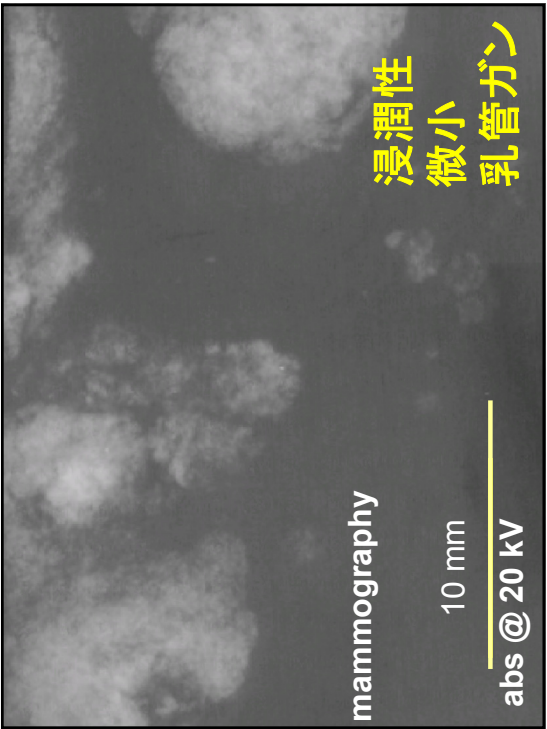
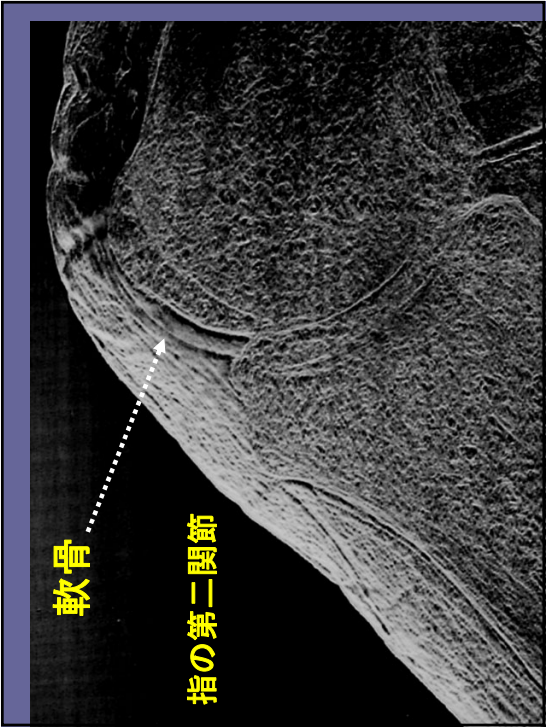


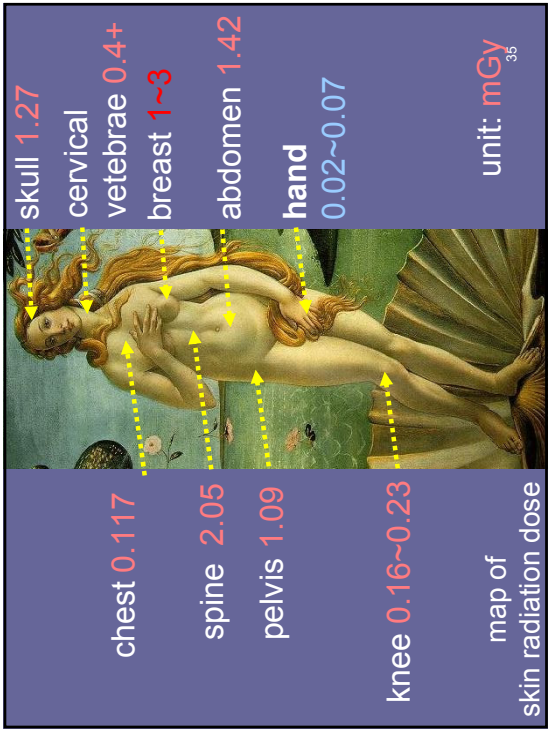
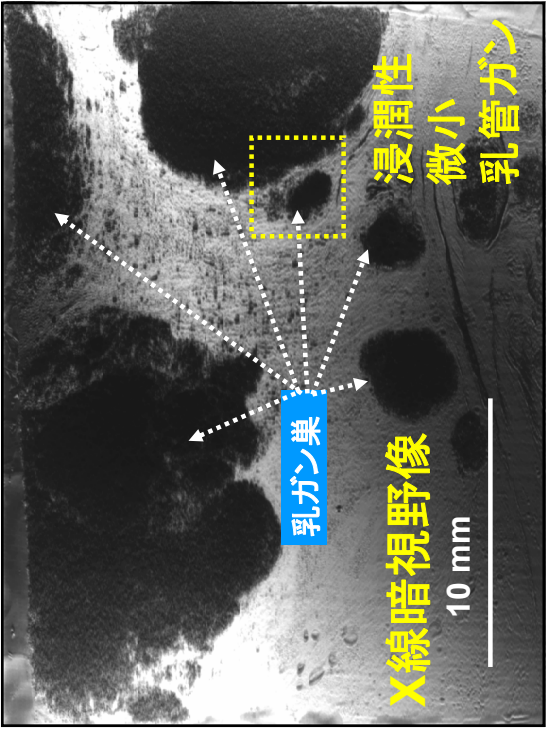
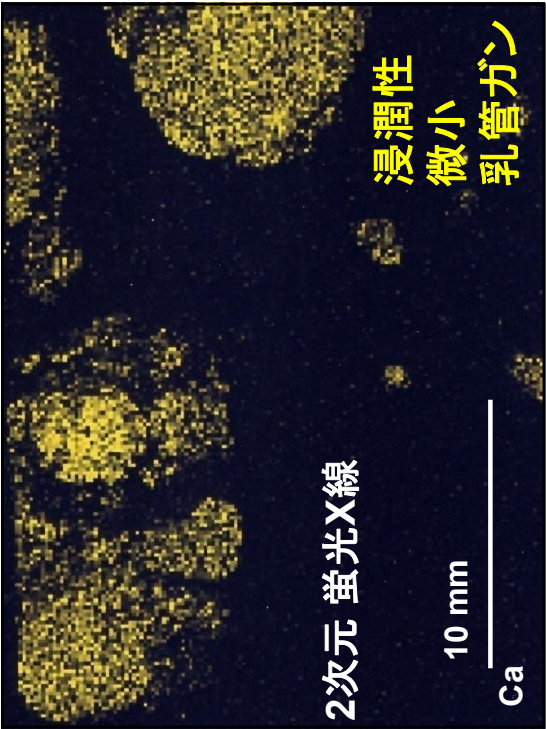
壊死摘出大腿骨頭(水中)暗視野像



壊死摘出大腿骨頭(水中)病院X線像



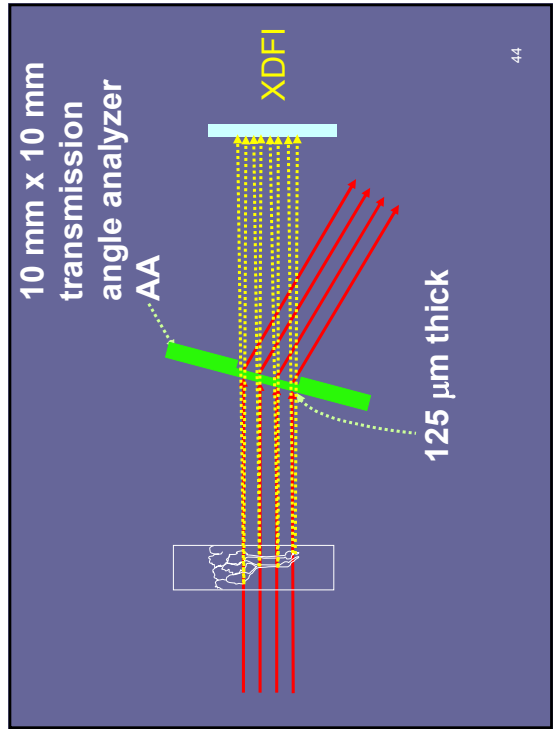
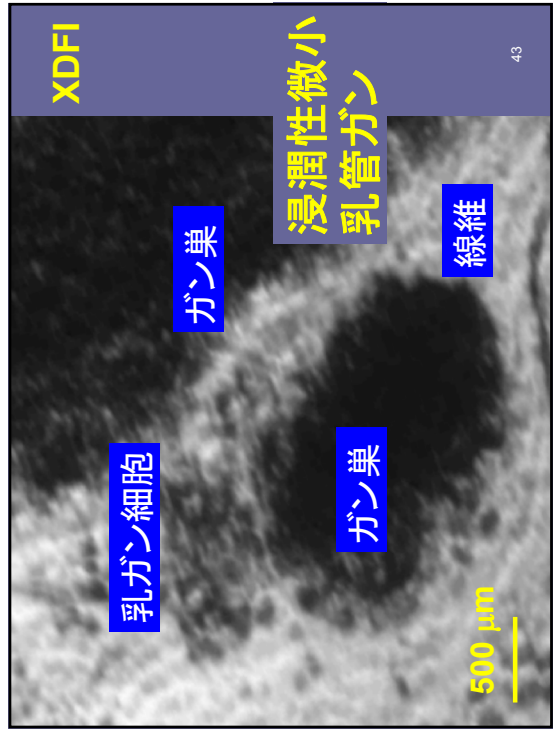
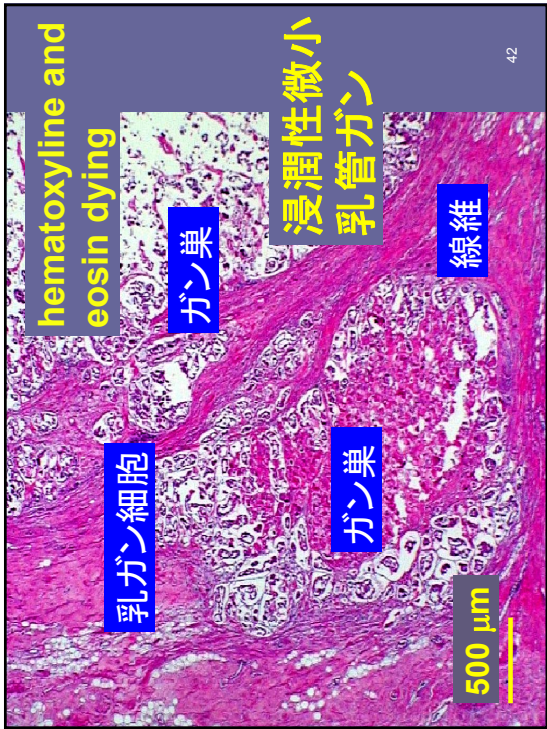
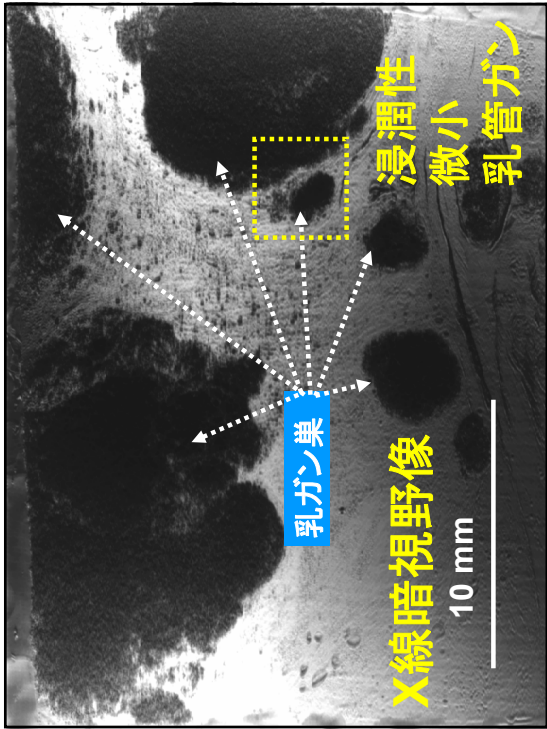


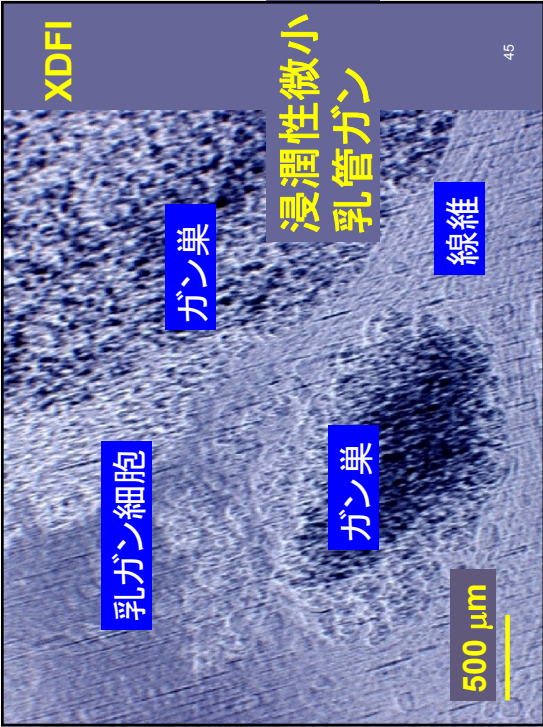


皮膚被曝線量

	15 keV	35 keV
乳房厚さ 4 cm	1-3 mGy	0.01-0.04 mGy
乳房厚さ 10 cm	∞ mGy	0.025-0.075 mGy

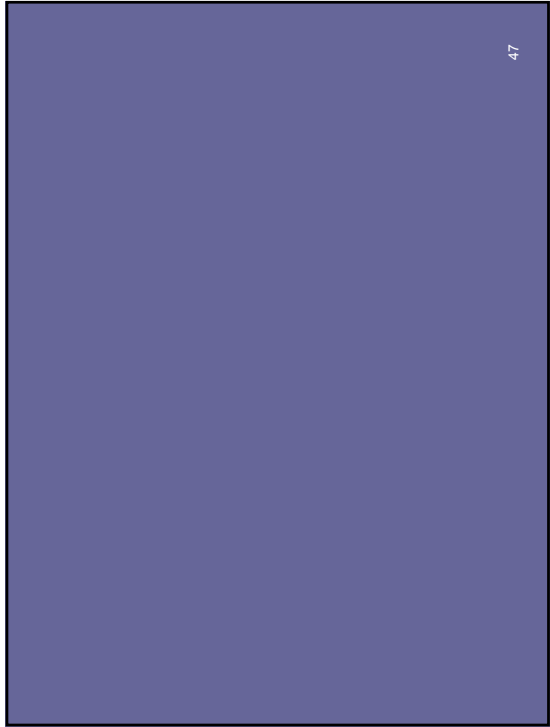
乳房圧迫は不要？





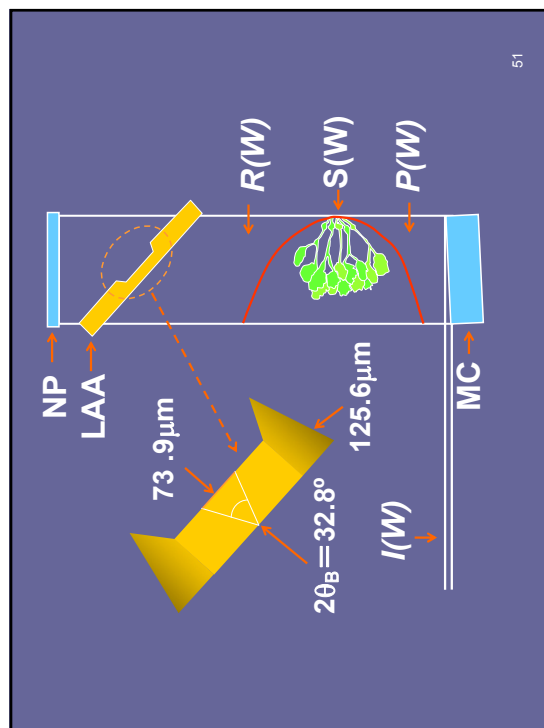
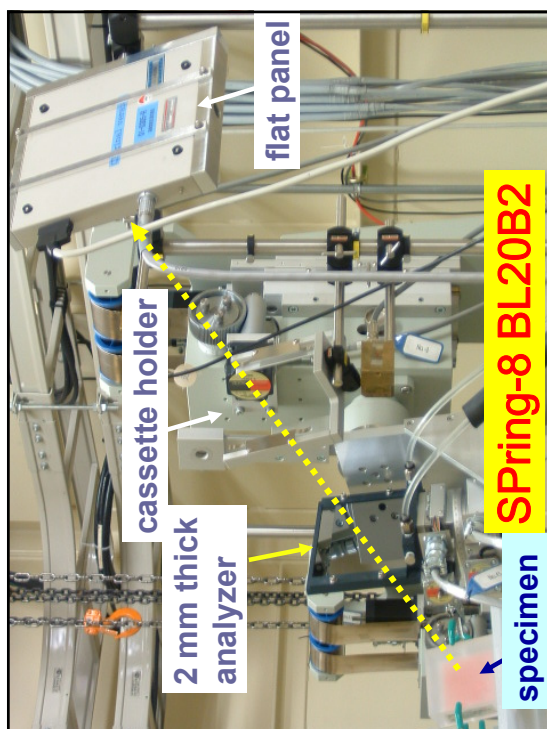
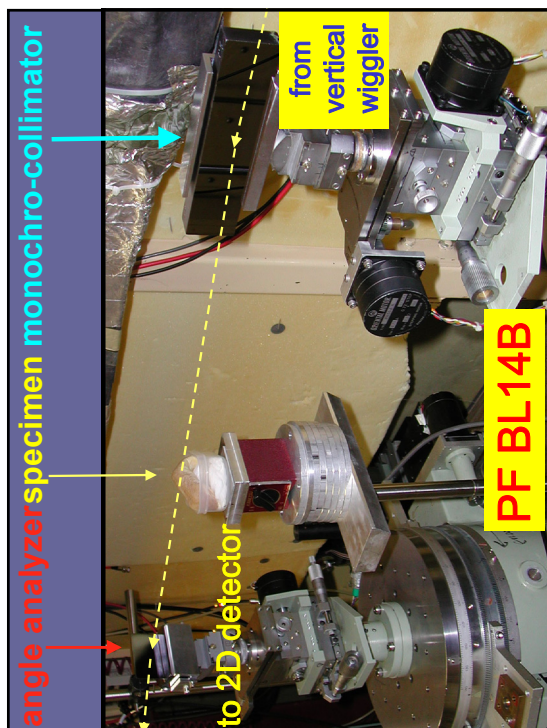
• ご清聴有難うございました。

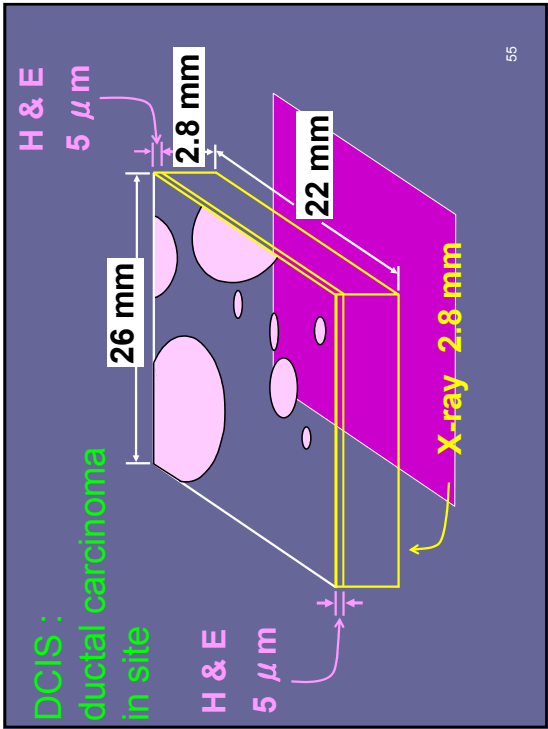
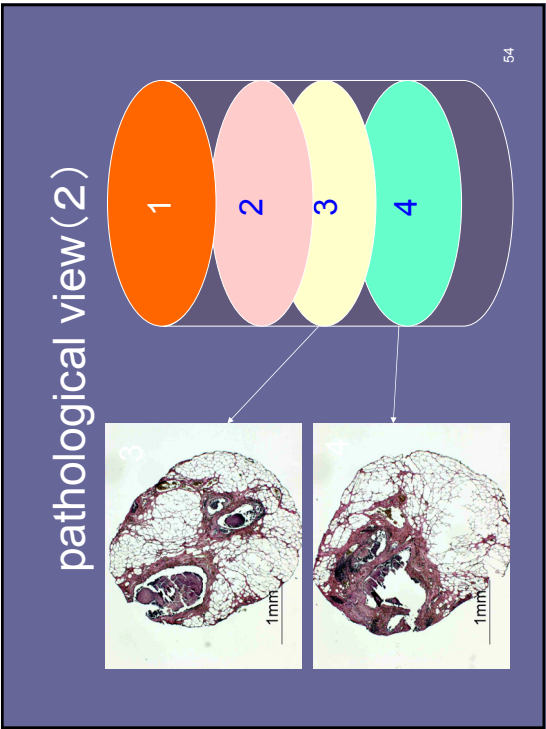
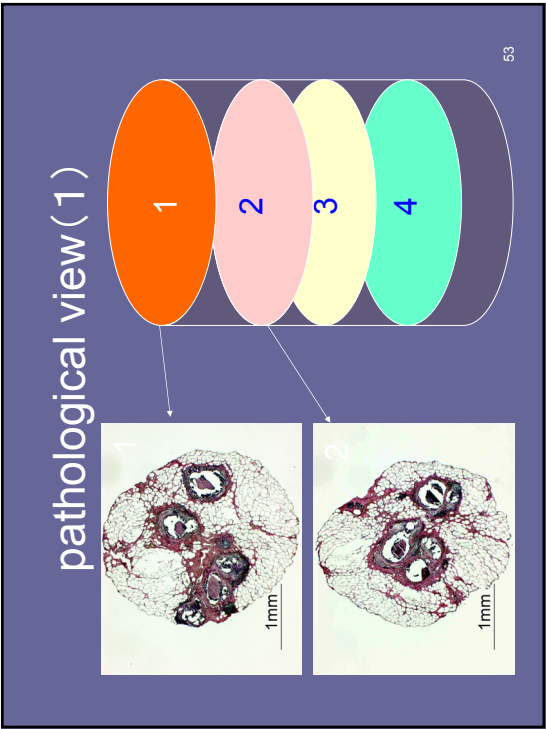
46



Pathology and Refracted CT Correlation

- Pathological diagnosis was **high grade** ductal carcinoma in situ (DCIS) of the breast.
- The histological images agreed well with the X-ray refraction-based CT ones.
- (1) Good correlation with histopathology
 - Not only calcification but also tumor tissue, duct wall and surrounding adipose tissue were clearly discernible.
- (2) Visualization of the 3-D histological structure
 - Five ducts were seen at the H1 level. Three of the ducts gradually approached each other at the H2 level and merged at the H3 level. Furthermore, another one approached a large duct at the H4 level.





	thick-LAF	thin-LAF
H : thickness of LAF(μ m)	2124	125.6
E : x-ray energy (keV)	35.0	13.7
hkl : diffraction index of silicon	440	220
θ_p : Bragg angle (rad)	0.1855	0.2381
Δ : Pendellösung fringe periodicity (μ m)	114.8	27.92
ω_s : full width of rocking curve (rad)	1.725×10^{-6}	1.419×10^{-5}
δ : image sharpness ~ spatial resolution (μ m)	40	2.4*
β : angular spread (rad) of the refracted x-rays in the Borrmann fan corresponding to δ	0.01883	0.01918*
α : refraction angle (rad)	1.751×10^{-7}	1.143×10^{-6} **

X-ray refraction angle is quite small !

57

difference

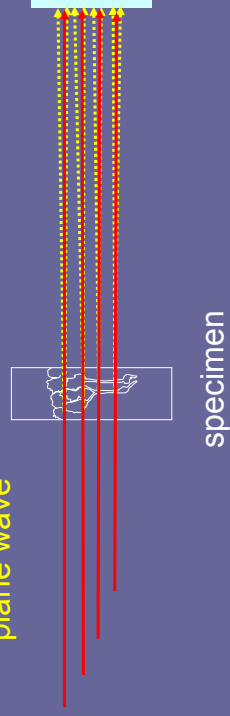
- refractive **index**
- n_{vl} 1.5
- ----- = -----
- $n_{\text{x-ray}}$ 10^{-6}
- refraction angle
- α_{vl} 0.1 → mechanical slit OK
- ----- = -----
- $\alpha_{\text{x-ray}}$ 10^{-6} → mechanical slit NO

58

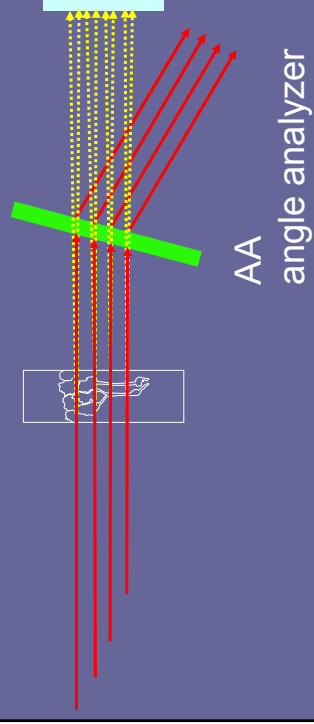
refraction

space separation $\sim 1 \mu\text{m}$
 $10^{-7} \times 10 \text{ cm}$

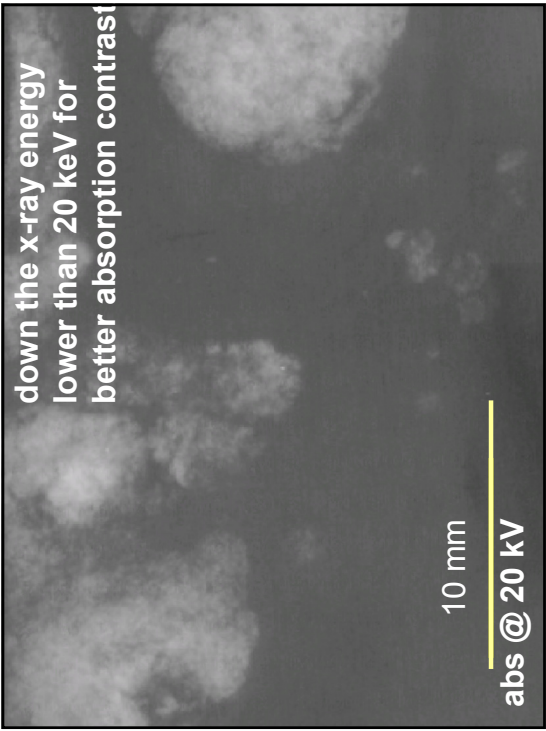
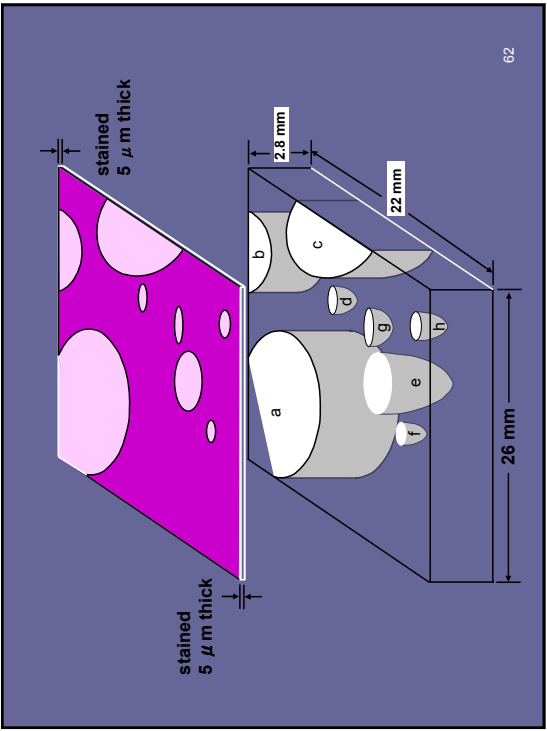
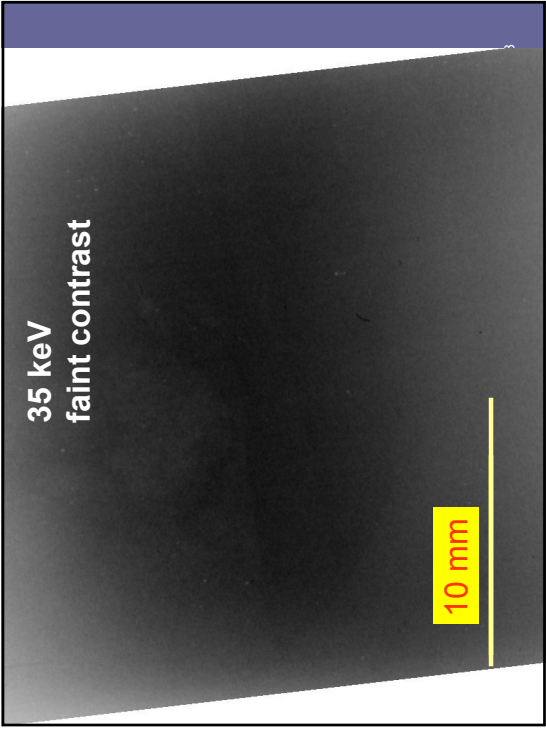
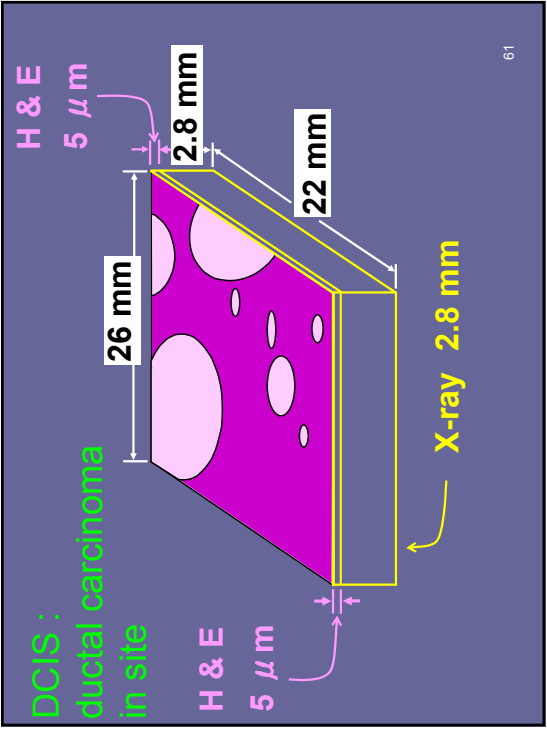
plane wave



59

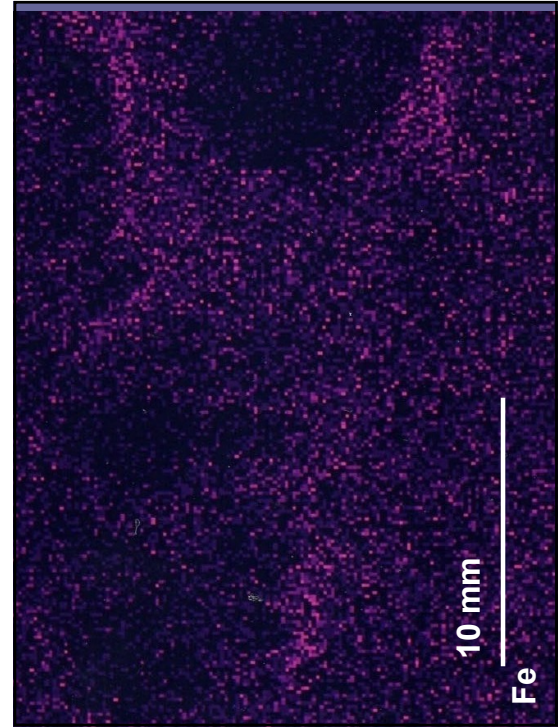
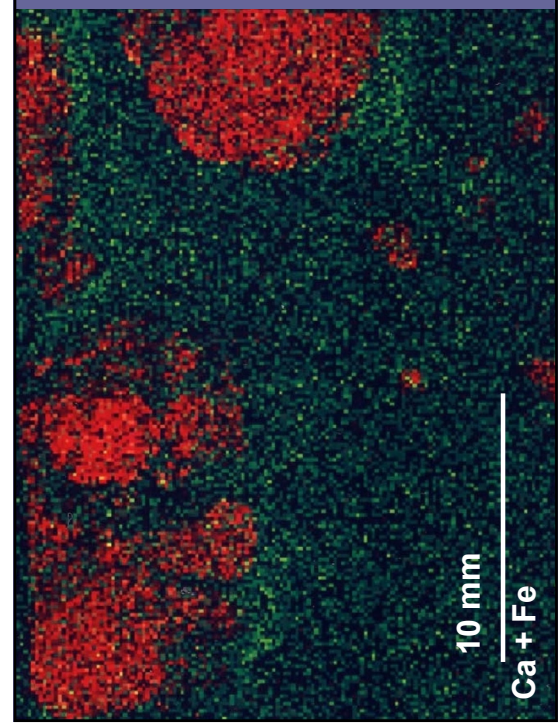
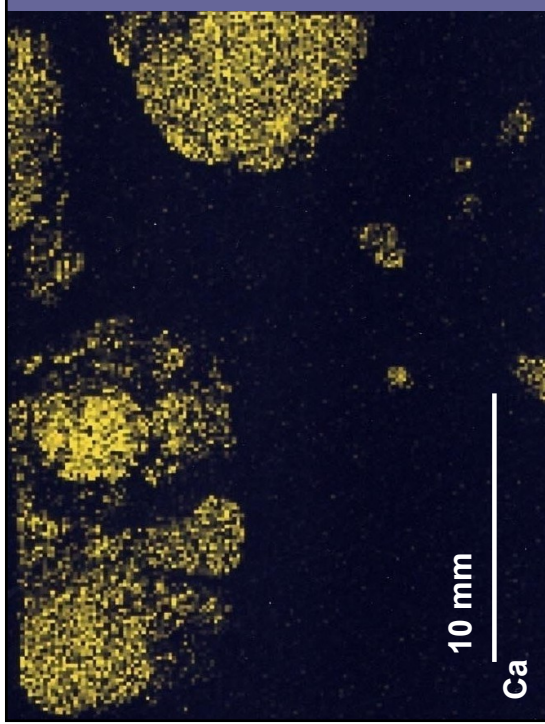


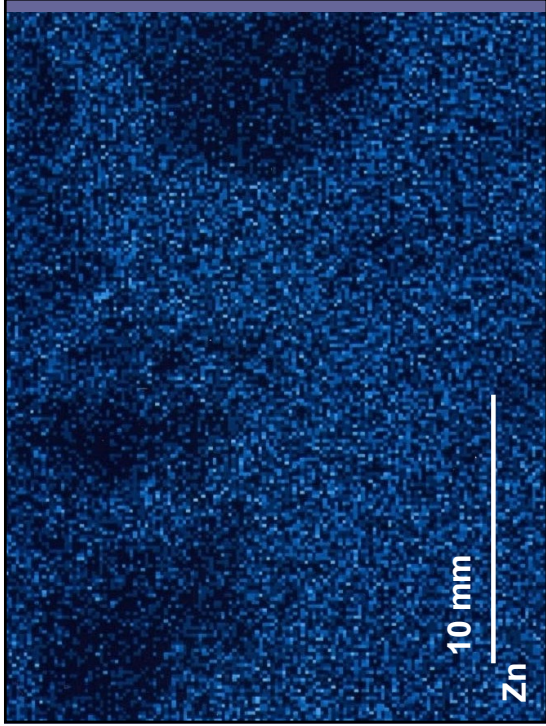
60



- fluorescent analysis
- evidence of Ca relating to breast cancer

65





Relation between refraction- and
fluorescence-based image ?

70

How can one raise the spatial
resolution ?

71

image quality at 35 keV

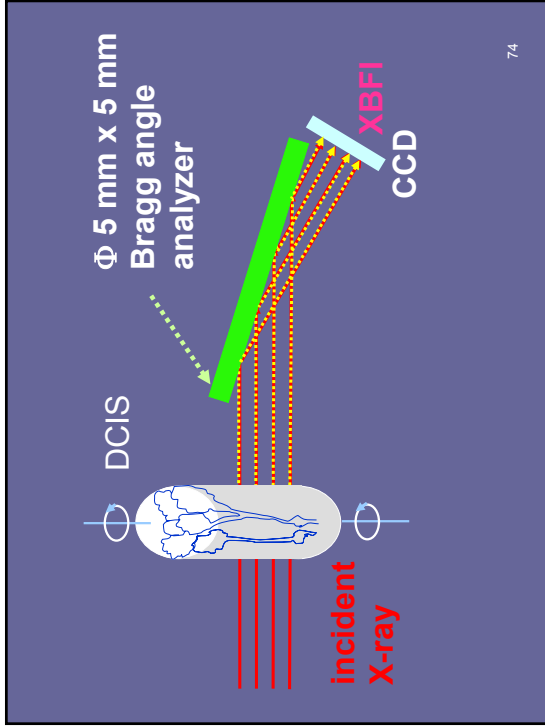
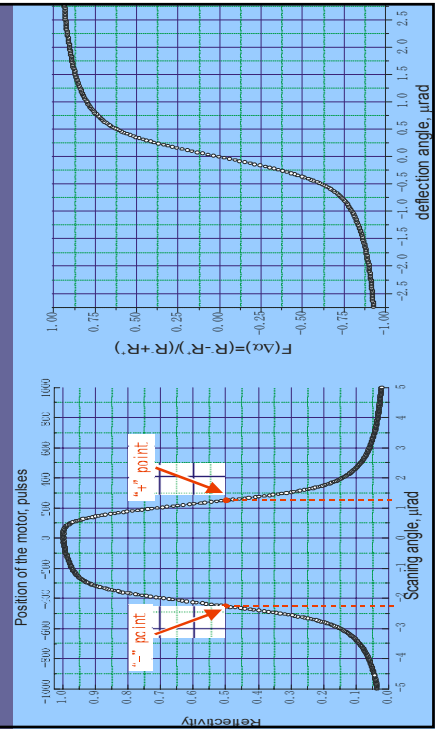
- contrast : much higher than absorption
- spatial resolution : 30 μm (thick AA) ~ 10 μm (thin AA)
- radiation dose : ~ hospital

72

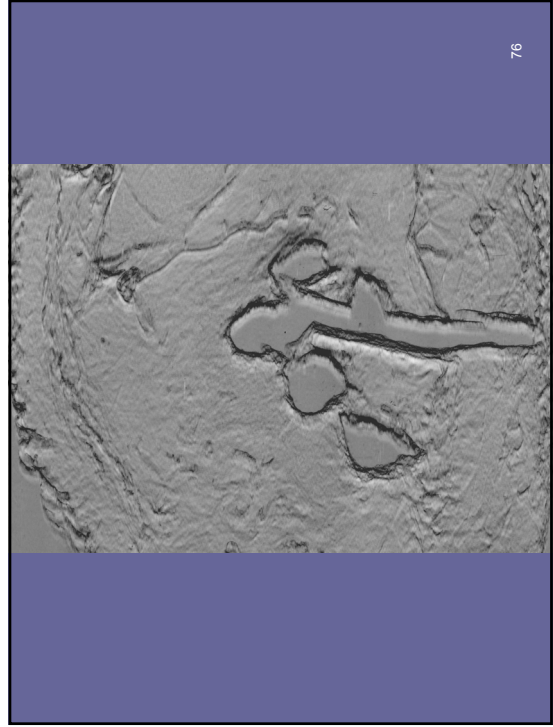
How can one obtain CT image?

73

data acquisition



74



76

clinical condition

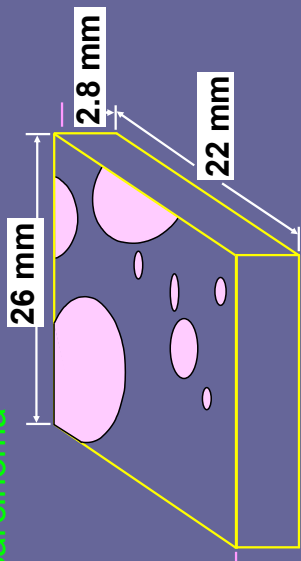
- accumulation ring
- $E = 5 < 6.5 \text{ GeV}$
- $I = 70 \text{ mA}$
- $\tau = 1200 \text{ min}$
- exposure time $\sim 6 \text{ msec (IVCAG)}$
- Interval ~ 10 frames per one second (IVCAG)
- X-ray energy : 35 keV
- contrast agent : iodine 碘素 沃素

77

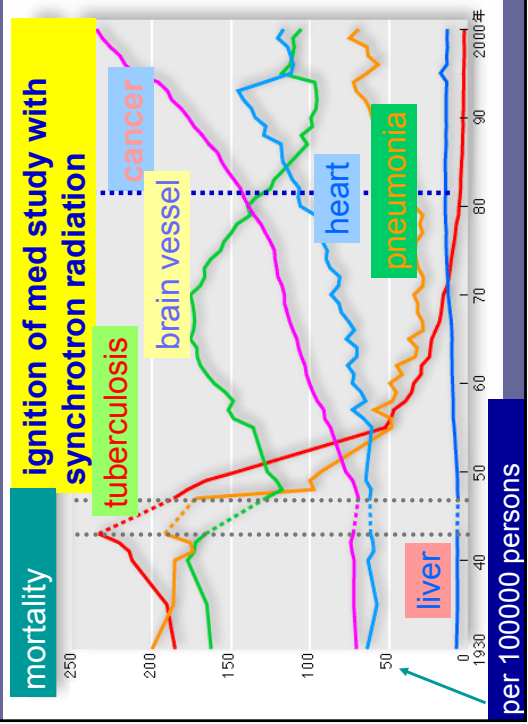
Which principle is needing ?

79

DCIS :
ductal carcinoma
in site



78



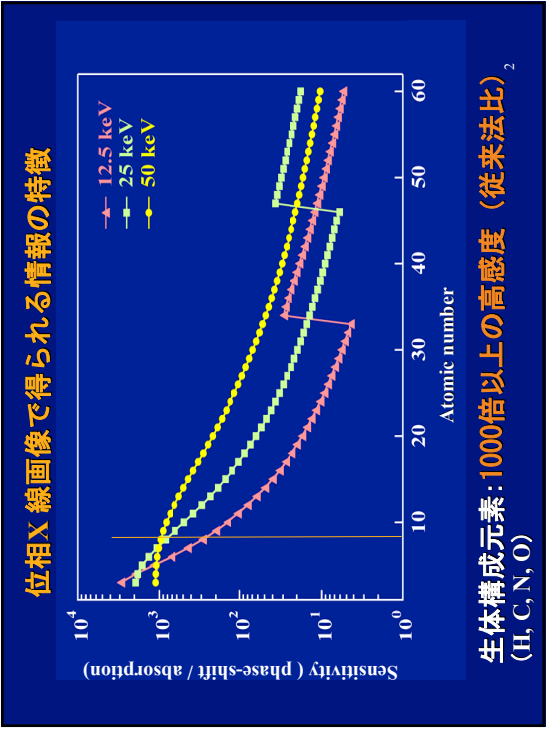
平成18年度学術フロンティア推進事業（日本大学）

干渉計を用いた位相X線イメージング （医学生物学応用）

筑波大学 大学院人間総合科学研究科

武田 徹

2006.3.16



従来の透過X線画像との比較（投影像）

病理画像

位相X線像

透過X線像

肝臓に転移した大腸癌

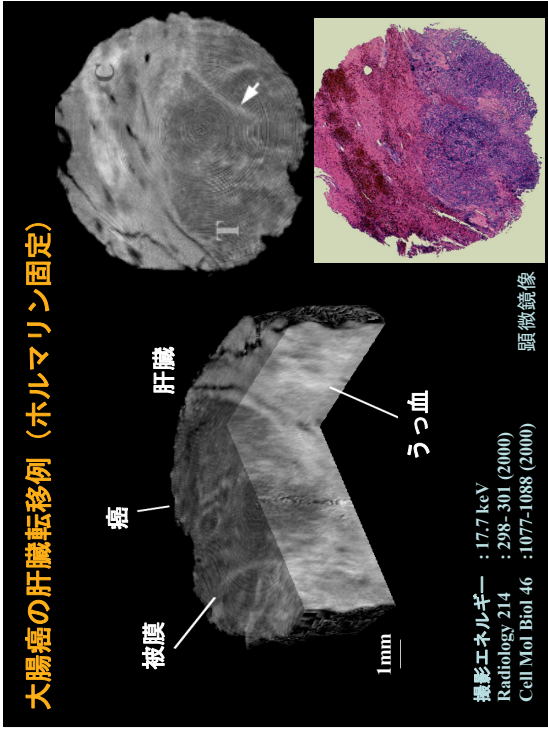
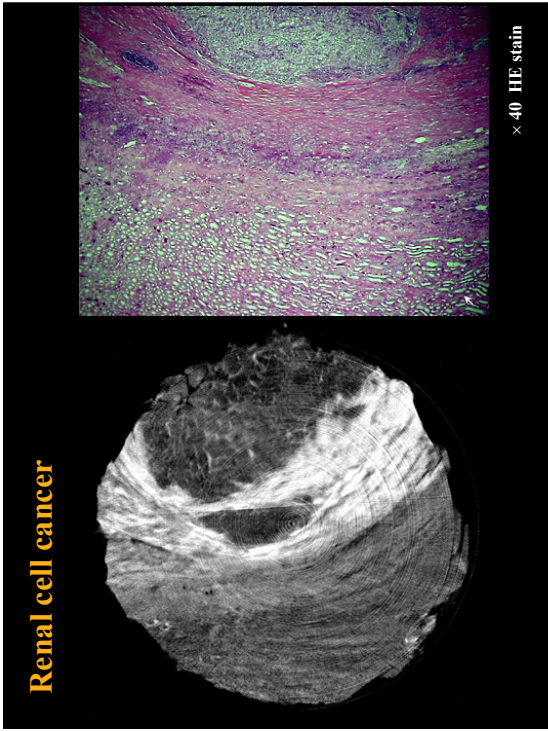
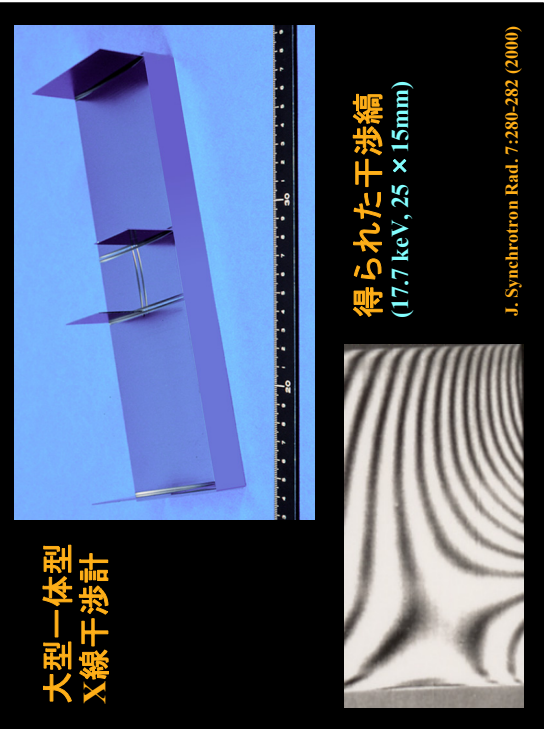
17.7 keV, 視野: 5 × 5 mm²
Academic Radiol 2:799-803 (1995)

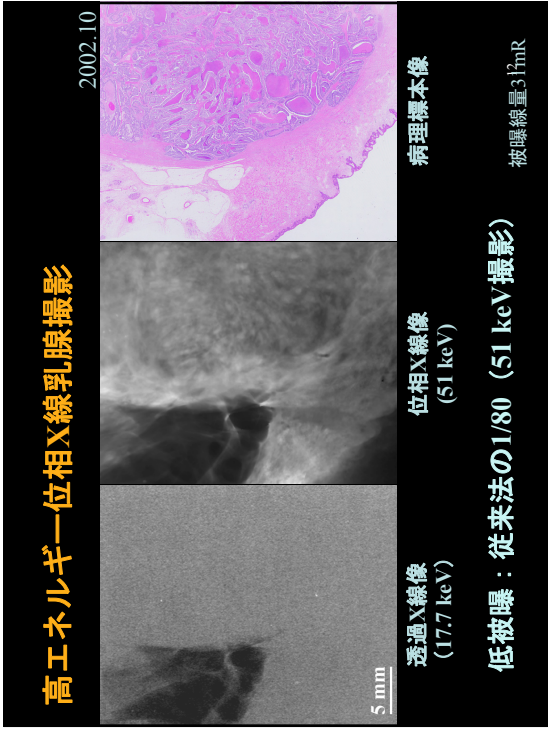
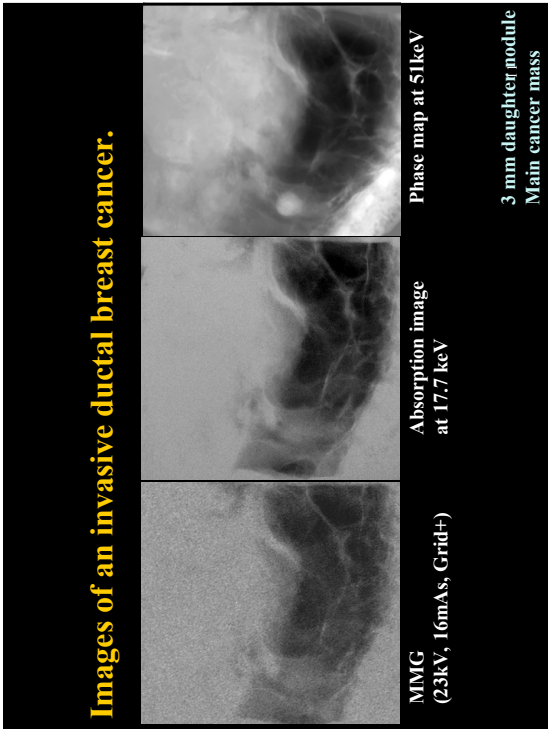
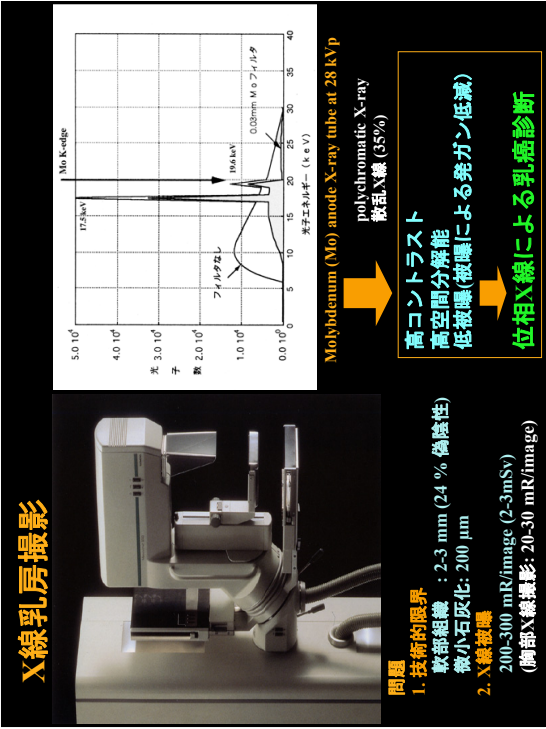
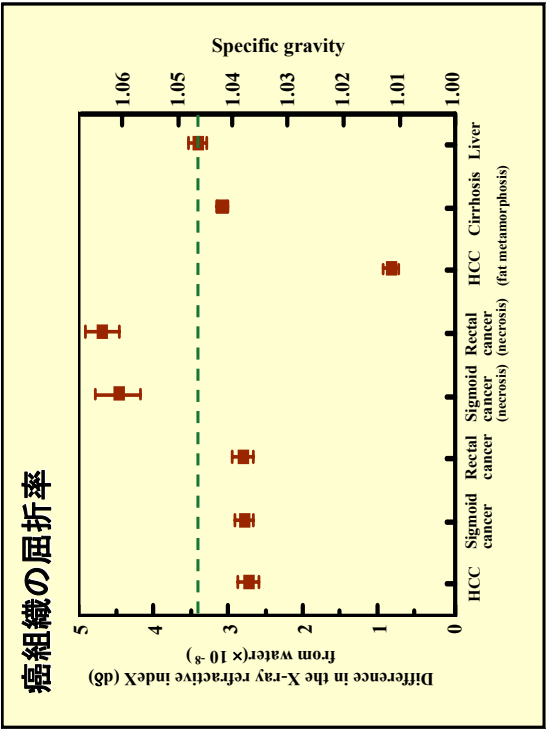
大きな生体試料の撮影（20 × 20 mm² 以上）

一体型X線干渉計

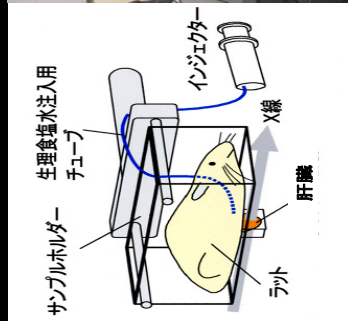
分離型X線干渉計

視野 30 mm角 60x40mm (17.7keV)





生きたラット肝臓の血造り(生理食塩水)



生体：体温による輻射熱

一六三〇年型一五五〇年型

計步分離工程

(試験と干渉計の距離拡大：熱影響の低減)¹³

位相X線血管イメージング

位相シフト $\Phi :: \Phi = 2\pi/\lambda \Sigma \delta(r) dr$

dδ	肝臓	: 3.5×10^{-8}	: 位相シフト生成
	血液	: 2.8×10^{-8}	低原子番号物質
	生理食塩水	: 0.4×10^{-8}	

従来の吸収 X 線を用いた血管造影 (angiography)

目ノ素系造影剤

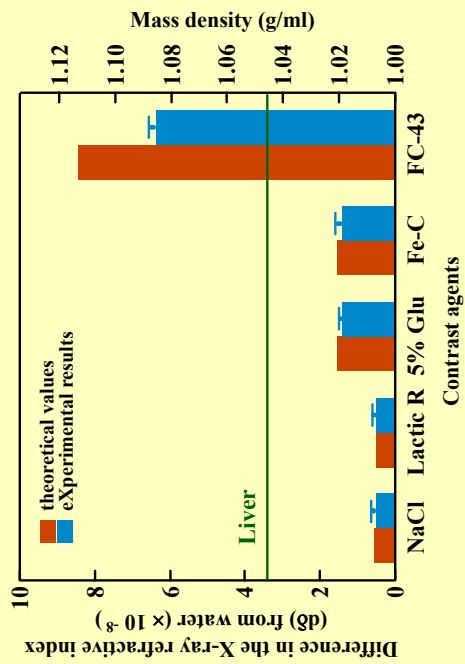
(高原子番号物質:53)

副作用

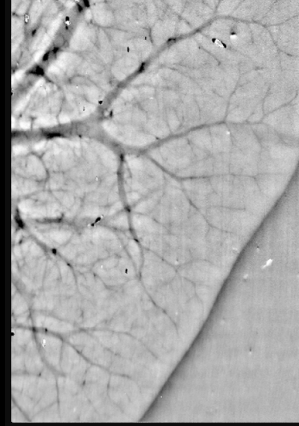
1. アレルギ一反応 : 3%
2. 高粘性 : > 4 times
3. 高浸透圧 : > 2 times

4

造影物質の相対屈折率



In vitro 位相X線血管画像



位相型X線生理食糧水)

被曝線量113mR

生理食塩水

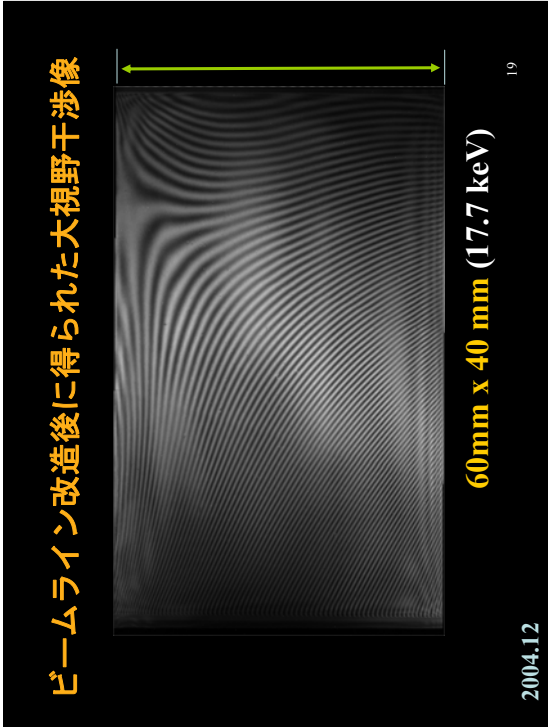
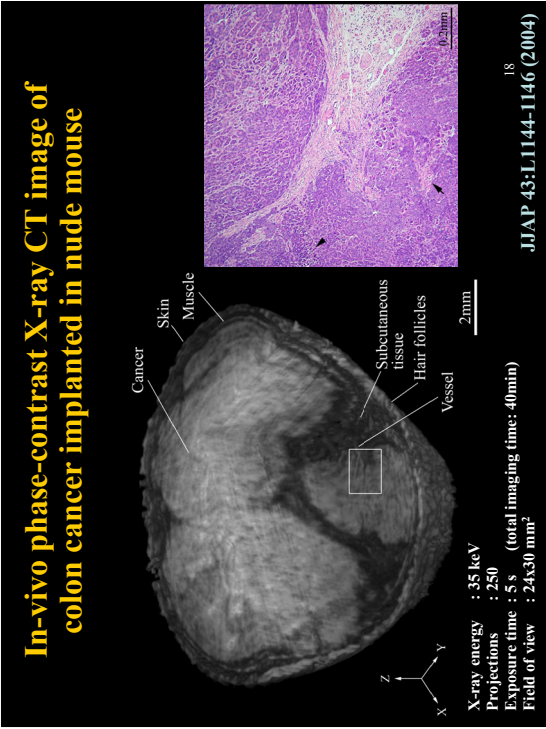
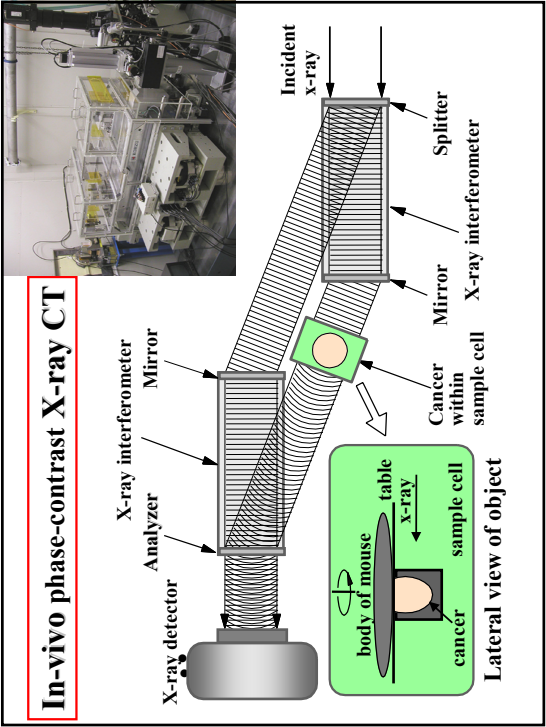
ヨウ素造影剤

特徴構造の抽出：位相シフト（軽元素）

Circulation 105: 1708-1712 (2002)

従来の血管造影（吸収X線）

1. アレルギ一反応 : 3%
2. 高粘性 < 1/4 倍
3. 高浸透圧 < 1/2 倍



まとめ

1. 軟部組織（腫瘍、血管網等）の無造影・低被曝な三次元観察
2. 高エネルギーX線での撮影が重要
大型試料、高原子番号元素（Os）の画像化：乳房撮影への応用
3. 生きた動物（マウス）の画像化

世界をリードするX線生体イメージング技術の確立

展望

- 大視野・高速データ収集（1時間>5分）

1. 生きたままの生体の経時的な三次元組織観察
2. 組織標本解析
3. 低被曝・高感度な乳癌診断（大視野化）

謝辞

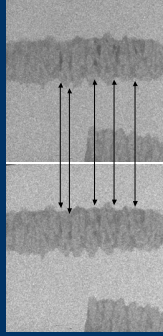
- ・ 筑波大学大学院 人間総合科学研究科
呉 勁、Thet-Lwin
- ・ 日立製作所 基礎研究所
米山明男、平井康晴
- ・ 東京大学
百生 敦、小山一郎
- ・ 高エネルギー加速器研究機構
兵藤一行、平野馨一
- ・ Spring-8
鈴木芳生
- ・ シヤラン・インスツルメンツ（株）
小泉有生

21

LEBRA-PXR と FEL の 生体硬組織への応用研究

「化石鉱物からインプラントまで」

- ・ 寒河江登志朗、
- ・ 早川 徹、岡田裕之、中田浩史、
- ・ 佐藤由紀江（松戸歯学部）
- ・ 佐藤俊紀、浅賀知記、諏訪武利、
- ・ 豊田千枝、沼田靖子
- ・ （松戸歯学研究科、大学院）
- ・ 寛 光夫（明海大学歯学部）
- ・ Prof. Racquel Z. LeGeros,
- ・ Prof. John P. LeGeros
- ・ （New York Univ.）
- ・ LEBRA の方々



1

LEBRA-PXR と FEL の生体硬組織への応用研究

- LEBRA-PXR
- Diffraction
- Radiography
- Absorption Edge
- Phase Contrast
- LEBRA-FEL
- Dental Tissues
- Ablation
- Mineral/Crystal
- Ablation

Standard X-Ray Diffraction

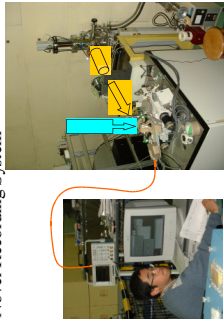
- PowderXRD
- PSPC microXRD
- IP microXRD

In the Near Future Study
PXR:
FEL:

2

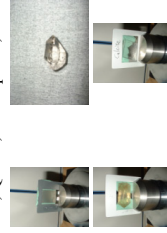
LEBRA-PXR Diffraction Study

Novel Recording System



Materials

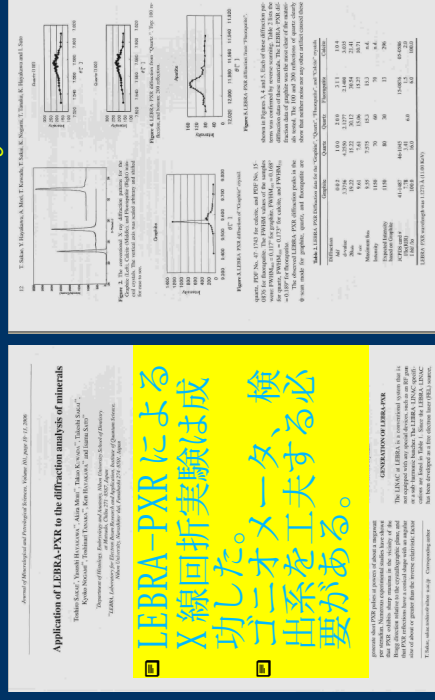
Graphite, Quartz, Fluorapatite, Calcite



- LEBRA-PXR を結晶解析の基本である X 線回折実験に応用できるか検証した。

3

LEBRA-PXR Diffraction Study



(Sakae et al., J Mineral Petrol Sci, 2006)

4

LEBRA-PXR Radiographic Study - Bone Formation Around Ti-Implant -

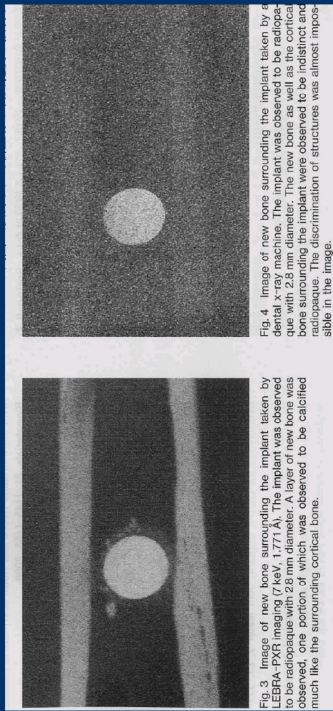
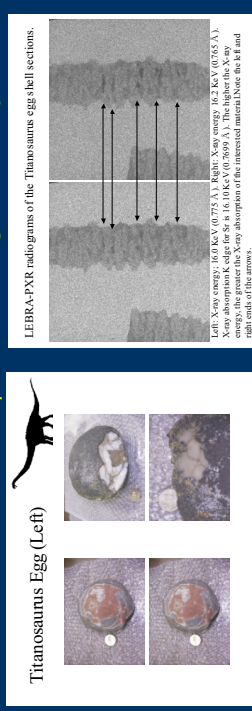


Fig. 3. Image of new bone surrounding the implant taken by LEBRA-PXR imaging (7 keV, 1.771 Å). The implant was observed to be radiopaque with 2.8 mm diameter. A layer of new bone was observed, one portion of which was observed to be calcified much like the surrounding cortical bone.

(中田/ほか：日大口腔科学，2005)

5

LEBRA-PXR Absorption Edge Study



LEBRA-PXR radiograms of the Titanosaurus egg shell sections.

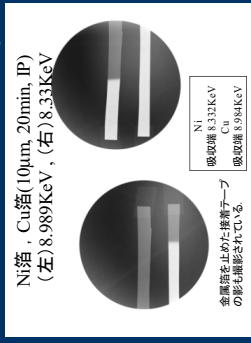
Left: X-ray energy: 10.0 keV (0.771 Å). Right: X-ray energy: 16.2 keV (0.765 Å). X-ray absorption K edge for Sr is 16.10 keV (0.7699 Å). The higher the X-ray energy, the greater the X-ray absorption of the interested material below the left and right ends of the arrows.

- 化石恐竜卵殻のX線透過実験で、Srの吸収端を同定できた。

寒河江ほか (2005): LEBRA-PXR の波長可変X線による恐竜の卵化石中のSr 同定. 化石研究雑誌, 38:157.

7

LEBRA-PXR Absorption Edge Study



Ni箔, Cu箔 (10μm, 20min, IP)
(左) 8.989KeV, (右) 8.33KeV

- LEBRA-PXR は水平方向にわずかな波長分散が認められた。
- 元素に特有のX線吸収端と同じ波長にPXRを調整することで目的の元素を1回の撮影で同定できる。

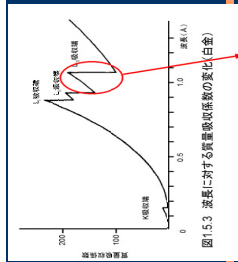
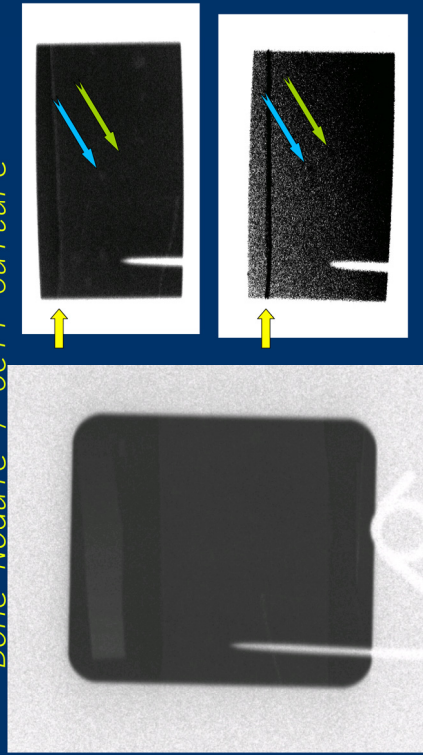


図1.5.3 波長に対する質量吸収係数の変化(白金)

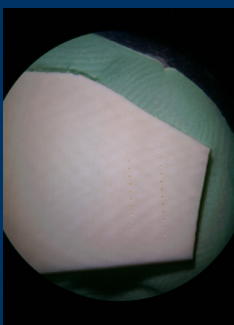
6

LEBRA-PXR Phase Contrast Study - Bone Nodule / Cell Culture -



8

LEBRA-FEL Dental Tissues Ablation



- （左）：2004年3月4日
象牙（歯の象牙質の名前の起
源）を用いて
LEBRA-FELの照射実験。
- 象牙質にPitが形成された。
- Pit周囲は“こげ”が認めら
れた。（これはPower不足が
原因らしい）
- （右）：2004年4月1日

9

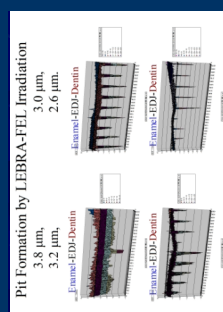
LEBRA-FEL Dental Tissues Ablation



- 2004年9月9日
ヒトの歯を用いて
LEBRA-FELの照射実験。
- FEL照射によって
- エナメル質、象牙質
にPitが形成された。
- Pit周囲は“こげ”が
認められない。
(出力upの効果)

10

LEBRA-FEL Dental Tissues Ablation



- 波長を変えて
LEBRA-FELの照射実験。
(上の写真は2005/8/4)
- FEL照射によって
- エナメル質、象牙質に
は固有の適正波長があ
ることを示唆。

11

Standard XRD: Powder XRD Study

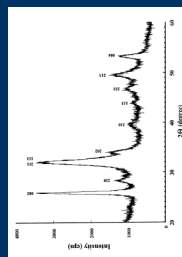


Fig. 2. X-ray diffraction (XRD) spectrum of white substance formed on a cured phosphated polymer disk after 7 days immersion in Hank's balanced solution (HBS).

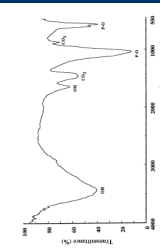


Fig. 4. Infrared (FTIR) spectrum of white substance formed on a cured phosphated polymer disk after 7 days immersion in Hank's balanced solution (HBS).

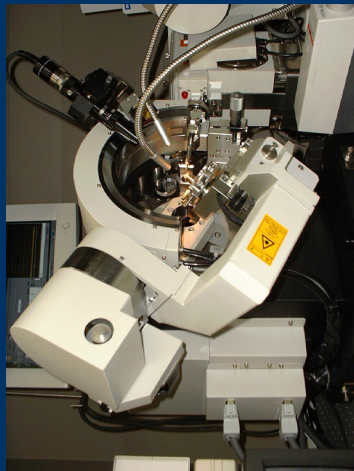
右上：
生体擬似溶液中で形成した
アパタイト。
生体が造るアパタイト結晶
(生体アパタイトと類似した
低結晶性を示す。

右下：
FT-IR スペクトル。
アパタイトと同じような吸収を
1000-1100cm⁻¹領域に認める。
生体アパタイトの特徴である
CO₂による吸収を1450-1550cm⁻¹
領域に認める。

(T. Hayakawa et al., 2003)

12

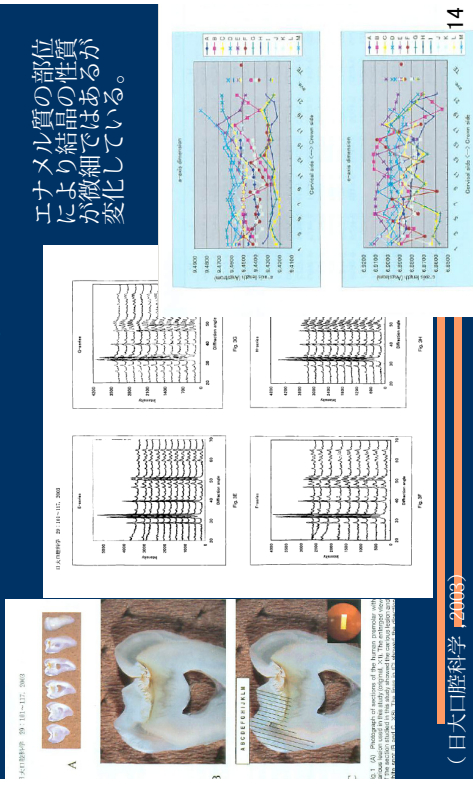
Standard XRD: PSPC micro-XRD Study



- 装置の特徴
- 100 μm ~ 10 μm の微小領域で測定できる。
- 湾曲型 PSPC により、短時間で測定可能
- 試料調整が容易

13

Standard XRD: PSPC micro-XRD Study - Human Tooth Enamel Crystallites -

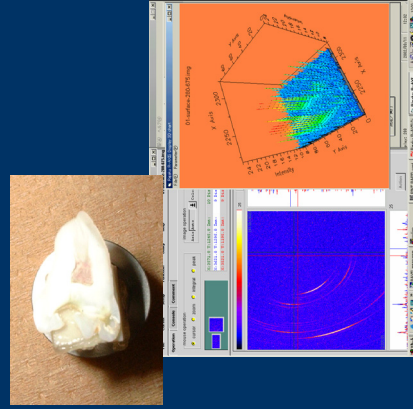


(日大口腔科学 2003)

14

Standard XRD: IP micro-XRD Study - Human Tooth Enamel Caries Crystals -

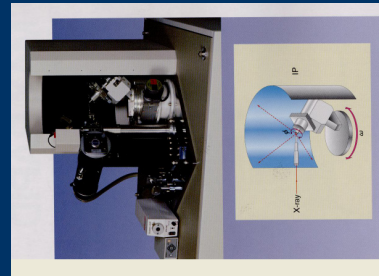
- むし歯
- アパタイトで構成されている。
- 結晶には異常な配向がみられる。



16

Standard XRD: IP micro-XRD Study

- 装置の特徴
- 100 μm ~ 10 μm の微小領域で測定できる。
- 反射法、透過法で実験できる。
- Imaging Plate に記録するため、
- 高感度
- 2次元情報が得られる。



15

LEBRA-PXR, FEL, XRD を利用した研究成果 1 Papers

- Application of LEBRA-PXR to the diffraction analysis of mineals. J Mineral Petrol, 2003
- Variation in composition of bone surrounding implants. Bioceramics 18, 2006
- Observation of newly formed bone around dental implant using Parametric X-ray. Bioceramics 18, 2006
- Characterization and bioactivity of tape-cast and sintered TCP sheets. J Biomed Mater Res, 2006
- パラメトリック X 線と歯科用 X 線を比較したインプラント周囲の新生骨の観察. 日大口腔科学, 2006
- Pit formation in human enamel and dentin irradiated using the 2.94 mm LEBRA-Free electron laser. Int J Oral-Med Sci, 2005
- An unusually large submandibular salivary calculus: Case report and structural analysis. Int J Oral-Med Sci, 2004
- Intermittent crystal growth of unusually long submandibular sialolith revealed by micro-focus- and selected-area X-ray diffraction. J Hard Tissue Biol, 2003
-

17

謝辞

- ➔ この研究は、
- H12-H16, H17-H19MEXT 日本大学電子線利用研究施設学術プロジェクト推進事業
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」
- H16-H17 日本大学学術研究助成金（総合研究）
「パラメトリック X 線を用いた生体硬組織・生体材料の評価システムとその応用」
- H17-H19, ICPS 科学研究費補助金（基盤 C）
「自由電子レーザーが歯のエナメル質と象牙質に及ぼす ablation 効果とその応用」
- ➔ の補助により行われた。
- ➔
- ➔ 実験研究を遂行するにあたり、LEBRA の方々には準備にはじまり装置設備の補充、実験条件の厳しい要求に応えていただき、また貴重な助言を頂いた。
- ➔ ここに記して感謝の意を表す。

19

LEBRA-PXR, FEL, XRD を利用した研究成果 2 Presentations

- 寒河江登志朗、長瀬あゆみ、寛光夫 (2005) 生きている化石ミドリシヤミゼンガイの介殻の結晶について. 化石研究会
- 長瀬あゆみ、寒河江登志朗、寛光夫 (2005) 珪化した化石恐竜脚竜の構造と鉱物組成. 化石研究会

18



2017年度先端フロンティア推進事業研究計画（継続）
PXRを用いた位相コントラストイメージング

2016年 3月 16日

高橋由美子(理工・物理), 早川恭史(量科研), 桑田隆生(大学院総合科学)
 森 啓(薬学部), 高野良紀(理工・物理), 飯田厚夫(KEK, PF)



研究目的

PXRの特徴
 パルス性
 指向性・コヒーレント
 エネルギー可変

➡

光学系の確立
 ソフトマターへの応用

階層的秩序形成過程、外場への応答特性、反応過程の観察

2



実験方法

パルス
 Macro pulse 20 μs, 2 Hz
 Micro pulse 1 ps, 3 GHz

指向性・コヒーレント
 H60μrad, V250μrad
 d_L = 1.3μm@15keV

エネルギー可変
 6~19keV

時分割X線回折法
 スメクティック液晶の電場応答

➡

位相差イメージング
 液晶／高分子混合系の相溶性、光照射による構造変化

➡

X線異常散乱
 結晶のポラリティ

3



位相差イメージング

複素屈折率: $n = 1 - \delta - i\beta$

$$\delta = \frac{\lambda^2 r_e}{2\pi} N$$

$$\beta = \frac{\lambda}{4\pi} \mu$$

λ : X線の波長, r_e : 古典電子半径,
 N : 物質の単位体積中の電子数,
 μ : 線吸収係数

軽元素では $\delta \gg \beta \times 10^3$ $\delta \sim 10^{-6}$

位相シフト: $\phi = \frac{2\pi}{\lambda} \int \delta dz$

4

位相差イメージングの方法

干渉法 (ϕ)

光学系の位置精度<X線の波長
($<0.1\text{nm}$)

回折法 ($\nabla\phi$)

in-line
ホログラフィー法
($\nabla^2\phi$)

高い空間コヒーレンス

Physics Today 2000, 6

空間的コヒーレンス

$$d \approx \frac{\lambda}{\Delta\theta} = \frac{\lambda R}{r}$$

d : コヒーレンス長, λ : X線の波長, $\Delta\theta$: 光源を見込む角,
 R : 光源からの距離, r : 光源サイズ

SPRing8 (BL47XU): $d = 27.3 \mu\text{m}$ @ 20 keV
マイクロフオカスX線: $d = 1.5 \mu\text{m}$ @ 20 keV
PXR: $d = 1.0 \mu\text{m}$ @ 20 keV,
 $d = 1.3 \mu\text{m}$ @ 15 keV

6

位相差イメージング 光学系

7

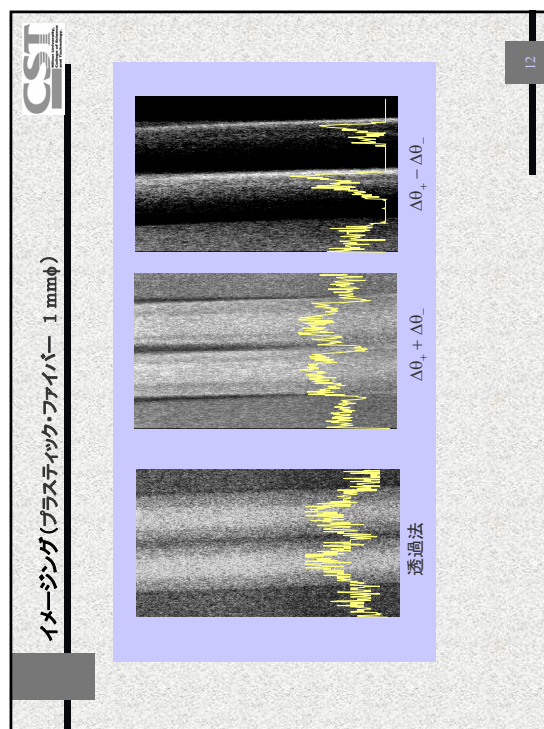
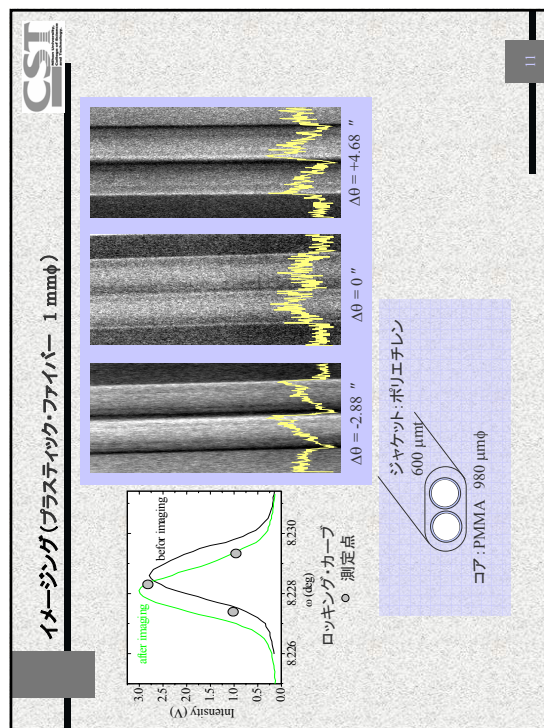
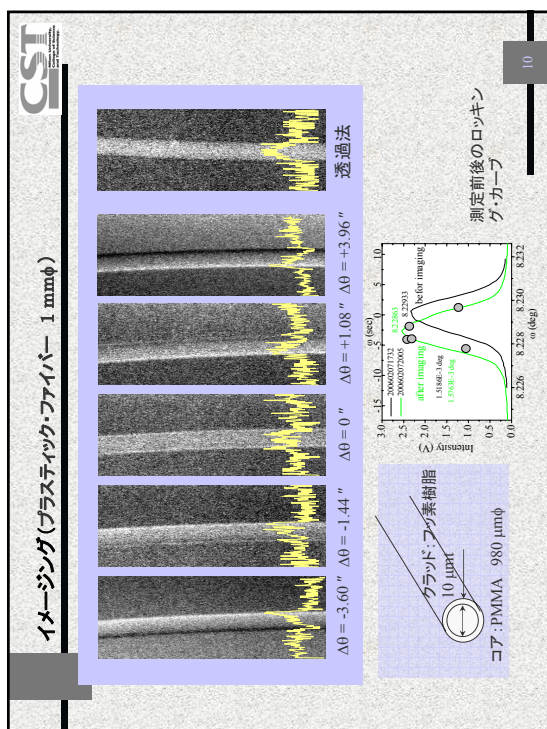
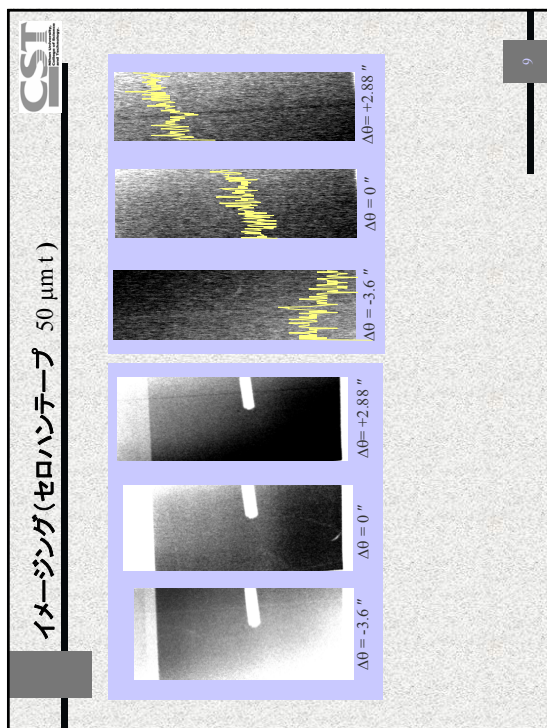
測定条件

PXRエネルギー: E=14keV 試料: セロハンテープ
検出器: イメージングプレート(IP) プラスチック・ファイバー
空間分解能: $\sim 50 \mu\text{m}$ イエオニグモ乾燥標本
露光時間: 15 min (net 36 ms)
30 min (net 72 ms)

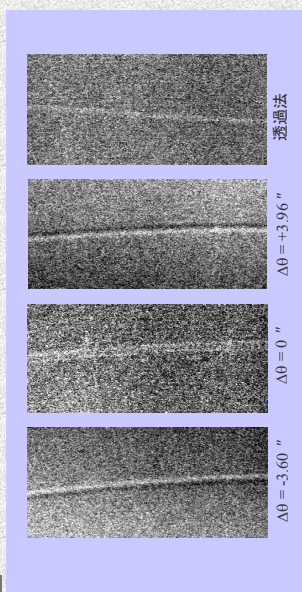
8

アナライザ結晶 ロッキング・カーブ

77

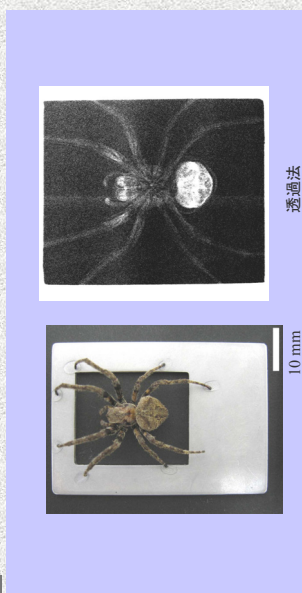


イメージジグ(プラスチック・ファイバー 250 μmφ)

 $\Delta\theta = -3.60^\circ$ $\Delta\theta = 0^\circ$ $\Delta\theta = +3.96^\circ$

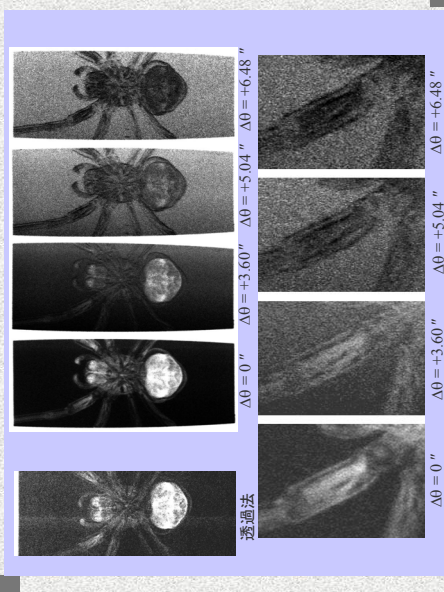
透過法

イメーjing(イエオニグモ乾燥標本)

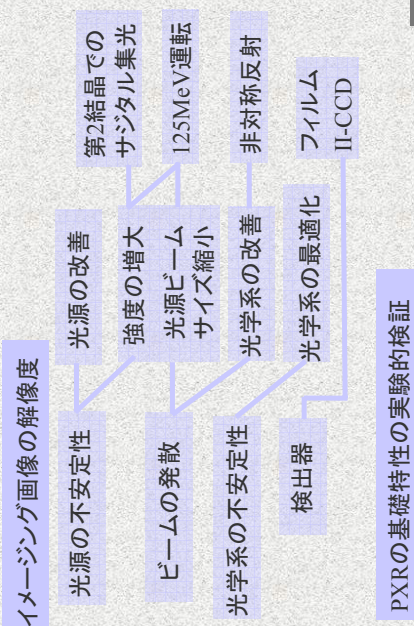


10 mm

イメーシング(イエオニグモ乾燥標本)


$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$
$$\Delta\theta = 0'' \quad \Delta\theta = +3.60'' \quad \Delta\theta = +5.04'' \quad \Delta\theta = +6.48''$$

課題と展望



光源の不安定性

光源の改善

田村の雄

田村の雄

強度の増大

サジタル集光

ビームの発散

光源ビーム

125MeV運転

学系の不安定性

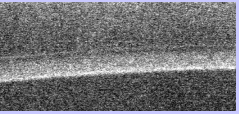
無名の空糸糸

藍田縣志

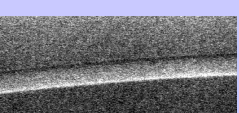
藍田縣志

PXRの基礎特性の実験的検証

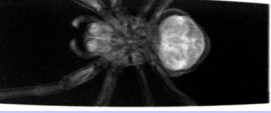
試料－検出器距離(r_3)による違い



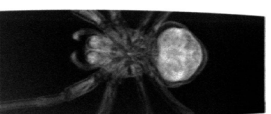
$r_3 = 555 \text{ mm}$



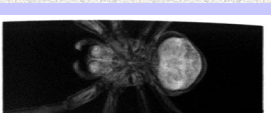
$r_3 = 135 \text{ mm}$



$r_3 = 550 \text{ mm}$



$r_3 = 330 \text{ mm}$



$r_3 = 150 \text{ mm}$



17

課題と展望

～ μm の空間分解能
測定時間の短縮(パルス性を活かした測定)

↓

応用

- ・ 高分子ブレンドの相分離
- ・ 液晶／高分子混合系の相溶性や光照射による構造変化
- ・ 生物・医療応用

PXRの機能を十分に活かした評価



18

80

*Application of x-ray refraction based
computed tomography
based on the refraction contrast to biomedicine*

Eiko Hashimoto^{*a}, Anton Maksimenko^b, Hiroshi Sugiyama^{a,b}, Kazuyuki Hyodo^{a,b}, Daisuke Shimao^a, Tetsuya Yuasa^c, Yoshinori Nishino^d, Tetsuya Ishikawa^d, Yoshinori Arai^f and Masami Ando^{a,b}

^aGraduate University for Advanced Studies (GUAS), 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki, Japan
^bPhoton Factory, Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization (KEK), 1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki, Japan.
^cYamagata University, 4-3-16 Jonan, Yonezawa, Yamagata, Japan
^dRIKEN Harima Institute, 1-1-1 Kouto, Mikazuki, Sayo, Hyogo, Japan
^fMatsumoto Dental University, 1980 Hirooka, Shiojiri, Nagano, Japan

2

Outline

- Object of study
- Characteristic of Refraction CT
- Experimental method
- Results
- Summary

3

Importance of the method:

1 Large intestine
2 Stomach
3 Breast

Annual mortality trends for leading causes of death in Japan

4

Object

- We applied the developed X-ray refraction based computed tomography (CT) to a biomedical object
- The algorithm used in this study to reconstruct CT images was made in our group
- Reconstructed images of breast cancer show details invisible in the absorption-based CT

Image formation-homogeneous media-⁵

Absorption Contrast

$I = I_0 e^{-\mu d}$

Absorption coefficient μ

Refraction Contrast

Snell's formula

$$\frac{\sin \phi_2}{\sin \phi_1} = \frac{n_1}{n_2}$$

Refraction coefficient n

Image formation-Inhomogeneous media-⁶

Absorption Contrast

$-\log \frac{I}{I_0} = \int_S \mu(\mathbf{r}) ds$

S : The beam pass
 μ : field of the Absorption coefficient inside the object

Refraction Contrast

$\Delta \alpha = \int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \sin \phi(\mathbf{r}) ds$

S : The beam path
 ∇n : The gradient of refraction
 ϕ : The angle between the direction of beam and ∇n
 $\Delta \alpha$: The total refraction angle of the X-ray after penetration

Extraction of refraction component⁸

* Si(220) analyzer rocking curve at 17.5keV

Refraction contrast⁷

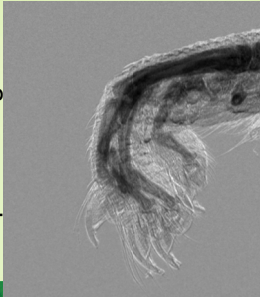
Without Sample

With Sample

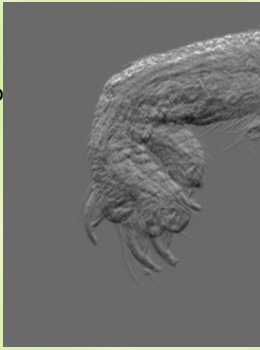
Example: The absorption and refraction images

9

Absorption Image



Refraction image



- ★ We have to separate, Absorption image and Refraction image using DEI method.
- ★ The absorption and the refraction images of the hand of the mouse.

BL14B at Photon Factory KEK

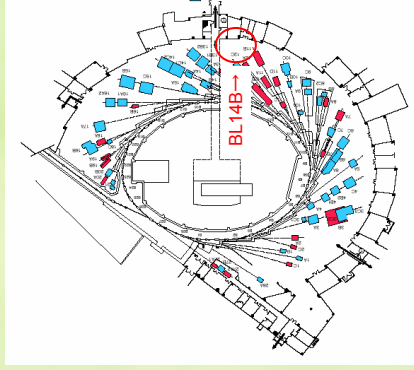
10



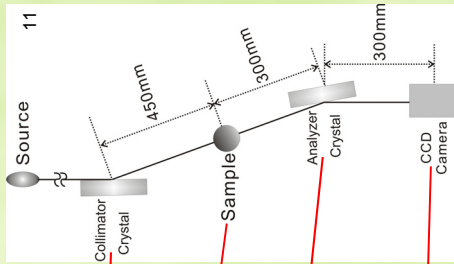
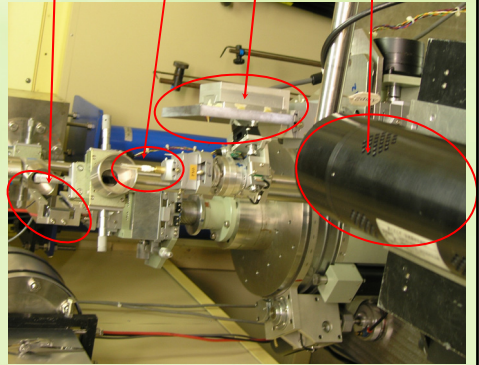
KEK



PF

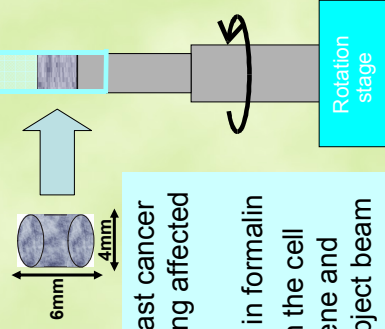


Set-up



Sample

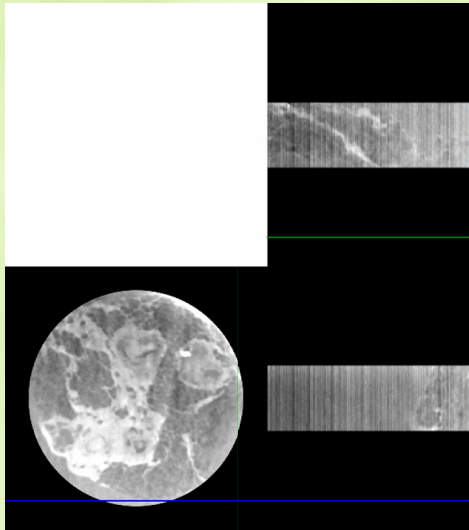
12



- ★ The extraction of Breast cancer & mesothelioma in lung affected by asbestos fiber
- ★ Fixation of the object in formalin
- ★ The sample placed in the cell made from polyethylene and rotated against the object beam

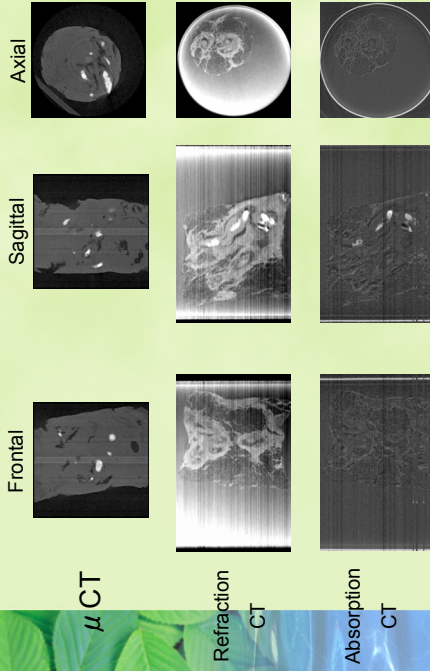
Movie of breast cancer

13

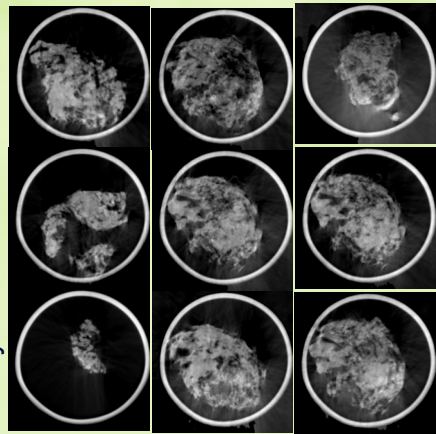


In comparison with μ CT

14



Observation of mesothelioma in lung affected by asbestos fiber



Conclusion and issues

15

- ✱ This study is the first attempt at application to the X-ray refraction based CT of real biomedical object.
- ✱ The x-ray refraction based CT system allowed successful visualization of small structures without adding contrast medium.
- ✱ We can visualize not only calcification but also breast cancer nest and lung mesothelioma.
- ✱ In future, we plan to observe clinical sample.

Acknowledgement

The experiment was carried out at the KEK-PF with the approval of the Program Advisory of the Photon Factory. (2004PF23)(2005PF08).

16

17

Thank you for your attention.

屈折コントラストに基づくCTの今後展開

- * 高分解能
- * 高コントラスト分解能



病理学の分野での応用
(病巣の広がり、深さ情報...)

放射光屈折CTは放射光以外の光源についての可能性

- * 屈折コントラスト→空間的にコヒーレンスなX線が不可欠
- * もし、放射光のようなコヒーレンスなX線光源を得ることができれば可能

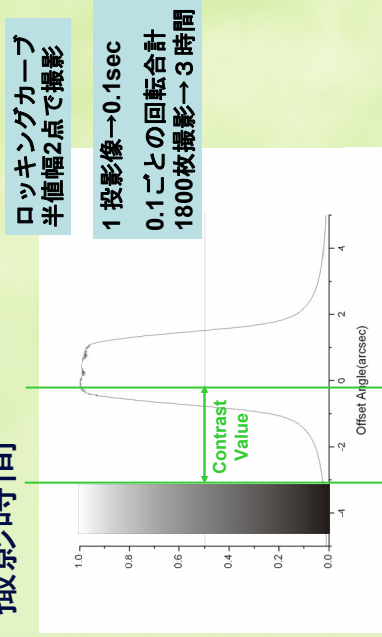
DEI法を用いる理由

- ★ DFIによるCTアルゴリズムは現在開発中
- ★ DEI法による屈折コントラストCTでのデータを最大限に得る。
- ★ DFIによるCT、DEIによるCTの比較。

屈折コントラストの利点

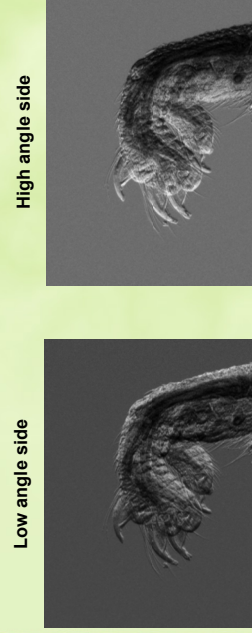
- ★ 屈折コントラスト→試料を形成する物質の密度の違いによる屈折率の変化
- ★ 吸収コントラスト→軟部組織の描画は難しい
- ★ 屈折コントラスト→軟部組織の描画を非常に得意

撮影時間



ロッキングカーブの半値幅の値の2点で撮影の理由

- ★ DEI法の性質上、異なる物質の境界にゴーストが見えます。これを解消するためには高角側、低角側の二回の撮影が必要



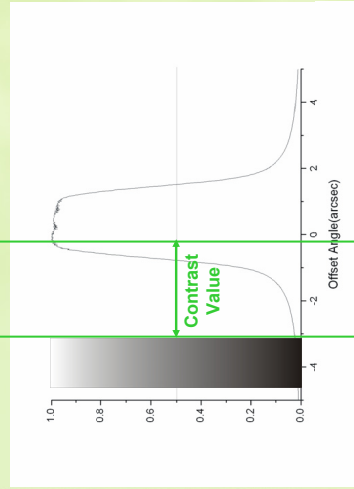
屈折コントラストに基づく手法

- * Maksimenko A, Ando M, Sugiyama H, Tetsuya Y, Computed topographic reconstruction based on X-ray refraction contrast, Appl Phys Lett **86**, 124105-1-124105-3, 2005
- * Maksimenko A, Ando M, Sugiyama H, Hashimoto E, "Possibility of computed tomography reconstruction of cracks from X-ray refraction contrast", Jpn J Appl Phys **44**, 633-635, 2005

分解能について

空間分解能→約20 μm
 CCDカメラピクセルサイズ6.7 μm による
 制約
 角度分解能→約10 marc sec
 今後の実験で詳細に測定する。

コントラストと構成物質の関係

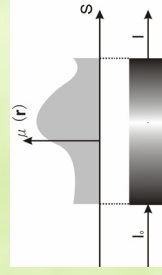


ロッキングカーブの最上点から、最下点までの屈折率の変化を画像として表示しています。

Formula-Absorption contrast-

However if the object is not homogeneous,

$$-\log \frac{I}{I_0} = \int_S \mu(\mathbf{r}) ds$$



S : The beam pass

μ : field of the Absorption coefficient inside the object

Formula of refraction contrast

★ When X-ray penetrate thorough inhomogeneous media

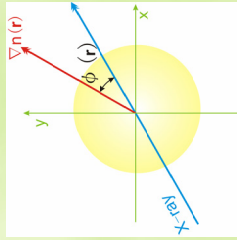
$$\Delta\alpha = -\int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| \sin \phi(\mathbf{r}) dS$$

S : The beam path

∇n : The gradient of refraction

ϕ : The angle between the direction of beam and ∇n

$\Delta\alpha$: The total refraction angle of the X-ray after penetration



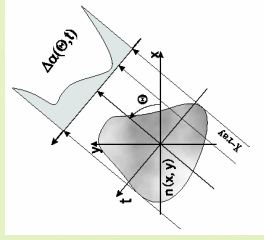
Formula of refraction contrast

The whole refraction angle of the X-ray after penetration in sample

$$\Delta\alpha(\Theta, t)e^{i\Theta} = -i \int_S |\nabla \tilde{n}(\mathbf{r})| e^{i\Theta} d\mathbf{r}$$

Θ : The rotated angle

S : The beam path



Suppress of background

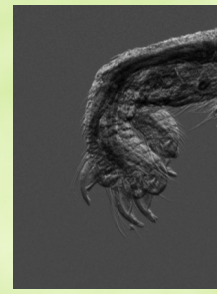
Low angle side

Raw image



Background image

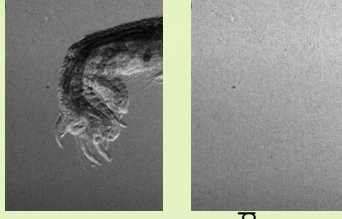
After the suppress of background process at low angle side



Suppress of background

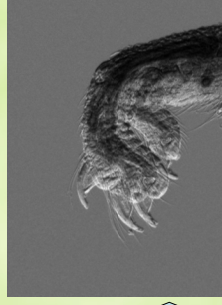
High angle side

Raw data



Background

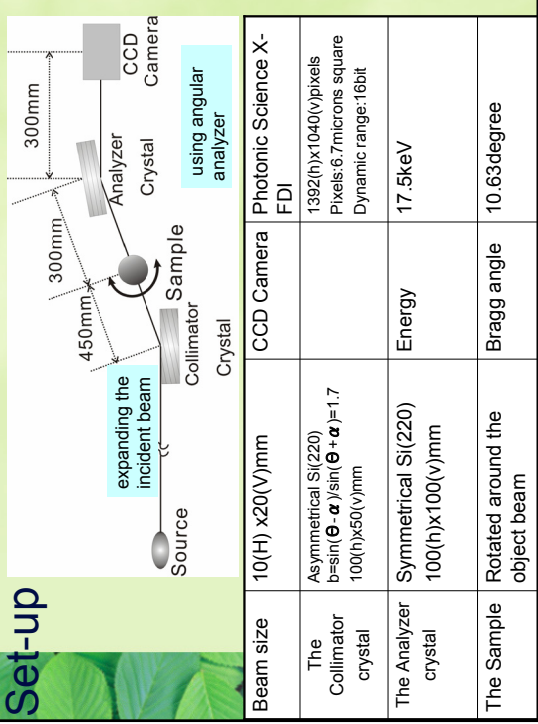
After suppressing background



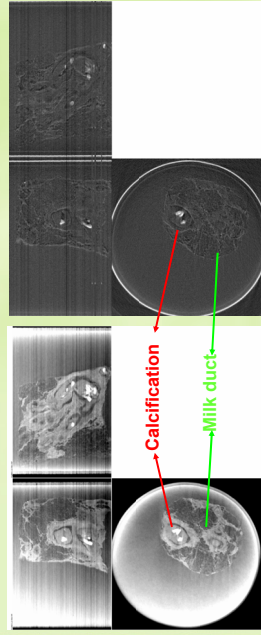
Experimental Conditions at KEK-PF BL14B

Beam energy	2.5GeV
Initial beam current	450mA
Insertion Devices	5T Vertical wiggler
Monochromatic	Si(111) band width 10~20keV
Beam size	10(H)mm x 20(V)mm

Set-up



Result(1)



Refraction contrast

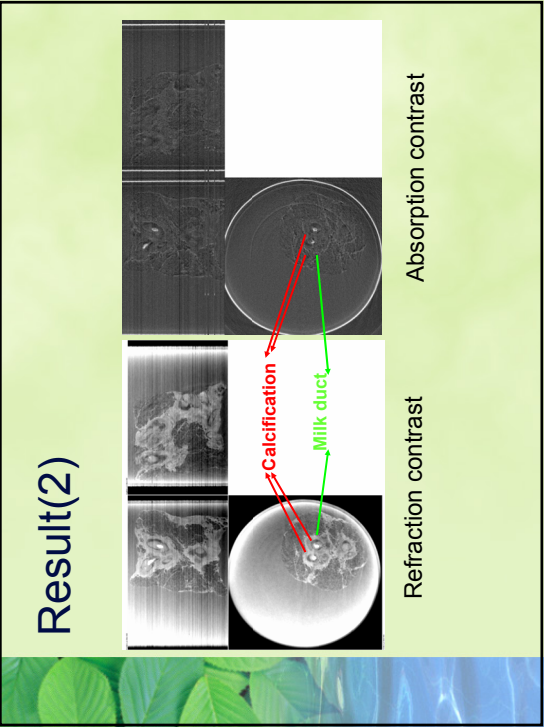
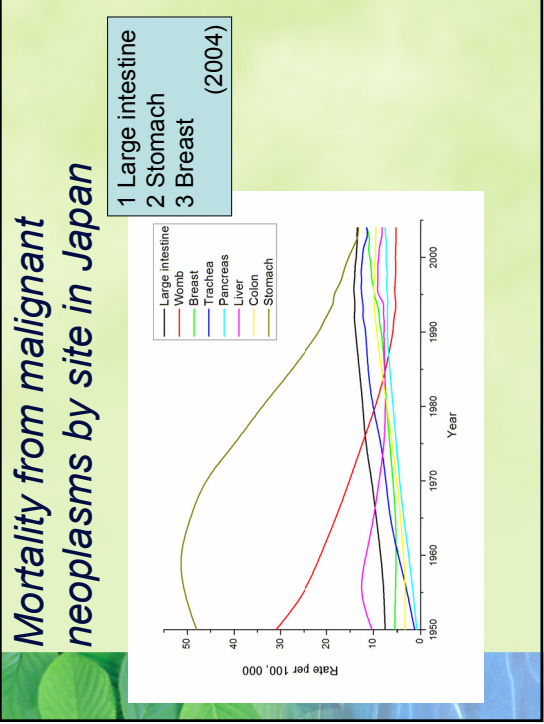
Absorption contrast

μ CT

μ CT (R_mCT)

Matsumoto Dental University

Voxel matrix	Voxel size(μ m)	Imaging volume(mm)	focus spot to rotation center distance(mm)		rotation center to sensor distance(mm)
			X-ray tube	X-ray sensor	
512x512x3 84	100x100x100	51.2x51.2x38.4	hamamatsuPhotoni cs	hamamatsuPhotoni cs	100
512x512x3 84	30x30x30	15.3x15.3x11.5	L9181S	hamamatsuPhotoni cs	300
512x512x3 84	10x10x10	5.1x5.1x3.8		C7336	300



LEBRA Linac の特性

量子科学研究所 早川 建

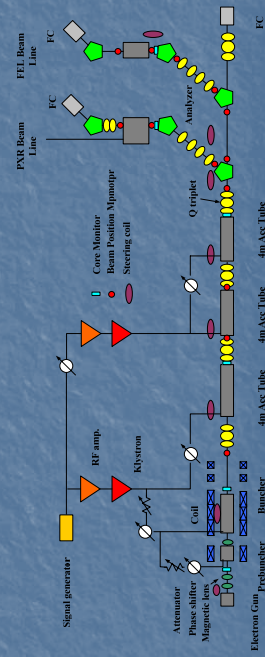
1

目次

- Linac の構成
- 電子ビーム変動の測定
 - 軌道変動
 - エネルギー変動
- 対策

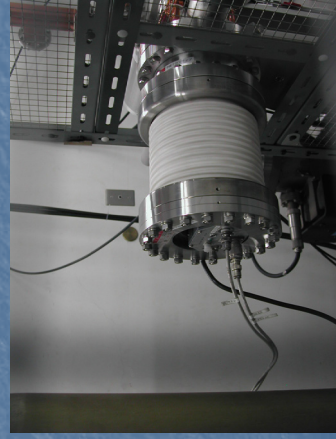
2

Linac ブロック図



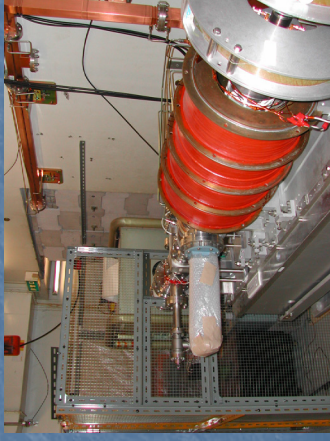
3

電子銃



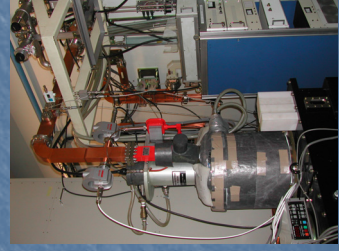
4

バンチャー



6

クライストロン



8

プレバンチャー



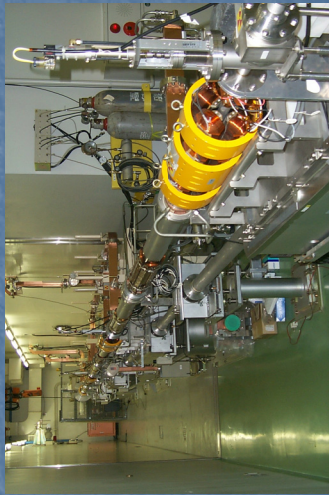
5

加速管



7

Linac 全景



9

Undulator & PXR chamber



10

制御室の風景



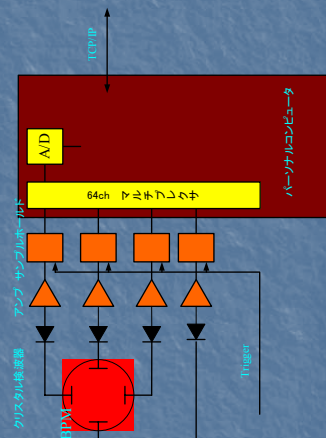
11

ビーム測定

電流値: コアモニター
(フェライトコアを用いた電流トランス、非破壊型)
: フアラデーカップ
(ビームダンプ兼用)
ビーム位置: Beam Position Monitor (BPM)
(ビームダクト内に取付けられたアンテナにより、
電子ビームによって励起されたマイクロ波を
ピックアップする。非破壊型)

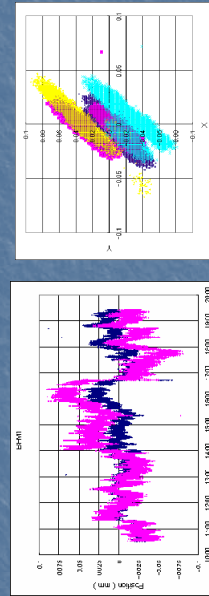
12

BPM & BPM server



13

電子銃？に起因する位置変動

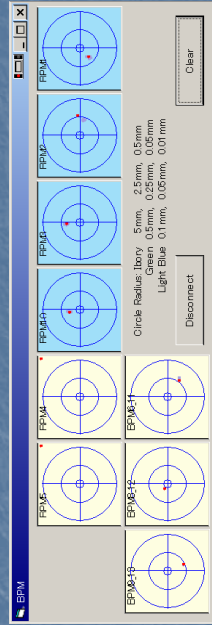


BPM11により測定したビーム位置の時間的変動。16:40頃軌道調整をしている。
ビーム位置約2時間づつ色分されている。

ここでは示していないが、電子銃から電流を取り出し始めの数時間にわたってビーム位置がドリフトする。総変位量は0.5mm程度にもなる。

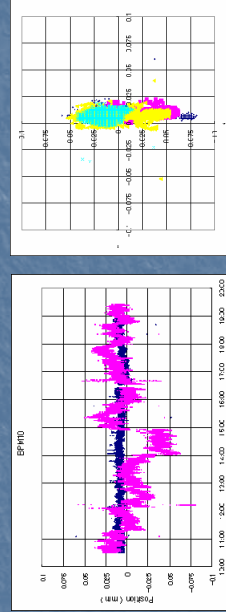
15

BPM client sample



14

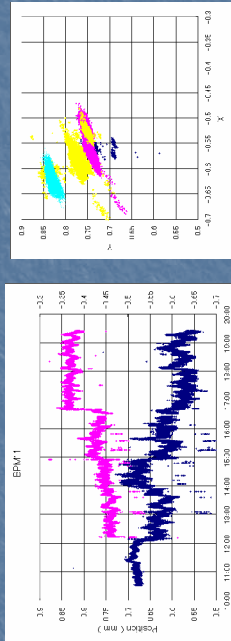
Linac 出口におけるビーム位置



この場所では、ビームは、水平方向には、ほとんど動いていない。

16

アナライザー通過後のビーム位置



電子銃に由来すると思われる変動はここでも表れている。

PXRビームラインではアナライザー通過後もこの程度の変動に収まっているが、FELビームラインでは、変動が拡大している。

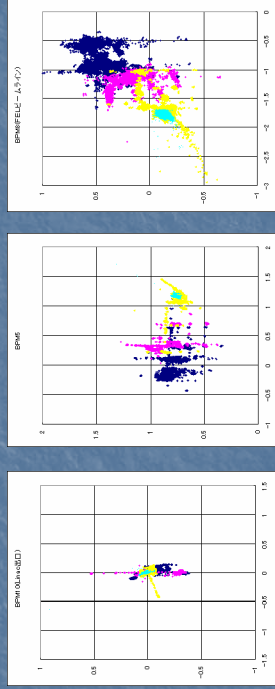
17

ビーム変動の影響

- 電子銃に由来すると思われる振幅0.1mm程度の変動がLinac全域とPXRビームラインで観測されている。
- FELビームラインでは、変動が5倍くらい拡大している。
- この変動のPXRに与える影響は、明らかではないが、FELの発振状態には影響を与えていると思われる。

19

FELビームライン



Linacを出た後変動の振幅が次第に拡大している。集束条件が不適当か。分布が離散的なのは、軌道調整をしているためである。

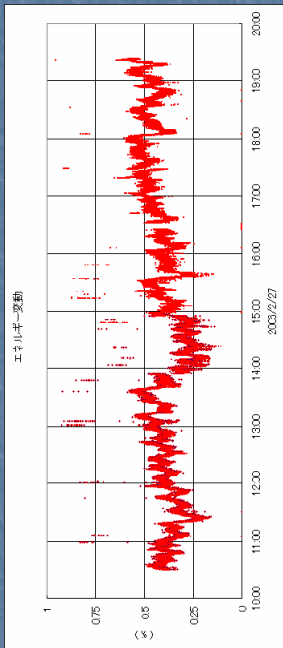
18

エネルギー測定

- アナライザーを通過中のビームは、エネルギーの違いにより、水平方向に分散を生ずる。
- 最初の偏向電磁石直後に設置されたBPMによってビームの水平位置を読み取れば、そのビームの持つエネルギーを知ることができる。
- 換算係数は
0.24%/mm

20

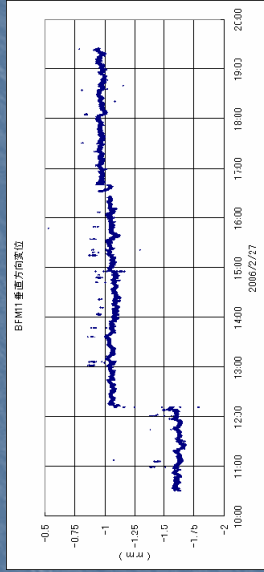
PXR実験時のエネルギー変動



変動幅は概ね0.3%(全幅)だが、時々0.4%程度急激に変化することがある。

21

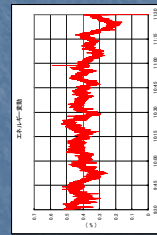
アナライザー 垂直方向変位



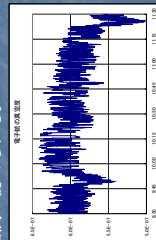
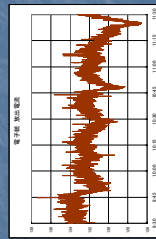
12時過ぎと16:40頃にビーム調整をした痕跡が見られる。
調整時の変位を除けば、変動幅は0.1mm程度。

22

加速電流とエネルギー変動



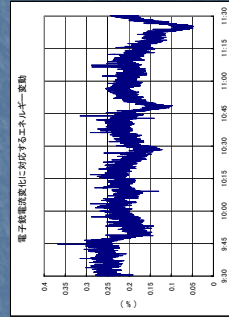
電子銃電流とエネルギー変動との間には強い相関が認められる。



電子銃電流は200mA、この図はフルスケール~2mA

23

加速電流とエネルギー変動



加速エネルギーのビーム負荷による変化はおよそ、
17 MeV/A/m である。

加速管の総延長はおよそ12mであるから、全変動は
0.2 MeV/mA

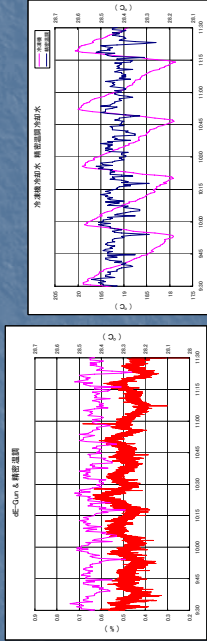
100 MeV のビームに対して、
0.2%/mA

実験値と矛盾しない

データから概算した電子銃電流変化に対応するエネルギー変動割合は、
0.15%/mA

24

加速管冷却水温度とエネルギー変動

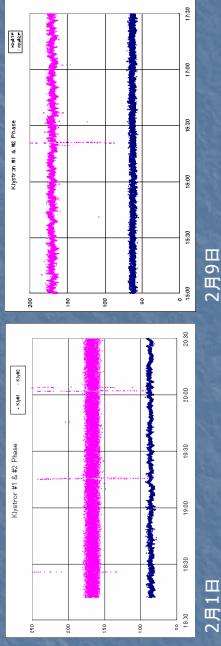


精密温度冷却水とエネルギー変動から電子銃電流変動の寄与分を差し引いた量。
同じ周期の変動を示している。

精密温度冷却水と冷凍機水温。
精密温度冷却水の変動は主に冷凍機水温変動に由来すると思われる。

25

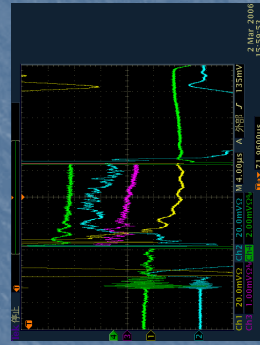
クライストロン出力の不安定性



クライストロン出力の位相変動、#1(下) #2(上)、変動幅は短期間大きく変化している他は、2月1日のデータでは、全幅で $\sim 0.3^\circ$ (#1)、 $\sim 0.7^\circ$ (#2)。周期の短い#2の変動はエネルギーの周期の短い変動と強い相関がある。
この変動幅は#1, #2共に日々変化している。

26

Klystron#2 位相波形異常



Klystron#2の位相波形が時々異常な形状を示す。左の図ch2(水色)

正常時は#1(ch1 黄色)のような波形
この時、細かい構造が表れると共に全体として2-3度(-60mV)跳び、エネルギーが変化すると共に軌道も動くようである。

この現象はクライストロン内部の電子ビームの挙動に由来するものらしく、集束の状態を変えると、発生頻度が変化する。

27

エネルギー変動の影響

- 電子ビームのエネルギーは主に以下の要因で変動している。
 - 電子銃放出電流の変動
 - 加速管冷却水の温度変化
 - クライストロン出力の不安定性
- PXRに与える影響は不明。
- FELは波長が変動し、発振の状態も変わる。

28

対策 I

- 軌道の変化は、電子銃に由来するとすれば、カソードを交換する他には対策は無いように思われる。カソードを交換しても直る見込みはあまり無い。
- 電子銃から放出される電流は、電子銃のグリッド電圧を制御することにより、変化しないようにすることは可能である。但し、電子ビームの性質が僅かに変化する。

29

対策 II

- 加速管冷却水の温度変化は小さくできる可能性はある。現在工事中。
- クライストロンの位相変動は、原因不明である。
- 加速エネルギーは加速位相を制御することにより、変動幅を小さくすることはできるが、ビームの状態を変えるため、PXRの安定化には有効であっても、FELの発振を長時間維持するのは難しい。

30

他に変化しているものは無いのか

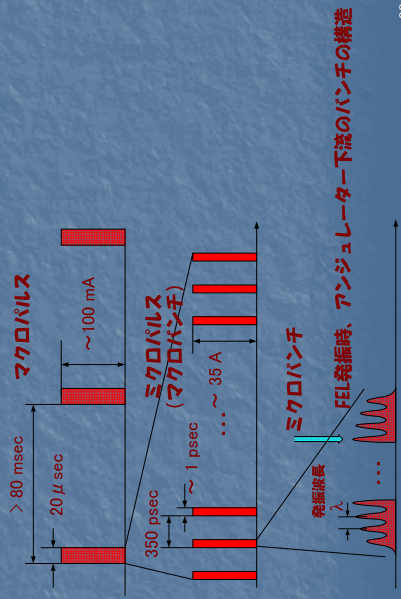
- きっと有ります。

31

FIN

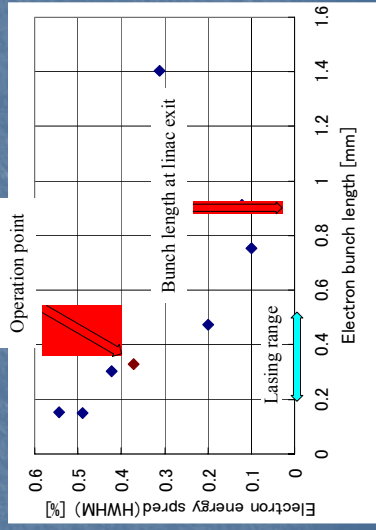
32

電子ビームとFELの時間構造



33

FELビームラインにおける 電子ビームのバンチ長



34

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

自由電子レーザー転写による機能性材料の直接描画

Direct patterning deposition of functional materials by free electron laser induced forward transfer method

鈴木 薫 (日本大学 理工学部 電気工学科)
Kaoru SUZUKI *
College of Science and Technology, Nihon University
Department of Electrical Engineering,
Tel. & Fax.: 81-3-3259-0770, E-mail: kaoru@ele.cst.nihon-u.ac.jp

学術フロンティア推進事業
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」
平成18年3月17日
日本大学 理工学部 船橋校舎 1325室

1

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

【機能性薄膜形成】

薄膜とは膜の一種であり、厚さとしては単原子層から5 μmまでのものを指す（それ以上の厚さのものを厚膜という）
(例) LaOCoSのc軸
格子定数: 8.50 Å → 9900層
線幅: 3.5 nm → 76 μm; 3
→ 105 nm → 124層
7ナノメートルの膜
格子定数: 9.514 Å → 5000層
線幅: 3.5 nm → 76 μm; 3
→ 105 nm → 110 層

現在では、半導体(Si, GaAs)又は絶縁体→広パルスレーザー半導体
光電変換: 太陽電池: CuAlO₂/ZnO, DLC
発光素子: Diamond, LaOCoS, ZnO
熱電変換: SiBx, ZnSb, NaCoO₂/CaMnO₃
圧電性: PZT → 光電: PLZT
応力発光: ZnS, Mn, SrAl₂O₄, Eu

膜とは基板の表面に被着した他の固体物質の極めて薄い層であり、基板なしでは存在できないもの（基板なしでも存在できるような薄い層を指す）

過去においては
金属膜 → 導電
電気的
絶縁膜 → 絶縁
絶縁膜 → 機械的
化学的
受動的

成膜方法として、
蒸着法 → レーザ蒸着法
MBE法 → レーザMBE法
スパッタ法 → レーザスパッタ法
後方: PLD法
前方: LIFT法
MAPLE-DW法

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

(a) 真空蒸着: 目的物質をターゲットで蒸発し、蒸着による気体分子の蒸着により、蒸着・蒸着、昇華による気体分子の蒸着への増幅

(b) MBE: 超高真空中で電子銃等により蒸着・蒸着、昇華による気体分子の蒸着への増幅

(c) レーザ蒸着: 目的物質をターゲットで蒸発し、蒸着による気体分子の蒸着により、蒸着・蒸着、昇華による気体分子の蒸着への増幅

(d) レーザMBE: 目的物質をレーザーで蒸発し、蒸着により多元素物質を蒸着・増幅: エンベロープ

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

(e) LIFT: レーザ光をターゲットに照射し、ターゲットを蒸発させ、ターゲットを蒸発させ、ターゲットを蒸発させる

(f) PLD: レーザ光をターゲットに照射し、ターゲットを蒸発させ、ターゲットを蒸発させる

(g) レーザ蒸着: LIFT (Laser Induced Forward Transfer) による蒸着・蒸着、昇華による気体分子の蒸着への増幅

(h) レーザMBE: 目的物質をレーザーで蒸発し、蒸着により多元素物質を蒸着・増幅: エンベロープ

真珠核非破壊検査に関する研究の背景

現在、真珠核の原材料として米國産のどぶ貝（ミシシピ川、デネシー川：イシガイ科ワボタンガイ亜科）が使用されている。ところが、数年前から中國産のヤコ貝を原料とした安価な核が世界の養殖場に販賣され、ワシントン条約によって禁止されているシャコ貝の核が市場に流出したため問題となっている。

核の時点でもシャコ貝核とどが貝核の判別は困難であり、真珠になっ
てからは全く判別できないのが現状である。シャコ貝核の真珠は穴開け
の際に核が割れるので、その時点でも購入者も分かってない状況である。
また、米国よりワシントン条約違反のシャコ貝核を使った真珠の輸入は
禁止しなければCIBJO (International Confederation of Jewelry
Silverware, Diamonds, Pearls and Stones) の日本代表にも連絡が入っ
ており、国際問題となっている。

そこでシャコ目核真珠とどぶ貝核真珠の非破壊による検査方法の確立と判別装置の開発が急務となっているため、本研究を遂行するものである。

シヤコ貝核製造所 中国 海南島 2003.10.3



【 Background 】

真珠の母貝：原産地表示 アコヤ貝：三重、房総（日本） "Puker", Thailand "Ouang Ninh" Vietnam	白蝶貝：オーストラリア 黒蝶貝：タリ沖縄 真珠殻：内包材表示 ドブ貝：米、ジャバ、ア （真珠構造）	白蝶貝：池蝶貝（真珠構造） シャコ貝：カシノ条約違反 アラガガ、マダガ、人造物 （747773）	真珠は非常に高価であるので、市 場に出るのと原産地と内包する核を 決定する困難
--	---	---	---

マーマーキングが必要
審美性（美さを損ねない）
無毒性（人の肌に触れ、養
殖時には目に挿入するため）

直描マーキング；
レーザーマーク
ドットパターン；微小穴を穿孔
インクジェット；微細を与える
自由電子レーザ転写
レーザー誘起前方転写：LIFT
(Laser Induced Forward Transfer)
転写する材料を選ばない
蛍光材料等を添加可能な
自由電子レーザ転写 assisted pulsed laser evaporation direct writing
自由電子レーザ：近赤外光(0.8~6.4μm)分子運動に共鳴励起させてアブレーション分子蒸動による生分解性高分子ポリ乳酸；バイオ由来の生分解性高分子PVC、PS、PPと同等程度の機械的特性を有すモノマーが90℃で硬化

蛍光剤の添加

無毒性
生体蛍光(400~600nm):可視光
と重複しない近赤外域蛍光剤
目は近赤外光を透過



【 Object 】

○判別後のドブ貝核とシヤコ貝核及び養殖場の原産地表示等を行うために、マーキングが必要

○マキングは審美性に優れ、無毒性が必要

↑ トウモロコシを原料とした生分解性高分子

↑ ポリ乳酸エマルジョン

○貝の生体蛍光と識別が容易で、無毒性が必要

↑ 識別用蛍光剤：心・肝臓機能検査薬：ICGなど

○任意の溶媒を所定のパターンに直接描画

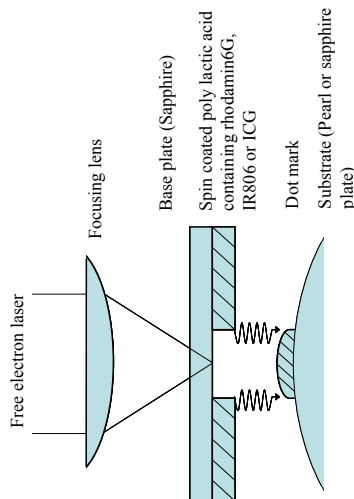
→ レーザ転写：Laser Induced Forward Transfer

○ポリ乳酸の固有な分子振動に
→ 自由電子レーザを光源

◎識別用蛍光剤添加ポリ乳酸による自由電子レザ転写の検討

◎ポリ乳酸と識別用蛍光剤の転写時における損傷の検討

【Experimental apparatus】



Schematic diagram of the free electron laser induced forward transfer method 9

【Experimental setup】

The experimental setup is illustrated in Fig. 1. A focused LEBRA (Laboratory for Electron Beam Research and Application, Institute of Quantum Science, Nihon University)-FEL (Free Electron Laser) beam was irradiated on to a target

The beam from FEL was directed through a sapphire focusing lens (Focus length: 8.4 mm) and sapphire base plate of target, then just focused on PLA layer about 300 micron of beam spot.

The target was prepared by spin coat method which were mixed the PLA sole of matrix polymer and containing rhodamine6G (Rh6G; 0.01 wt%, λ max:528nm), IR806 (C37H44ClN2NaO6S2; 0.1 wt%, λ max:806nm), Zinc Phthalocyanine (ZnPc; 0.1 wt%) or Indro Cyanine Green (ICG; 0.05wt%, λ max:807nm) of fluorescence agent on the sapphire base plate.

The coated side of the target was separate from the receiving sapphire substrate by 80 micron.

The surface morphology and physical properties were examined a microscope (NIKON, ME600), fourier transform infrared spectrophotometer (SHIMADZU, FTIR-8900).

The optical properties were measured by a UV-visible spectrometer (SHIMADZU, UV403150), and add the HeCd laser (KINMON, IK5351RD, 325/442 nm) for PL spectrum.

【 Property of LEBRA-FEL 】

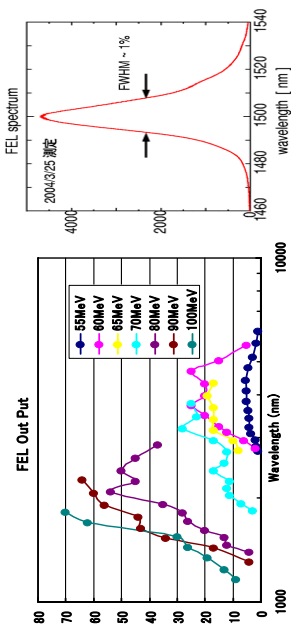
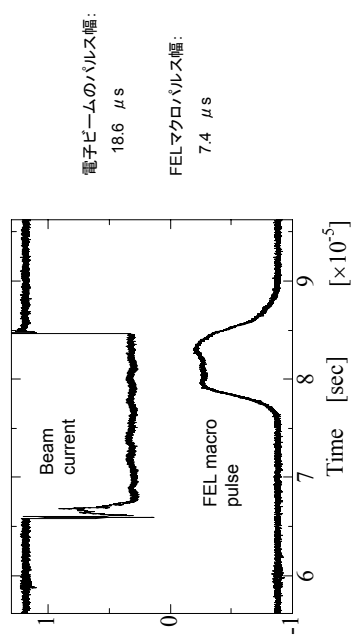
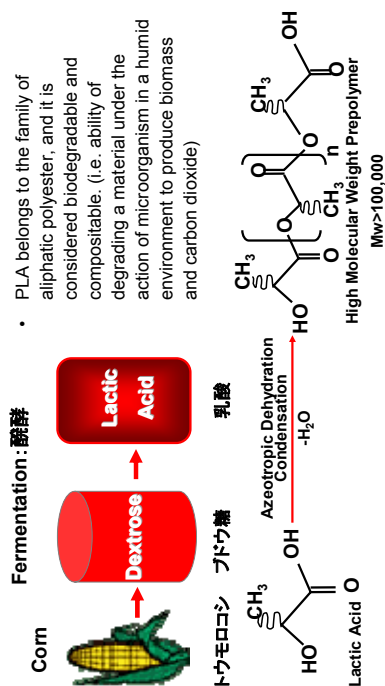


Figure 1-C Output and Spectrum property of FEL.



Azeotropic Dehydration Condensation of poly lactic acid.



Physical Properties of poly lactic acid

Properties	PLA
分子量 Molecular Weight	100,000 - 300,000
ガラス転移温度 (Glass Transition Temperature)	55 - 70 (°C)
融点 Melting Temperature	130 - 215 (°C)
結晶性: Crystallinity 結晶エネルギー Surface Energy	10 - 40 % 38 (dynes)
溶解性: Solubility パラメータ Parameters	19-20.5 (g ± cm ⁻³)
溶融熱 Heat of melting	8.4-93.1 (J g ⁻¹)
比重: Specific Gravity	1.25
溶融粘度係数 Melt - Index range	2 - 20 (g/10min)

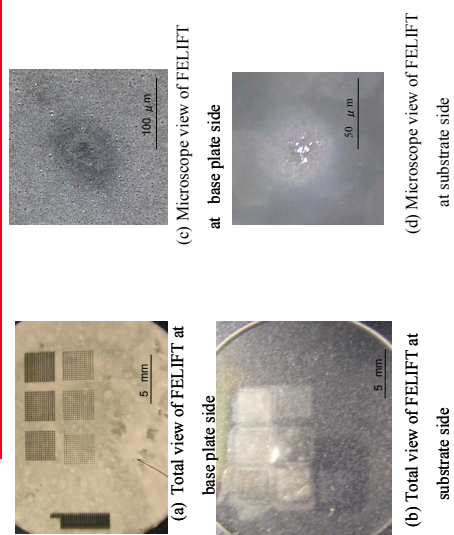
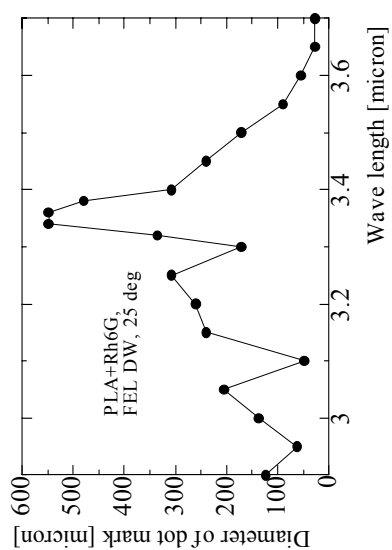


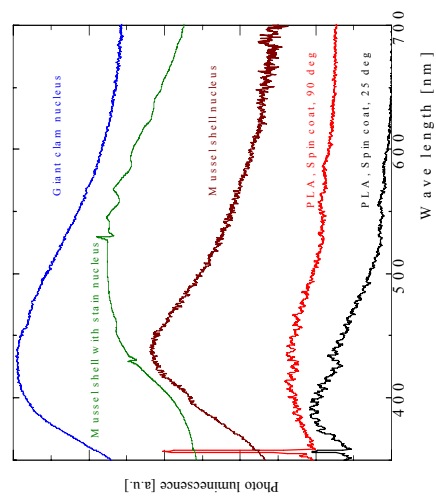
Fig. 2 Photograph of marking pattern by FELIFT

PLA+Rh6G,
FEL DW, 25 deg

Wave length [micron]

Fig.6 Dependence of diameter of dot mark on the FEL wavelength.

Fig.6 Dependence of diameter of dot mark on the FEL wavelength.



Giant clam nucleus

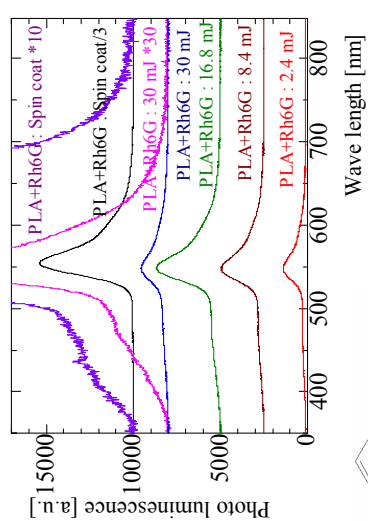
[illegible]

Mussel shell nucleus

PLA, Spin coat, 90 de

PLA, Spin coat, 25 de

Wave length [nm]



Rh6G Spin coat/3

[illegible]

Rh6G : 30 ml *30-

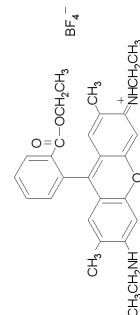
CC BY-NC-ND 4.0 International license.

LA+Rh6G : 30 mJ

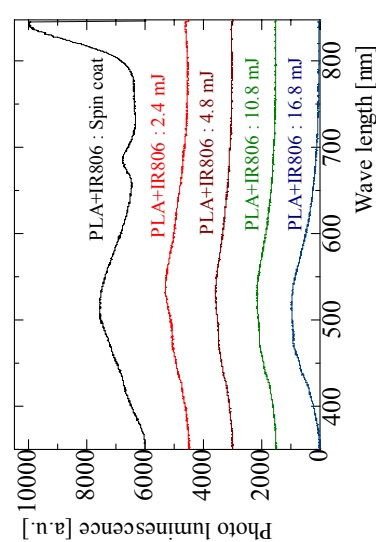
LA+KH6G : 16.8 mJ

LA+Rh6G : 8.4 mJ

Wave length [nm]

 $\lambda_{\max} = 528 \text{ nm}$

Hazards ID : Irritant



A+IR806 : Spin coat

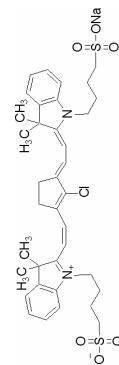
1000

AIRBOC-40-1

$$I_A + IR_{806} = 10.8 \text{ mW}$$

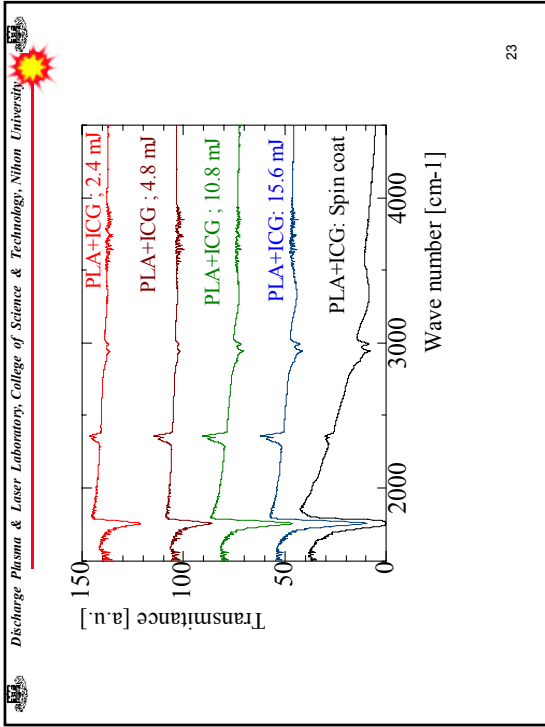
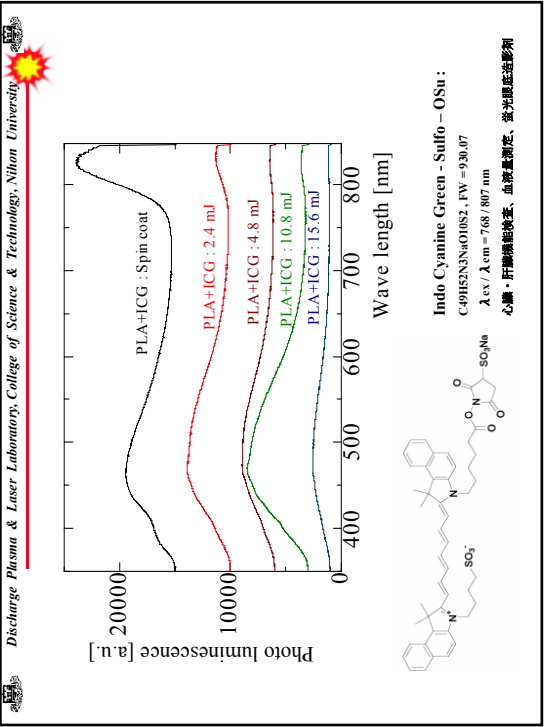
LA 10000 : 10.0 Hz

Wave length [nm]

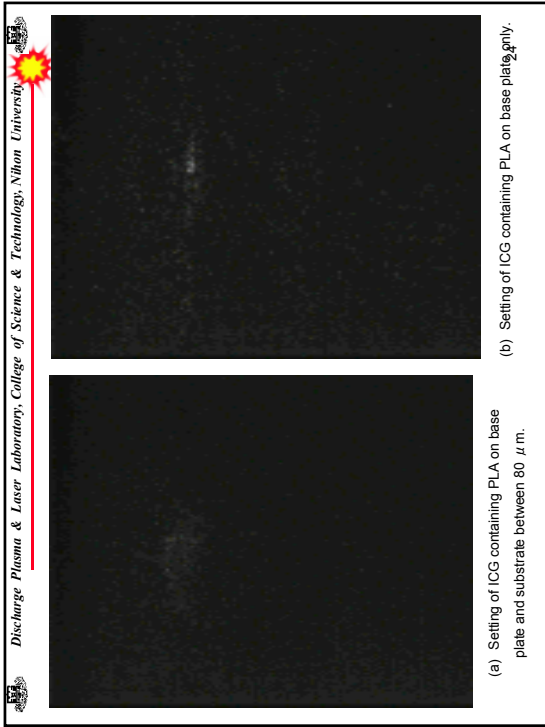
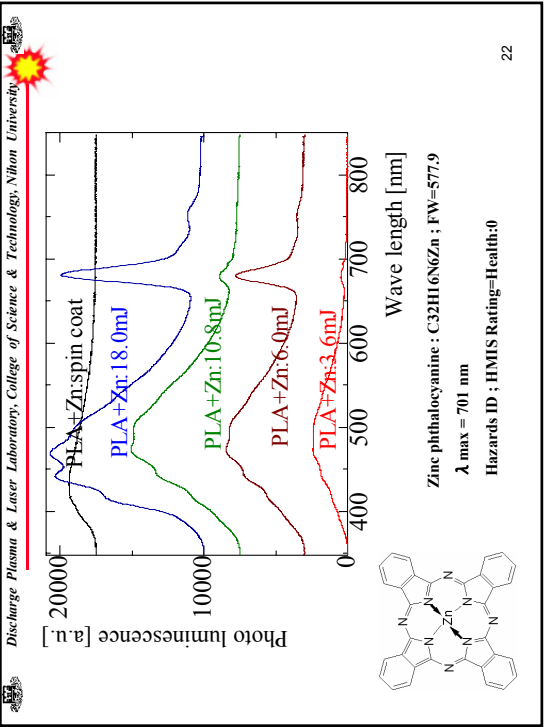


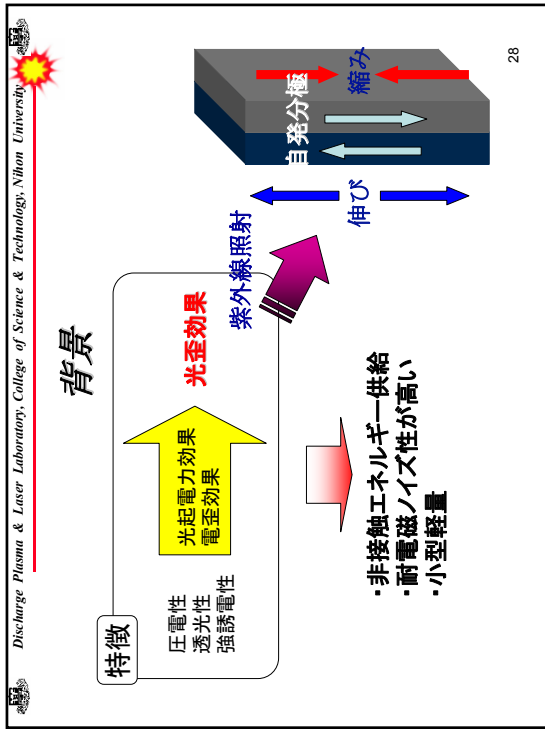
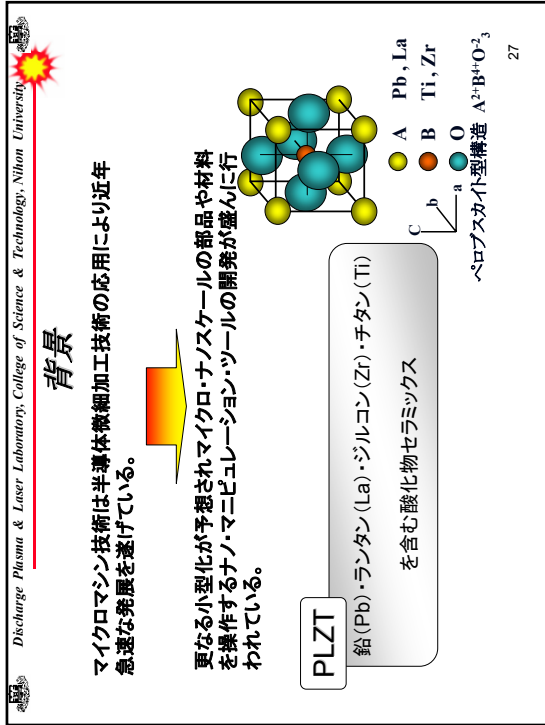
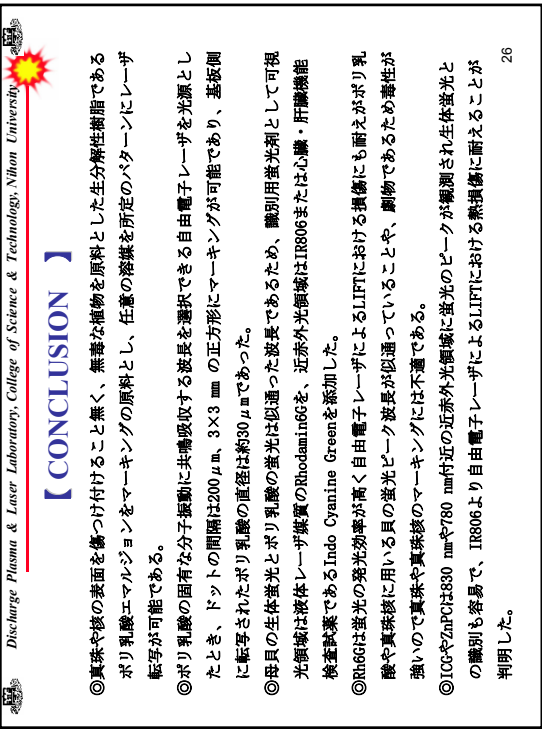
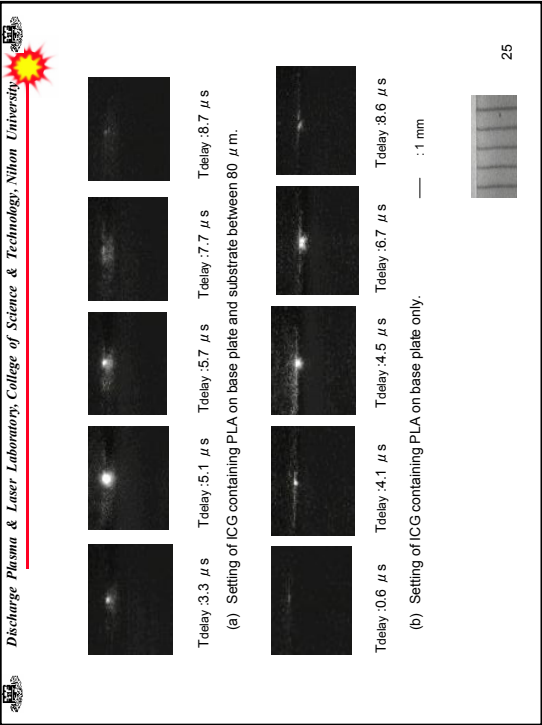
$\gamma_{\text{max}} = 80^\circ$

 $\lambda_{\text{max}} = 800 \text{ nm}$



23





Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

目的

我々はこの特性に着目
光歪効果を利用した無電極な紫外線照射によりナノメートル程度の駆動を実現する光マイクログロブセンサの作製を目指す。

指のような動作をさせることにより人間の手のように物を握む事が可能となる。

29

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

ゾルゲル法による成膜

IR298(赤外線ランプ)
熱電対
制御装置
基板 SiO_2/Si
PLZT
小型赤外線真空炉

PLZT薄膜形成剤 (三菱マテリアル(株)) 10wt% PLZT(115/140/60)

30

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

光照射時における起電力測定結果

最大吸収波長(360nm)付近の紫外光が含まれるキセノンランプ(KLV社製)を用いて25[Hz]のパルス光としてサンプルに照射

$V_{pp}=160[\text{mV}]$

この波形は誘電分極のイオンパルス応答における充電又は放電吸収電流と漏れ電流が重畳された特性に類似

31

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

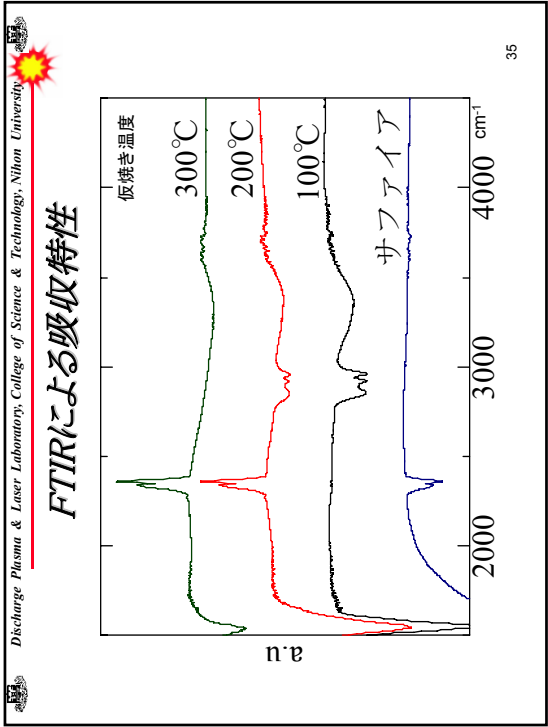
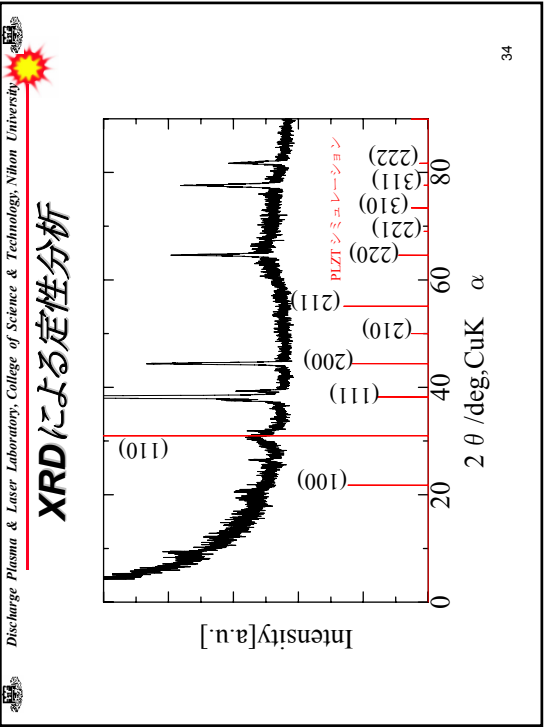
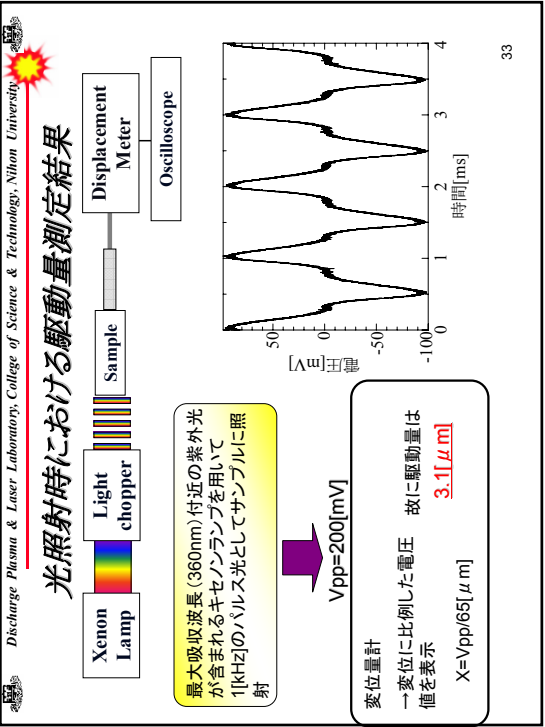
電圧印加時における駆動量測定結果

作製した試料に発信器にて50[V]、5[KHz]を印加

$V_{pp}=1[\text{mV}]$

変位量計
一変位に比例した電圧値を表示
電圧 V_{pp} [mV]
感度 65[mV/ μm]
駆動量 X [μm]
 $X=V_{pp}/65[\mu\text{m}]$
故に50[V]印加時における駆動量は **15[nm]**
1[V]あたり0.3[nm]

32



Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

LDWの光学顕微鏡画像

(a)ベースプレート側

(b)基板側

37

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

EDXによる定量分析結果

	溶液	ベースプレート	3.38 μ m	3.50 μ m
Zr	18.5	16.77	18.19	15.25
Pb	53.2	57.03	51.53	59.41
Ti	27.7	26.21	30.29	25.35
La	0.5	0	0	0

表1EDXによる定量分析

38

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

XRDによる定性分析

(110)

(100)

(111)

(200)

(210)

(211)

(220)

(221)

(310)

(311)

(222)

LDW

PLZT シミュレーション

39

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

まとめ

- ・FT-IRの測定から2860cm-1と2960cm-1付近に吸収が見られた。
- ・自由電子レーザの3.38 μ mと3.50 μ mの波長を用いてレーザ転写したものをEDXと光学顕微鏡にて評価したところ転写されていることが確認された。

今後の展望

- ・結晶化させ光歪効果の測定

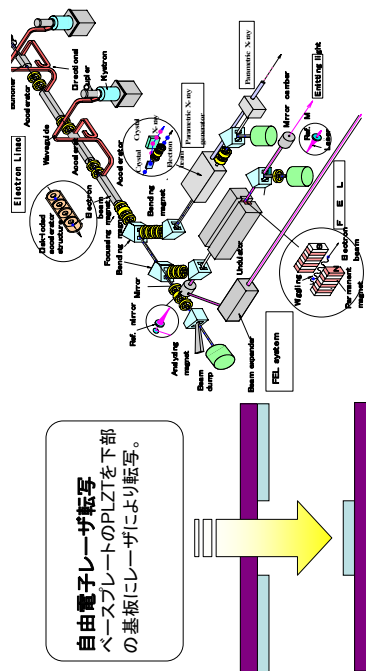
40

【ACKNOWLEDGEMENT】

実験に協力していただいた学生の田中慶彦君、清水洋平君、胡桃聡君、佐久間俊介君、山岸徹君、安土修平君に感謝します。

本研究は學術フロンティア推進事業「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」とハイテクリサーチセンター「アトムテクノロジ」を指向したナノ構造融合化材料の創製 による研究成果である。

レーザ転写(LDW)とは



Phosphorus Doped Diamond Like Carbon Films Deposited by Plasma-assisted Free Electron and ArF Laser Ablation Method

Kaoru SUZUKI*

Department of Electrical Engineering,

College of Science and Technology, Nihon University

1-8-14, Kanda-Surugadai, Chiyoda-ku, Tokyo, Japan 101-8308

Tel. & Fax.: 81-3-3259-0770, E-mail: kaoru@ele.cst.nihon-u.ac.jp

【 Background 】

Diamond like carbon (DLC) films will be widely used in field of industrial coatings, tribological materials and corrosion protection.

However, DLC have not been well understood the semiconductor property. Donor or acceptor doped DLC films exhibits semiconductor nature, which promotes its application in the field of semiconductor technology, such as fabrication of photovoltaic solar cells.

At the process of chemical vapor deposition, phosphine (PH₃) and diborane (B₂H₆) were used for donor and acceptor which has strongly toxicity.

Laser ablation , the technique by which material is ablated from a target by interaction with a high fluence, pulsed laser beam and deposited onto a substrate, is versatile and advance films deposition technique.

In the present system, many type of laser were used for ablation, such as Nd:YAG laser, excimer laser and Ti:sapphire laser.

【 Object 】

I have proposed that improved n-type DLC films were successfully obtained by the laser ablation method, which were ablated the phosphorus (V) oxide (P2O5) powder mixing pressed graphite carbon target or trimethyl-phosphate (P(OCH3)3, Melting point, Tm=227 K) agent containing frozen benzene (C6H6, Melting point, Tm=278.5 K) target, which were relatively safely materials.

ArF excimer laser was used for laser ablation method, since almost materials had absorption of ultraviolet range.

In addition, the wide tunability wavelength Laboratory for Electron Beam Research and Application institute of quantum science Nihon university Free Electron Laser (LEBRA-FEL) commissioned in 2003, presents a unique opportunity in a combination of parameters unavailable to other laser systems. Specifically, it can study that FEL wavelength keep in tune with infrared absorption range of benzene.

【 Experimental apparatus 】

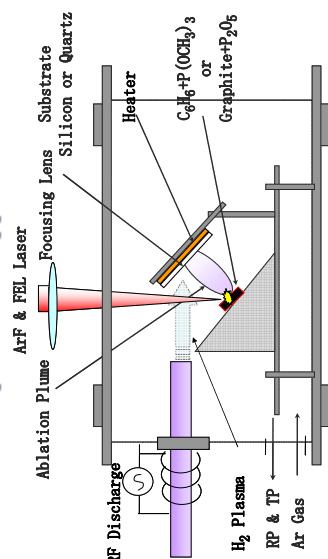


Figure1. Optical system for formation of micro lens by laser polymerization method.

【 Experimental setup 】

A focused ArF excimer laser (LAMBDA PHYSIK COMPex 205; wavelength = 193 nm, pulse duration = 20 ns, repetition rate = 30 Hz and fluence 5 J/cm²) or LEBRA-FEL beam was irradiated on to a target at an incident angle of 45 degree to the target.

The one of target was prepared by pressing method which were mixed the pure graphite carbon (purity = 99.999 %) powder and phosphorus (V) oxide (P2O5; purity = 99.9 %) powder. Another target was frozen benzene (C6H6, Melting point, Tm=278.5 K) by liquid nitrogen which were containing trimethyl-phosphate (P(OCH3)3, Melting point, Tm=227 K) and volume ratio of C6H6 : P(OCH3)3 is 20 : 1.

The silicon (Si) substrate was cleaned with acetone, methanol and hydrofluoric acid (1:10) prior to loading into the chamber.

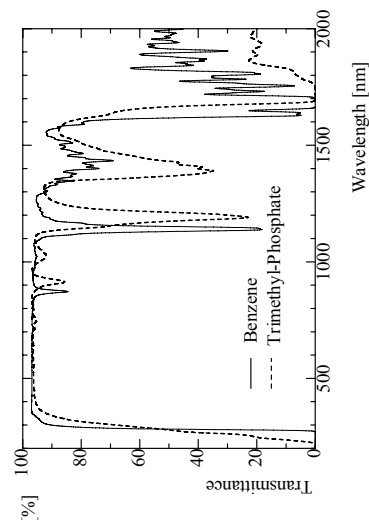
DLC films were deposited on p-type Si substrate (100), 20×20 mm, thickness = 0.58 mm, 10 Ω · cm) for solar cell or quartz substrate for optical property measurement at a substrate temperature of 300 – 575 K in 133 Pa argon gas at laser ablation.

An RF (frequency = 13.56 MHz) plasma [11] was generated around the substrate and target by inductively coupled.

The surface morphology and physical properties were examined a field emission scanning electron microscope (FE-SEM; HITACHI, S-4500), secondary ion mass spectrometry (SIMS; Cameca, IMS-6F) and Raman spectroscopy (RENTSHOW; RamanScope System-1000).

The optical properties were measured by a UV-visible spectrometer (SHIMADZU, UV-3150). After n-type DLC/ p-type Si structure photovoltaic cell was fabricated, electrodes for ohmic contacts were formed by sputter of Au (thickness = 50 nm) for the front surface (n-type DLC side) and Au (thickness = 200 nm) for the back surface (p-type Si side).

Fig.2 Optical transmittance characteristics with benzene and trimethyle-phosph



Nihon University College of Science & Technology

【Characteristics】

Fig.2 shows the optical transmittance characteristics with benzene and trimethyl-phosphate. Both reagent has the absorption band in the ultraviolet range of less 300 nm. The dissociation of double bond carbon (Photon energy : 6.3 eV ; wave length : 197 nm) and of single bond carbon (Photon energy : 3.5 eV ; wave length : 354 nm) are originating. The infrared spectrum for benzene has only four prominent bands because it is a very symmetric molecule.

Every carbon has a single bond to a hydrogen.

Each carbon is bonded to two other carbons and the carbon-carbon bonds are alike for all six carbons which is planar.

The aromatic CH stretch appears at 3226-3333 nm and second harmonics are 1623-1667 nm .

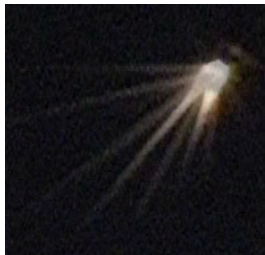
There are aromatic CC stretch bands at about 3333 nm and second harmonics is 1667 nm. Two bands are caused by bending motions involving carbon-hydrogen bonds. The bands for CH bends appear at approximately 10000 nm for the in-plane bends and at about 14815 nm for the out-of-plane bend.

The bands for P-OH bends at about 3800-3820 nm and second harmonics is 1900-1910 nm. In order to ablate frozen benzene and spread trimethyl-phosphate target, free electron laser (wave length : 870-6000 nm) or ArF excimer laser (wave length : 193 nm) were used the light source of ablation .

Discharge Plasma & Laser Laboratory

Nihon University College of Science & Technology

【Fig.3 Pattern of light emission from the plume along the direction of laser incidence】

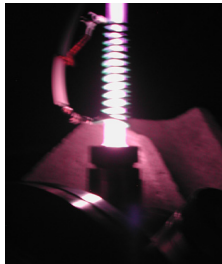
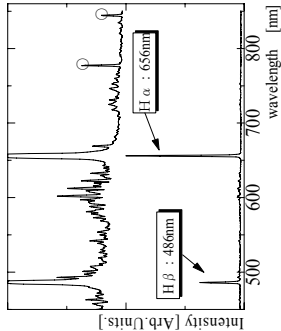
(a) target : C6H6, laser : ArF
 $\lambda = 193\text{nm}$

(b) target : graphite, laser : FEL
 $\lambda = 2.4\ \mu\text{m}$

Discharge Plasma & Laser Laboratory

Nihon University College of Science & Technology

【Fig.4 Photograph of inductively coupled plasma and spectrum of hydrogen plasma】

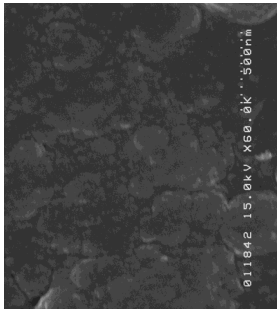
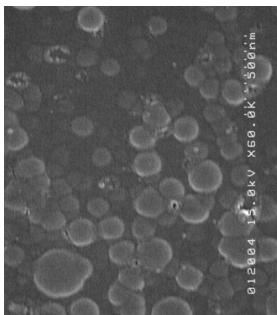
(a) Photograph of inductively coupled plasma

(b) Spectrum of hydrogen plasma

Discharge Plasma & Laser Laboratory

Nihon University College of Science & Technology

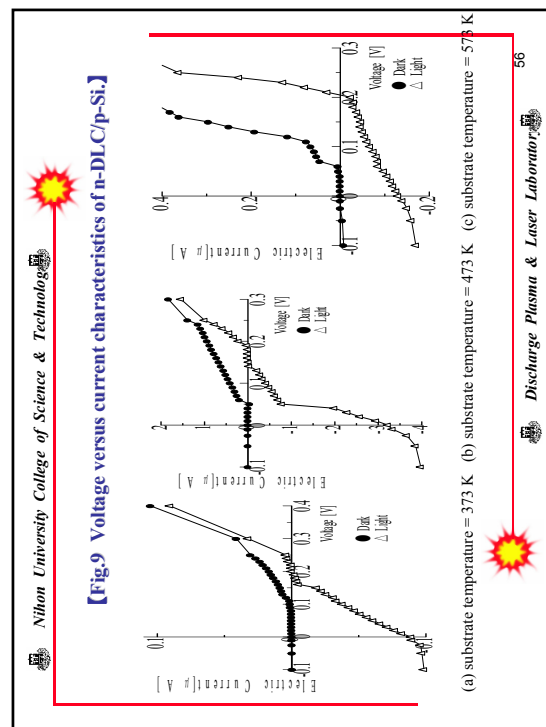
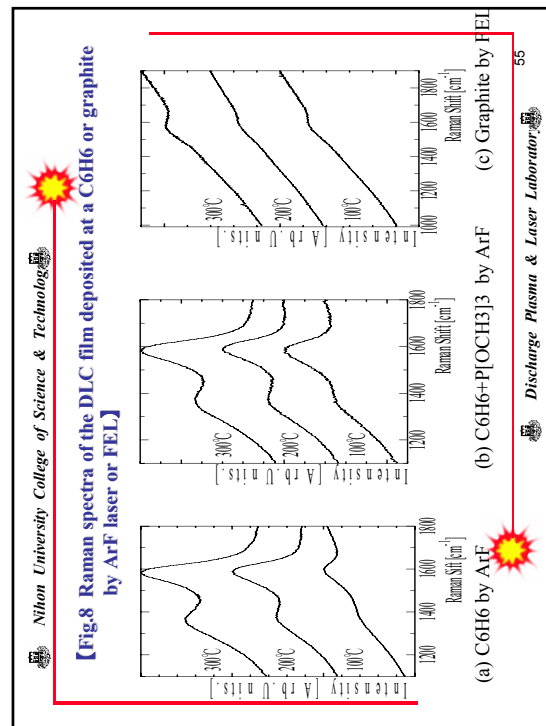
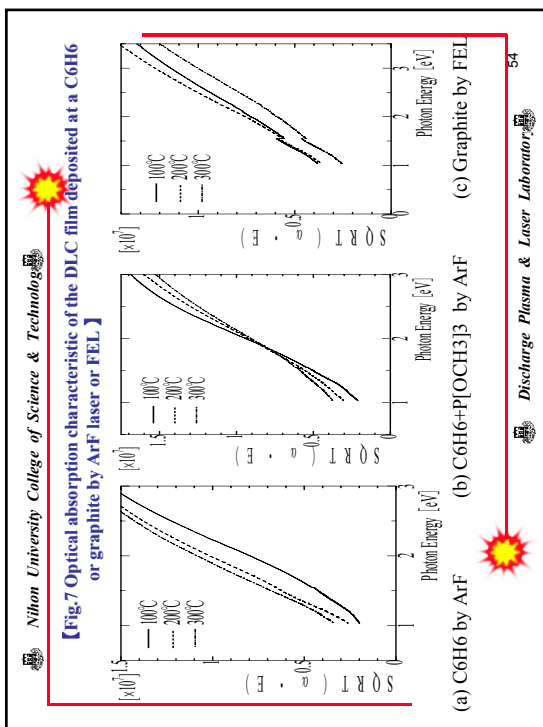
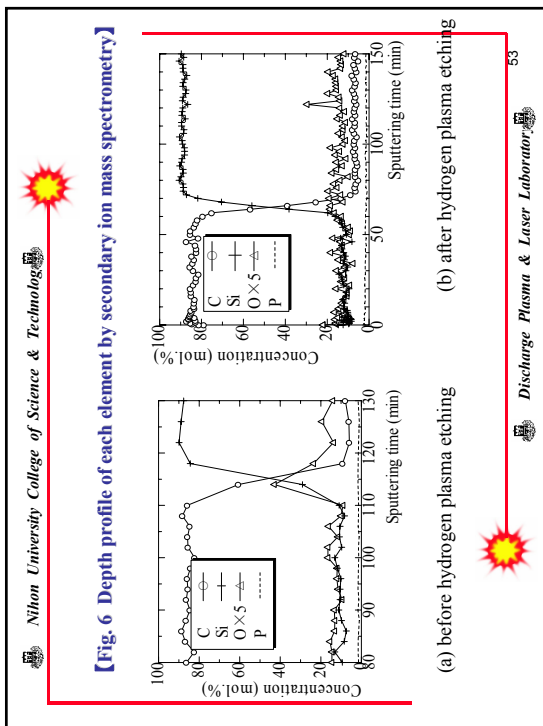
【Fig.5 SEM micrographs of the films deposited by C6H6/ArF and graphite/ArF】

(a) target : C6H6 / laser : ArF

(b) target : graphite / laser : ArF

Discharge Plasma & Laser Laboratory



Nihon University College of Science & Technology

【CONCLUSION】

Phosphorus doped diamond like carbon films is deposited by plasma assisted free electron and ArF excimer laser ablation method.

The optical gap of undoped DLC films by using C6H6 target and ArF laser source is approximately 0.67 – 1.07 eV.

The optical gap of undoped DLC films by using graphite target and FEL source is approximately 0.27 – 0.55 eV.

The n-type DLC was deposited by frozen C6H6+P[OCH3]3 target and ArF laser ablation source on p-type silicon substrate.

The open-circuit voltage ($V_{oc} = 0.18$ V) and short-circuit current ($I_{sc} = 3.2$ μ A) at the substrate temperature = 473 K are larger than those for cell.

Although the energy conversion efficiency is still low and FEL power is very week, it is shown that there is a possibility of improvement.

Discharge Plasma & Laser Laboratory

57

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

研究背景

- 酸化物のワイドバンドギャップ半導体は、ほとんどが **n** 型であり **p** 型の不足により透明材料の応用デバイスに用いることが制約。

LaOCuSの特徴

- ワイドギャップ(3.2eV)の透明p型酸化物半導体。
- 電気伝導性に適した層構造。
- 380nmにエキシトン発光、600nm付近に欠陥や不純物によるブロードの発光の確認。

応用

- 透明半導体デバイス
- 発光素子
- 透明電極
- 熱電素子
- 光触媒素子

薄膜作成技術の確立。

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

目的・報告内容

組成比により欠陥や不純物発光を制御

発光波長の選択性を可能にする

報告内容

- YAGレーザーとArFエキシマレーザーを光源とし雰囲気、基板温度を変化させた場合及びアブレーションと同時にプラズマ支援を行って作製した薄膜の物性評価
- 室温及び低温における発光波長特性

評価方法

- エネルギー分散型X線分析(EDX)による定量分析。
- 走査電子顕微鏡(SE-SEM)による表面観察。
- X線回折分析(XRD)による定性分析。
- 吸光度計を用いたバンドギャップ算出
- 室温($T=27^{\circ}\text{C}$)および低温($T=-296^{\circ}\text{C}$)における Photo luminescence(PL)測定。

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

成膜装置図及び粒子群の飛散

LaOCuS Bulk

原料La₂O₃、La₂S₃、Cu₂Sを化学量論比に従い固相反応法で作成。

光源:ArFレーザー
MgO Substrate
基板間距離:20mm

高速度カメラによる粒子群の飛散 (CCD:PROXTRONIC) Pulse Width 5ns

ブルーームと呼ばれる柱状のプラズマ発光を確認

粒子群の飛散動画

粒子群の発生 粒子群の基板到達 粒子群の消滅

753ns 149μs 2243ns 4515ns

粒子群の発生から消滅まで **3.76μs**

13.4km/sの速度で噴出

成膜装置外略図

114

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

成膜条件(YAGレーザ) 成膜条件(ArF Excimer レーザ)

試料名	#1 YAG (Ar: 300°C)	#2 YAG (O ₂ plasma: 300°C)	試料名	#3 ArF (Ar: 25°C)	#4 ArF (O ₂ : 25°C)	#5 ArF (O ₂ plasma: 25°C)
成膜基板温度 [°C]	300		成膜基板温度 [°C]		25	
レーザパルス [μm]	300		レーザパルス [μm]	20		
繰り返し周波数 [Hz]	500		繰り返し周波数 [Hz]	10		
パルス幅 [nsec]	65		パルス幅 [nsec]	20		
ターゲット基板間距離 [mm]	20		ターゲット基板間距離 [mm]	20		
チャンバ内部雰囲気	Ar	O ₂	チャンバ内部雰囲気	Ar	O ₂	O ₂
チャンバ内部圧 [Torr]	0.01	0.1	チャンバ内部圧 [Torr]	0.01	0.01	0.1
放電電力 [W]		200	放電電力 [W]			200
成膜時間 [min]	50	30	成膜時間 [min]	50	50	30
成膜基板	MgO		成膜基板	MgO		

成膜条件
作製した薄膜は石英管に真空封入し、900°Cで12時間熱処理を行う。

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

EDXによる定量分析

	atomic%	La	O	Cu	S	Mg
#1 YAG (Ar: 300°C)		31.0	23.4	20.8	23.2	0.2
#2 YAG (O ₂ plasma: 300°C)		27.6	24.9	27.0	20.2	0.4
#3 ArF (Ar: 25°C)		30.5	20.9	24.0	23.2	1.2
#4 ArF (O ₂ : 25°C)		29.1	22.2	24.3	24.4	0
#5 ArF (O ₂ plasma: 25°C)		15.9	60.7	12.8	10.5	0

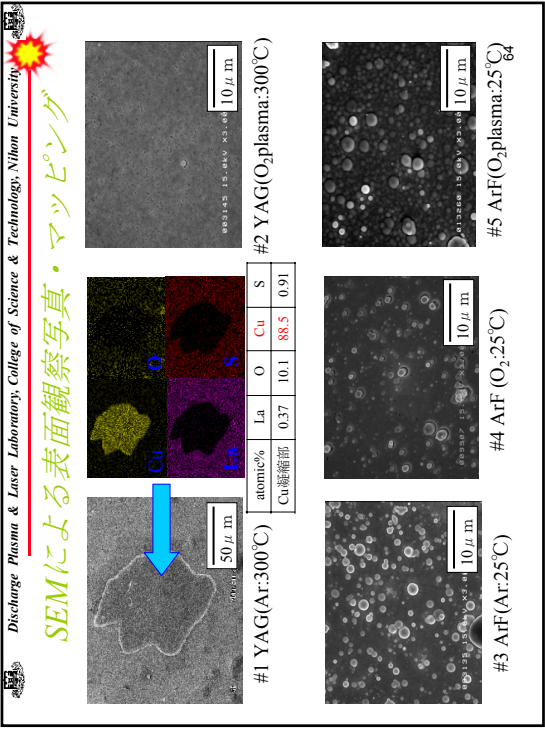
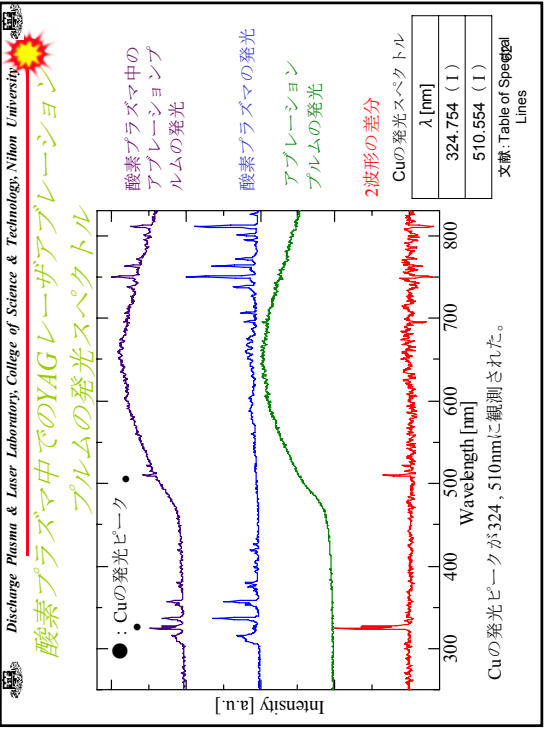
S: 融点112.8°C, 沸点444.7°C Cu: 融点1083.4, 沸点: 2570°C
La: 融点921.0°C, 沸点3460°C

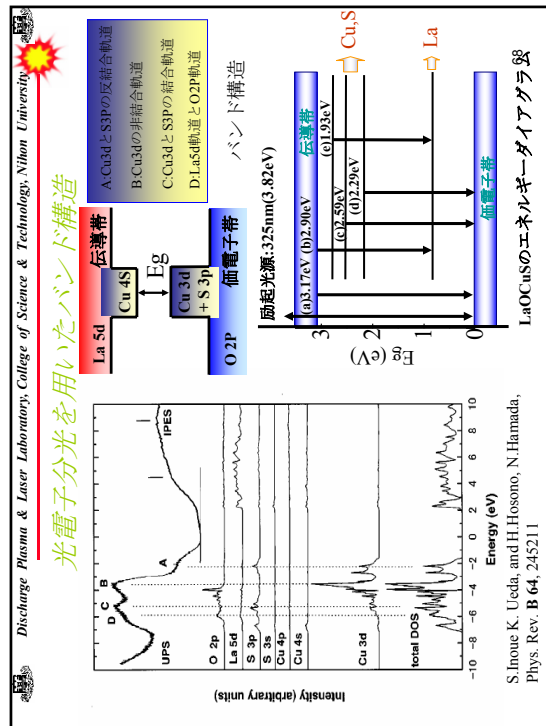
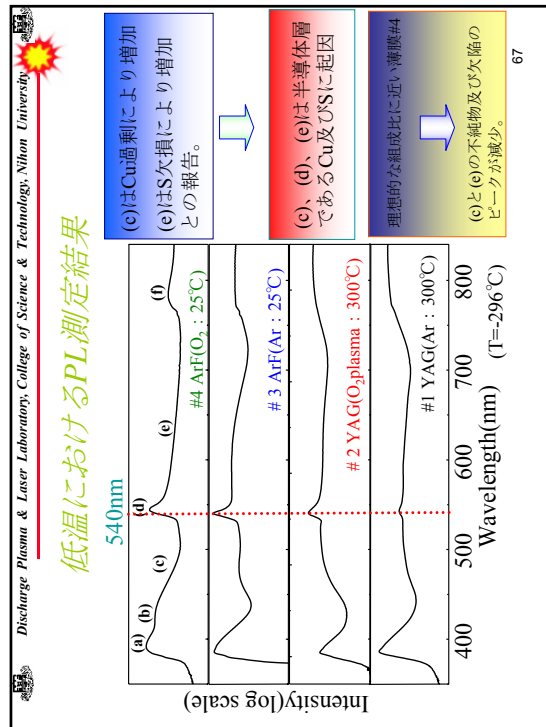
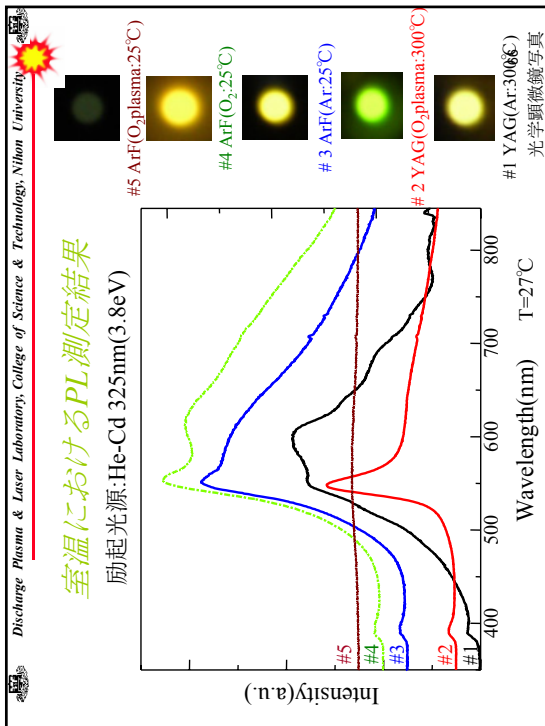
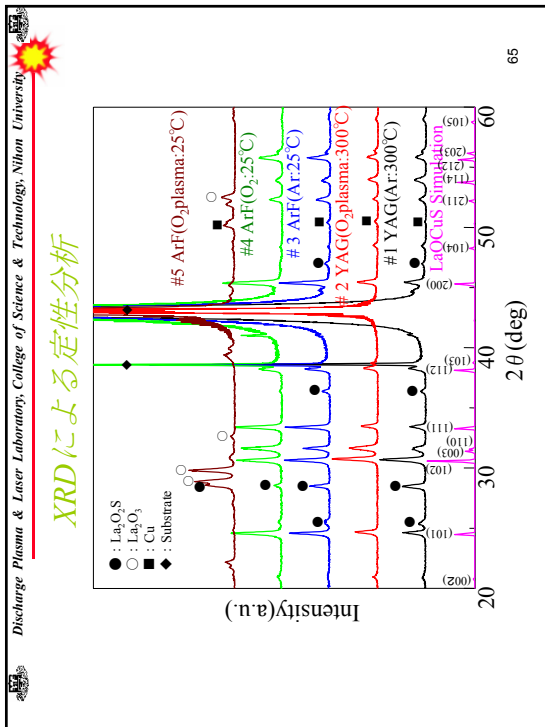
理想的な組成比はターゲットバレルと同じ化学量論比でLa, O, Cu, Sの組成比が**25%**

レーザ光源により粒子結晶(アブレーションプラズマ)の発生仕方

YAGレーザ 波長が紫外光であるため加熱によって蒸発

ArFレーザ 波長が紫外光であり、フォトンエネルギー(Eg=6.4eV)がLaOCuSのバンドギャップ(Eg=3.2eV)よりも高いため直接結合を断ち切る。





Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

まとめ

XRDの測定結果よりLaOCuSのピークが確認され、(002)面、(003)面とc軸方向に配向した結晶性の良い薄膜を作製。

PL測定・吸光度計による吸収・透過測定の結果より3.17eVのワイドバンドギャップ半導体であることが確認

アブレーションの光源の波長、雰囲気圧、プラズマ支援、基板温度により組成比やPL発光の特性を制御でき、緑、橙、白色の発光を確認

発光波長の選択性の実現が可能

69

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

ダイヤモンド状炭素

(Diamond-like Carbon : DLC)

特徴

応用面

・切削道具

・耐熱材料

・耐摩耗部品保護膜

・高硬度

・低摩擦係数

・耐磨耗性

・光学的高透過性

・アモルファス半導体特性

DLCはそれ自身でp型半導体の挙動を示し、エネルギーギャップEgも1.4~2.2 eVの範囲で変化させることができる。

透明太陽電池への応用が考えられる。

70

g-Carbon Film

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

成膜方法

一般的な成膜方法

プラズマCVD法

・p型作成にはドーブガスに B_2H_6

・n型作成には PH_3

これらのガスは毒性があるため

工業面において非常に厳しい制約がある。

DLC太陽電池を作製する方法として毒性のないドーブ方法を検討し、レーザーアブレーション法を用いて作製する。さらに酸素除去するためRF放電で水素プラズマエッチングを行った。

71

g-Carbon Film

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

ドーブ方法

1. 炭素粉末にボロン粉末を任意の割合で混合し、プレス成型したものをターゲットとして用い成膜を行う。

2. 1. で作成した不純物混合炭素を装置内に設置した後にレーザーを照射

3. レーザ照射にて発生した粒子群を対向させたSi基板上に成膜することで、ボロンドーブP型DLC、リンドーブN型DLC薄膜を作成する。

研究報告

水素プラズマによる、基板表面の酸化膜除去を行った後

検討したドーブ方法により、YAG:1064nm及びArF:193nmエキシマレーザーを用い

n-DLC(p-Si, p-DLC/n-Si太陽電池を作成し加工光源の差異による比較・検討を行う。

研究報告

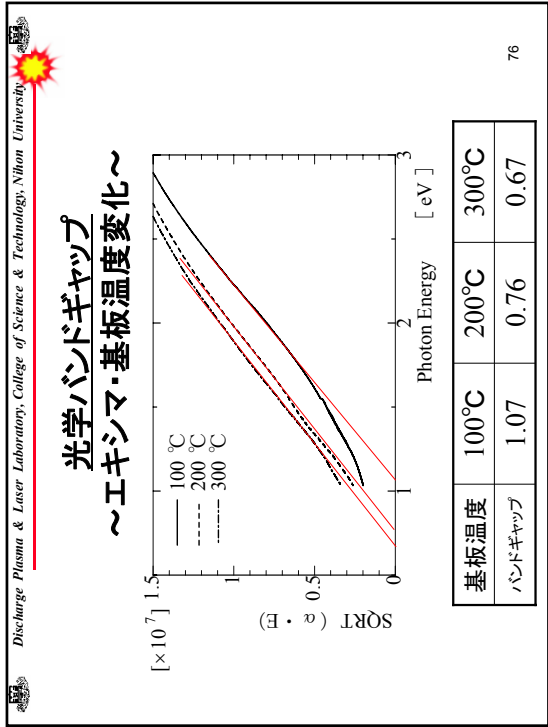
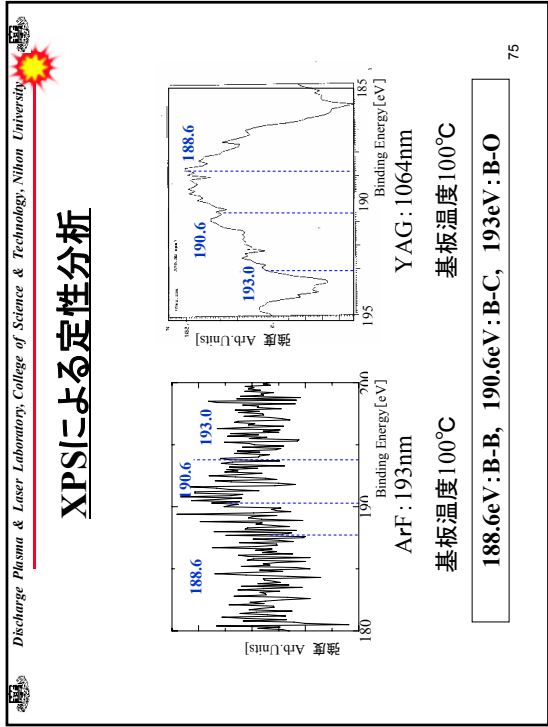
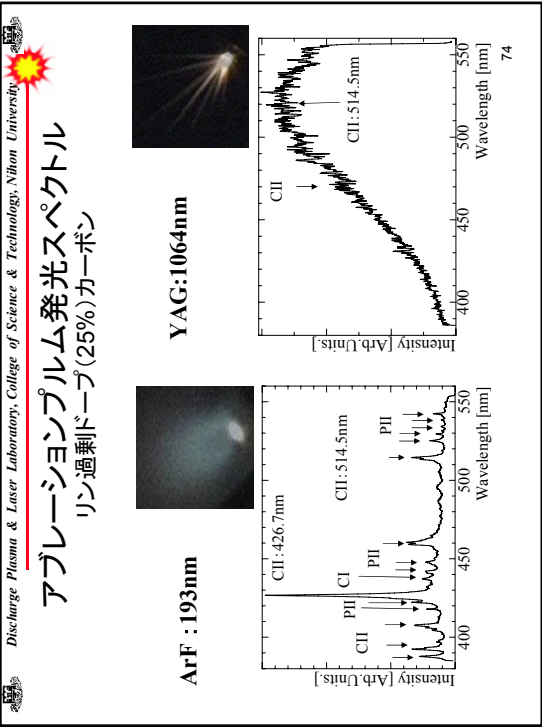
117

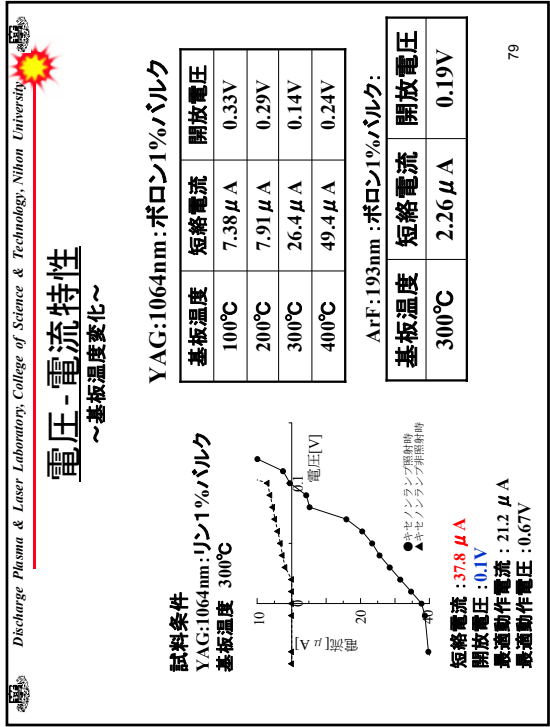
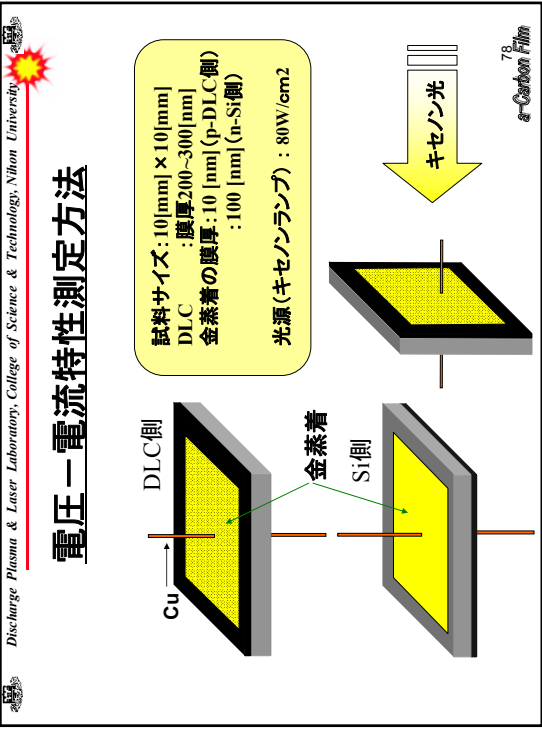
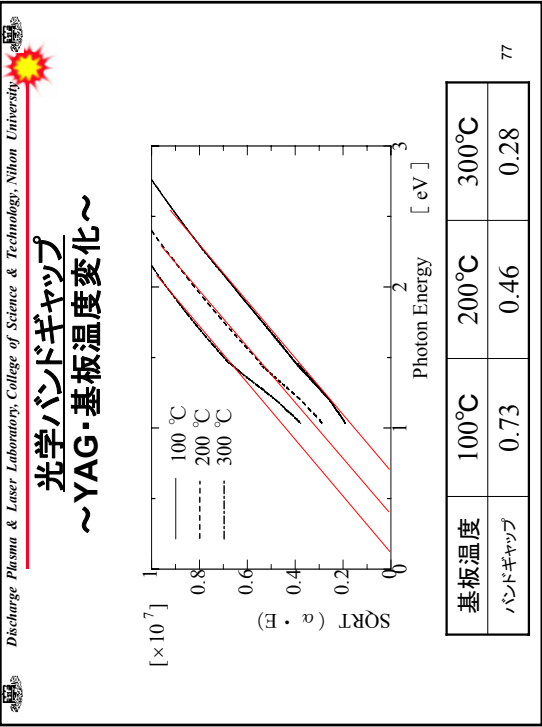
Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

成膜条件

使用レーザー	YAG	ArF	成膜基板	N型シリコン
波長	1064 nm	193nm	基板温度	100~400℃
レーザーエネルギー	2.75 J/Pulse	280 mJ/Pulse	管内気圧	0.15 Torr : RF放電時
パルス幅	0.4 ms	20 nm	管内雰囲気	水素:RF放電時
繰り返し周波数	1 Hz	10 Hz	流量	50 sccm
成膜時間	100 sec	50 mit	RF電源周波数	13.56MH
ターゲット	ボロン1%混合カーボン リン1%混合カーボン	ボロン1%混合カーボン リン1%混合カーボン	放電力	100 W
ターゲット基板間距離	30 mm	20mm		

73
g-Carbon Film





Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

ホール効果測定

YAG:1064nm

基板温度	Mobility (cm ² /Vs)	Density (cm ⁻³)	Type of Carriers
100°C	1.61	6.68 × 10 ¹⁹	hole
200°C	9.11	6.32 × 10 ¹⁹	hole
300°C	26.9	9.86 × 10 ¹⁹	hole
400°C	52.7	6.42 × 10 ¹⁸	hole

ArF:193nm

基板温度	Mobility (cm ² /Vs)	Density (cm ⁻³)	Type of Carriers
300°C	2581	6.68 × 10 ¹¹	hole

80

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

まとめ

1. 基板温度を上げること、DLC膜はグラッシー化し、バンドギャップが下がる事で抵抗率が、それに起因する出力の向上が見られた。
2. 同じ基板温度の元では、YAGとArFで成膜した場合、DLCは、ArFで成膜したの方がバンドギャップが大きくなり、YAGによるものと比較すると、抵抗値が高く出力が下がる事が確認された。
YAG: 基板温度 400℃
短絡電流: 49.4 μ A 開放電圧: 0.24V

成膜時の加工レーザ波長可変により
バンドギャップの制御・吸収波長の選択の可能性

81
Carbon Film

Discharge Plasma & Laser Laboratory
82

光の反射率測定

◎反射率の波長特性から短波長域の透過率の差異(例えば220nmと280nm付近における反射率の低下(吸収による)の比較)からどぶ横とシヤコ横の判別が可能。

◎反射率の異方性からの判別法は差が少なく困難である。

◎真珠が巻くと測定は不可能となるが、穴あき真珠では有効である。

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

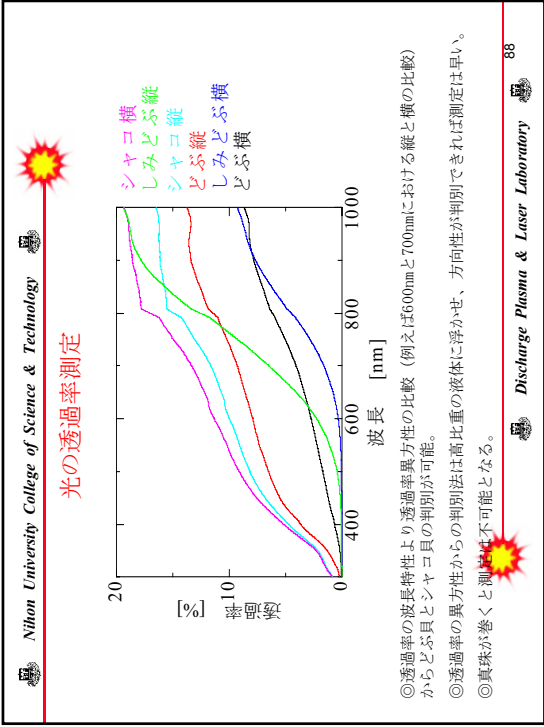
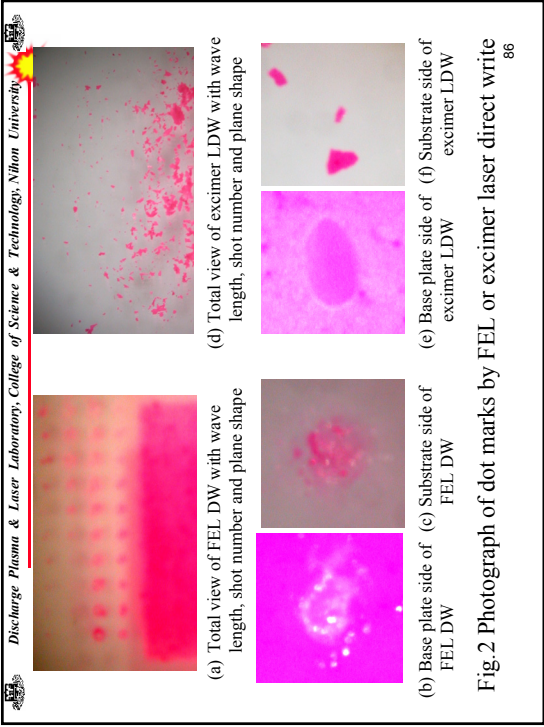
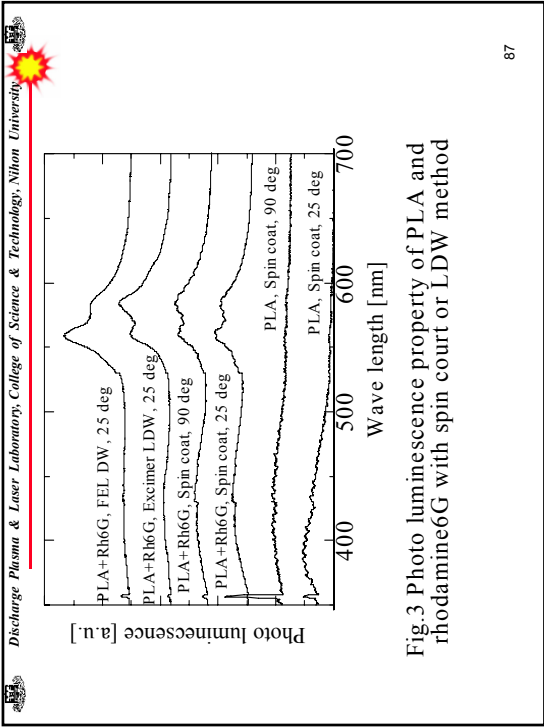
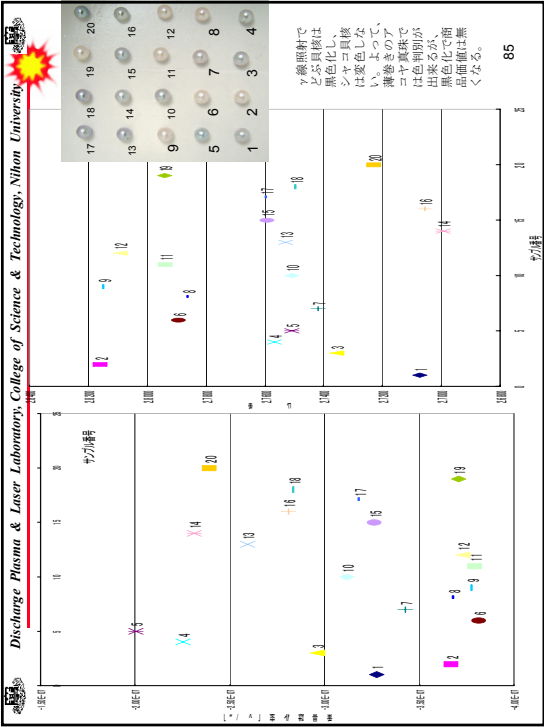
平均重量比

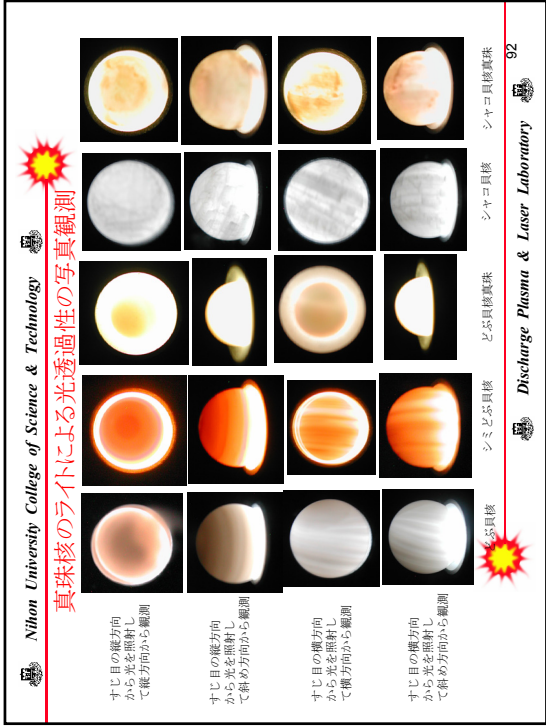
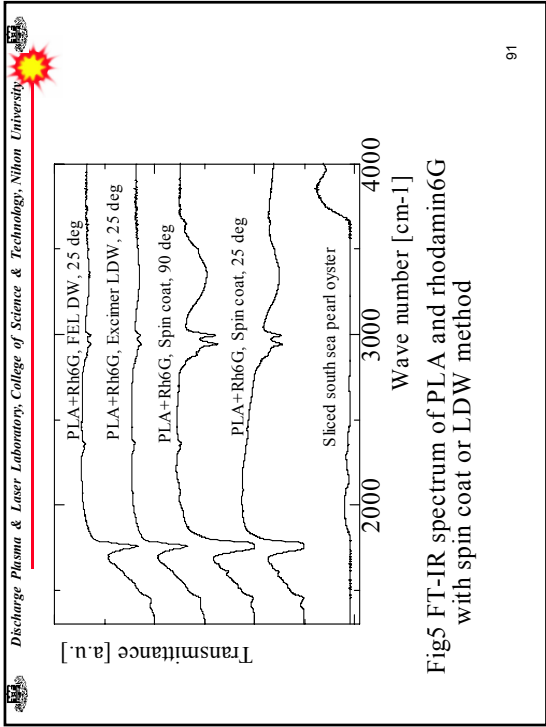
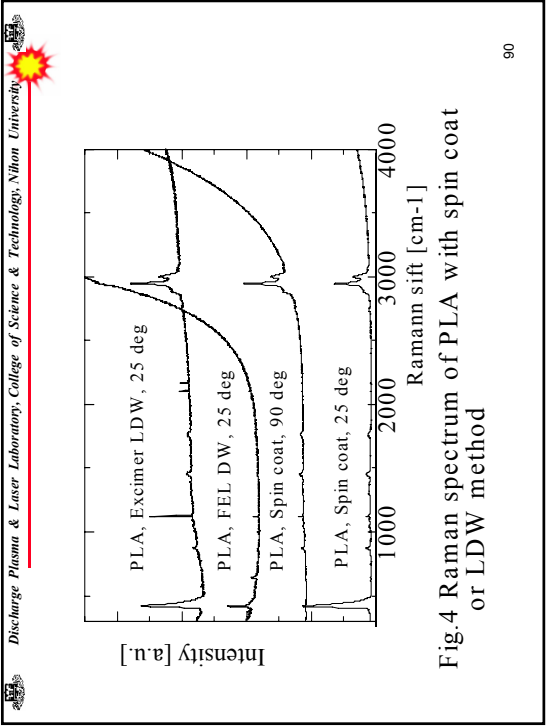
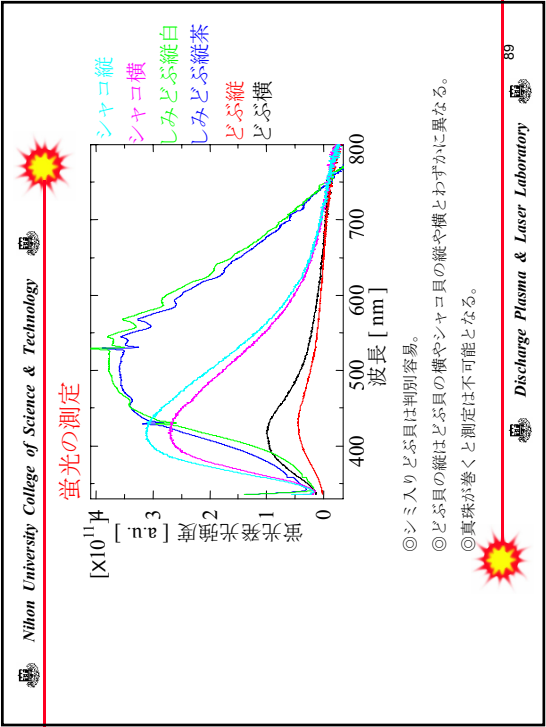
図5 平均重量比

Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University

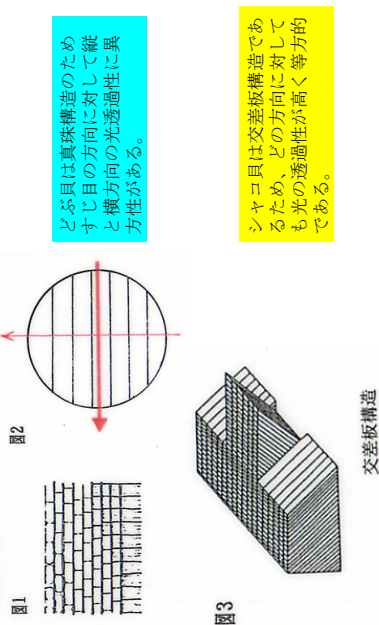
比重分布

図7 比重分布

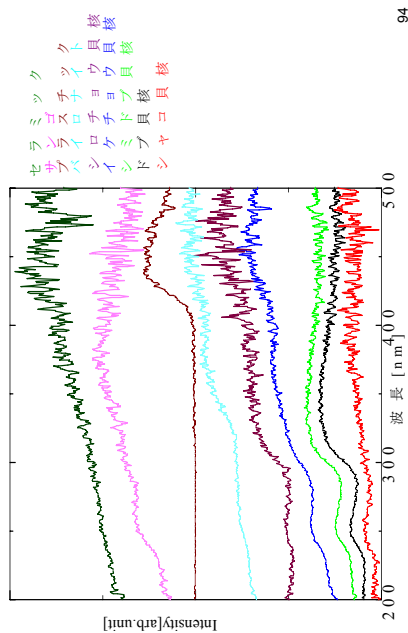




光透過性の異方性



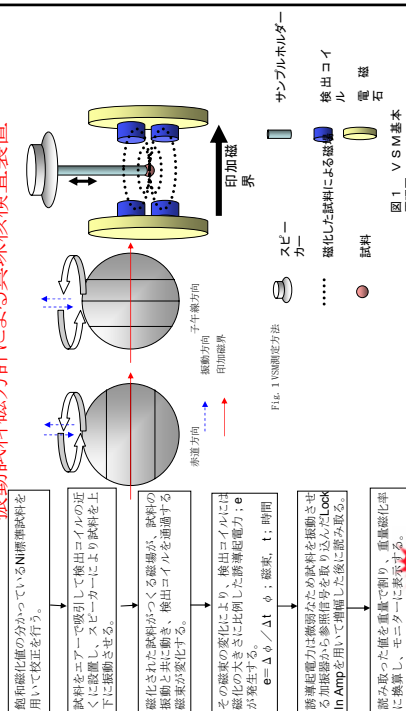
光の反射率測定



振動試験磁力計



真珠用VSMの基本原理：
振動試料磁力計による真珠検査装置、



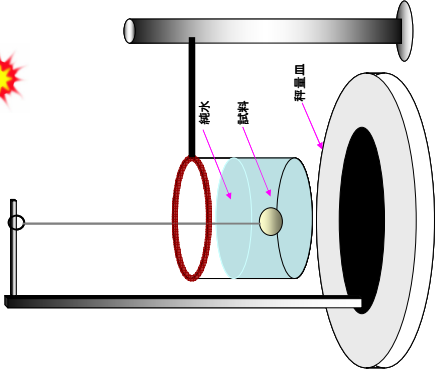

Nihon University College of Science & Technology



アルキメデスの原理を用いた 比重測定

・アルキメデスの原理
液体中の物体は、それが排除している液体の重さに等しい浮力を受ける。
つまり、液体中の物体は、それが排除している液体の量と同等の体積を有する。
このことを利用し図2.80のような装置で液体中の核の重さを測り、空腔の核の重さを、求めた値で割って比重を計算する。

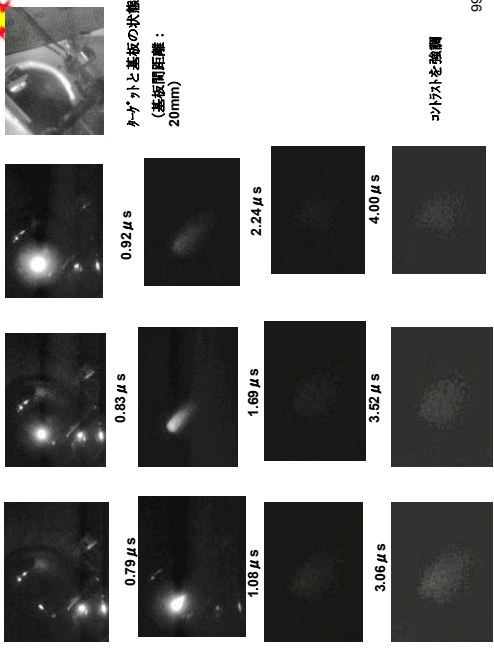
比重 = $\frac{\text{重さ}}{\text{測定値}}$




Discharge Plasma & Laser Laboratory
97


Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University





0.79 μ s
0.83 μ s
0.92 μ s
1.08 μ s

1.69 μ s
3.52 μ s
4.00 μ s
4.00 μ s

2.24 μ s
3.52 μ s
4.00 μ s
4.00 μ s

3.06 μ s
3.52 μ s
4.00 μ s
4.00 μ s

コアと基板の状態
(基板間距離: 20mm)

コアの拡大図


99


Discharge Plasma & Laser Laboratory, College of Science & Technology, Nihon University






Discharge Plasma & Laser Laboratory
98

一般講演

学術フロンティア(5年間)の成果と継続(3年間)における生体高分子構造研究グループの展望

(1) 5年間(過去)の成果

(2) 3年間(継続)の展望

矢倉文夫(グループ世話人:日大・医)
桑田隆生(日大・大学院総合科学)
高木尚(東北大学・院理)・鈴木知彦(高知大学・理)

1

生体高分子のX線結晶解析実験室と
構造解析実験の流れ

2005~

2000~

蛋白質の精製

蛋白質の性状

大量精製

結晶化

X線回折データ収集

構造解析

決定

学術フロンティア継続

学術フロンティア

一次構造の決定

2

5年間の成果(2000-2004)

・ 1 生体高分子構造解析実験室の立ち上げ

・ 2 回折実験と構造構築の技術確認
(標準タンパク質:リゾチーム)

・ 3 ゼウガメ Hb Dの構造解析と公表
(新規タンパク質:ヘモグロビン)

・ 4 アカムシHb VとHb VIIの構造解析と発表
(共同研究:東北大学 高木尚教授)

・ 5 アホロートルのHbの構造解析と発表
(共同研究:静岡大学 竹内浩昭教授)
(共同研究:慶応大学 長井孝紀教授)

3

成果報告

<論文発表>

・ Zool. Sci., 18: 515-526 (2001)

・ Zool. Sci., 19: 197-206 (2002)

・ Protein and Peptide Letters, 10: 422-425 (2003)

・ Micron, 35: 123-125 (2004)

・ Comp. Biochem. Physiol., 137B: 443-454 (2004)

・ 投稿準備中(ゾウガメHbD)

・ 投稿準備中(アカムシHb VとHb VII)

<講演・ポスター発表>

・ 日本結晶学会平成14年度年会講演要旨集: 21頁 (2002)

・ 日本結晶学会平成15年度年会講演要旨集: 122頁 (2003)

・ Zool. Sci., 21: 1327 (2004)

・ Zool. Sci., 21: 1327 (2004)

・ 日本動物学会第75回大会(アカムシ): 218頁(2004)

・ 日本動物学会第75回大会(アホロートル): 218頁(2004)

4

125

成果つづき(2000-2004)

- 6 継続中の構造解析(共同研究と個人研究)

Cryptogena Hb 鈴木知彦教授(高知大学)
Haemadipsa Hb 宋倉文夫(個人研究)
Amystoma Hb 宋倉文夫(個人研究)
Tetraphymena protein 沼田治教授(筑波大学)
Tachypleus Hc 桑田隆生・杉田博昭教授(筑波大学)

文選

-Comp. Biochem. Physiol., 142B: 258-268 (2005)

ポスター

・日本動物学会第76回大会: 127頁(2005)

5

学術フロンティア継続の展望(2005-2007)

- ・継続中・新規の共同研究と個人研究

Cryptogena Hb 鈴木知彦教授(高知大学)
Haemadipsa Hb 栄倉文夫(個人研究)
Ambystoma Hb 栄倉文夫(個人研究)
Tetrahymena protein 沼田治教授(筑波大学)
Tachypleus Hc 桑田隆生・杉田博昭教授(筑波大学)
Halocynthia galectin 高木尚教授(東北大学)
Halocynthia CRP 高木尚教授(東北大学)
Tachypleus agglutinin 栄倉文夫(個人研究)
Pelomedusidae Hb 栄倉文夫(個人研究)

精製から構造研究へ

6

当該施設で行われた

X線結晶構造解析の1例:

ユスリカ・ヘモグロビン(Hb)の構造解析(共同研究)

桑田隆生¹⁾、佐藤秀²⁾、長谷川智一³⁾、佐藤勇¹⁾、
石川統一⁴⁾、高木尚²⁾、安倉文夫^{5、*)}

1) 日大・大学院総合科学、2) 東北大・院理、3) リガクX線研究所、
4) 日大・医・薬理、5) 日大・医・化学、* 研究の統括

4) 日大・医・薬理、5) 日大・医・化学、* 研究の統括

CC

成果つづき(2000-2004)

- 6 継続中の構造解析(共同研究と個人研究)

Cryptogena Hb 鈴木知彦教授(高知大学)
Haemadipsa Hb 宋倉文夫(個人研究)
Amystoma Hb 宋倉文夫(個人研究)
Tetrathymena protein 沼田治教授(筑波大学)
Tachypleus Hc 桑田隆生・杉田博昭教授(筑波大学)

文選

-Comp. Biochem. Physiol., 142B: 258-268 (2005)

ポスター

・日本動物学会第76回大会: 127頁(2005)

5

2006年(平成18年)3月16日 木曜日 14版

黄緑色に発光するゲンジボタル＝栗林豊氏提供



ホタルの光なぜ黄緑?

京大助教授ら解明 酵素の立体構造 カギ

七色の光線は、光のまん
 だであるが、實にこの光線
 と云つて、光線とはなかに
 下等なる。
 塵に光るとは、亦光らず
 ぬとの光らずと云ふに
 なるは塵の光らずと云
 一の純の光らずと云ふに
 塵と光つては、光の、色
 実なる性質は不明だ。
 ① 区中の性質の光線を開
 けた鏡で、取り込んだ光線
 を、みな光線と見てゐる機
 體だといふ。光線と云ふ
 體を一つに含めて光線と
 云ふ、亦光らず。塵と、光
 線とは光らずと云ふ光線
 たる性質ではないといふ
 故に色の光線を出すといふ。
 中世物理学は「新に光線
 と云ふの性質はなくなる可
 能であらう」と云つた。

2

ユスリカとは



日本ユスリカ研究会ホームページより
<http://chironomidae.shinshu-u.ac.jp>

9

ユスリカ・ヘモグロビンの精製

Fukuda, M., Takagi, T., and Shikama, K.
 Biochim. Biophys. Acta, 1157:185-191(1993)

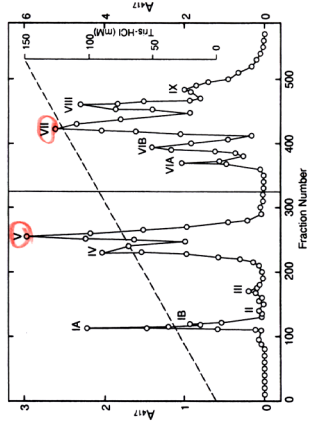
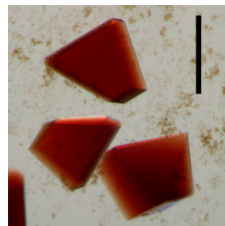
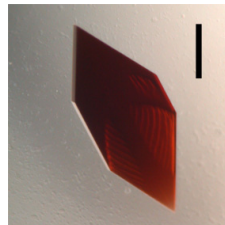


Fig. 1. DEAE-cellulose chromatography of *T. akamusi* hemoglobin. Hemoglobin solution (250 ml, 500 mg) was applied to a DEAE-cellulose column (4×16 cm) equilibrated with 5 mM Tris-HCl buffer (pH 8.4). The elution was carried out with a linear gradient of Tris-HCl buffer from 5 to 150 mM at pH 7.9. The heme protein level was monitored by the absorbance at 417 nm (○), and the expanded scale was used until fraction number 325. Fraction size, 10 ml.

10

Hb VとHb VIIの結晶作製

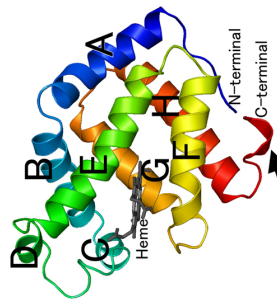
・ 結晶



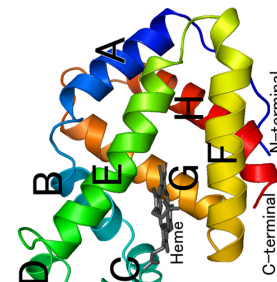
左: Hb V結晶
 結晶化サンプル: 24mg/ml
 結晶化剤: 25% PEG3350, 100mM 硫酸Na (pH4.6)
 右: Hb VIIの結晶
 結晶化サンプル: 15mg/ml
 結晶化剤: 25% PEG3350, 100mM MgCl₂, 100mM Tris-HCl (pH 8.5)
 * Scale bar = 0.2mm

11

Hb VとHb VIIの立体構造



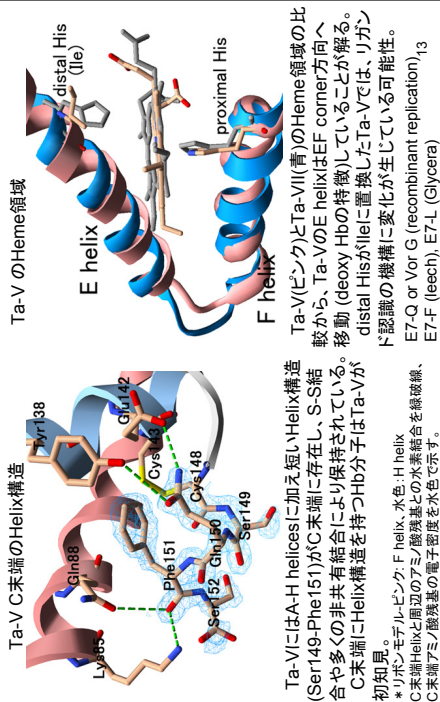
Ta-Vの立体構造 (PDB ID: 1X3K)
 1.64 Å の高分解能で構造精密度。
 全1527ミノ酸残基、
 水分子226個を同定
 (結晶学的R値19.4%)



Ta-VIIの立体構造 (PDB ID: 1X4G)
 1.50 Å の高分解能で構造精密度。
 全1507ミノ酸残基、
 水分子262個を同定
 (結晶学的R値19.4%)

12

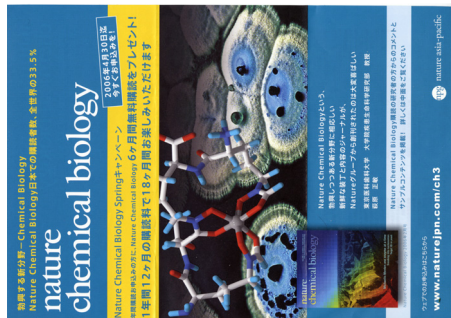
ユスリカHbの構造的特長



昨今の動き

2005年6月創刊

- ・生物有機化学
- ・生物無機化学
- ・生物物理化学
- ・分子レベルでの生体系の理解を助ける
- ・生物学的研究
- ・生物学を踏まえた発展的化学
- ・生物学における化学メカニズム
- ・化学を踏まえた発展的生物学



14

アピール:

日本大学と生体高分子X線結晶構造解析実験室

- ・ なにを教育・研究できるか。
Chemical Biology (化学生物学)
— 立体構造解析を中心として
- ・ どのレベルの教育・研究ができるか。
学部卒論生、大学院生、ポスドク、共同研究
個別研究 (学内・学外研究者)
- ・ 協同して研究を展開したい機関
日本大学の部科校、日本大学院総合科学研究科

16

生物学における化学メカニズム

- 酵素の抑制と反応のメカニズム
- in vivoでの薬物作用のメカニズム
- 小分子生物学の機能的相互作用
- 進化と触媒としての核酸の新しい化学
- in vivoでの蛋白質機能の薬理学的測定
- 生物学的機能をもつ分子プロローブ
- 翻訳後修飾化学の機構解析
- ポストゲノム・アプロローブ (RNA干渉、プロテオミクスなど)への化学的洞察
- 生体系における金属イオン
- 化学的造形
- 小分子と生体分子の単一分子化学
- 生体分子の理論シミュレーションとモデリング
- 分子認識
- 金属酵素の分子モデルシステム
- 分子マシン
- 薬理活性天然物
- 生合成経路の解明
- 蛋白質相互作用ネットワークの化学的アプローチ
- 化学生態学

生物学をふまえた発展的化学

- 酵素合成・天然物の分離と特性
- コンビナトリアル合成
- 合成工学・ウィルス化学
- 定向進化(Directed evolution)および高分子触媒、レセプターの特性
- 化学情報学

化学をふまえた発展的生物学

- 化学遺伝学と大規模スクリーニング
- 生体分子と大規模スクリーニング
- 生体分子および小分子のアレイ作製とバリデーション
- ドラッグデザインと開発に関する化学的洞察
- 合成生物学
- 生体系における非天然生体分子アナログ
- ゲノム化学・生合成経路の化学制御
- 蛋白質、炭水化物、核酸の設計の化学的手法
- システム生物学への化学的アプローチ

15

平成17年度学術フロンティア推進事業
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」

平成18年3月17日

自由電子レーザー照射により生成した
振動励起分子の
Two-Colorイオン化法による検出

日本大学 工学部

○ 奥山 克彦 武田 敏治 田中 誠一

振動励起分子を分光学的に検出する

ArF エキシマレーザー (ナノ秒)
によるイオン化

断熱イオン化点
ArF エキシマレーザー
193 nm 6.42 eV

質量選別

Two-Color 分光 (二重共鳴分光)
現在まで報告なし

FEL

振動準位

零点振動準位

2

- 質量選別赤外吸収分光
- 回転コヒーレント分光
- 振動励起分子の動的追跡

質量選別 赤外吸収分光

Ion Depletion 分光

質量選別

断熱イオン化点

ArF エキシマレーザー
193 nm 6.42 eV

振動準位

FEL

零点振動準位

3

- 水素結合錯体、*van der Waals* 錯体
- 2量体、3量体...
- 1:1 または 1:2...

報告数は多くない。
(非蛍光性の錯体もOK)

Lebra 50 cm⁻¹

Ion Depletion 分光

FOM 研究所 J. M. Bakker et.al

回転コヒーレント分光 J.M.Felker

分子、錯体
構造
柔らかさ
(振動数、遠心力歪)

水の多量体

The Journal of Physical Chemistry, Vol. 96, No. 20, 1992, 7849

10

11

12

13

14

15

16

17

18

19

20

21

22

23

24

25

26

27

28

29

30

31

32

33

34

35

36

37

38

39

40

41

42

43

44

45

46

47

48

49

50

51

52

53

54

55

56

57

58

59

60

61

62

63

64

65

66

67

68

69

70

71

72

73

74

75

76

77

78

79

80

81

82

83

84

85

86

87

88

89

90

91

92

93

94

95

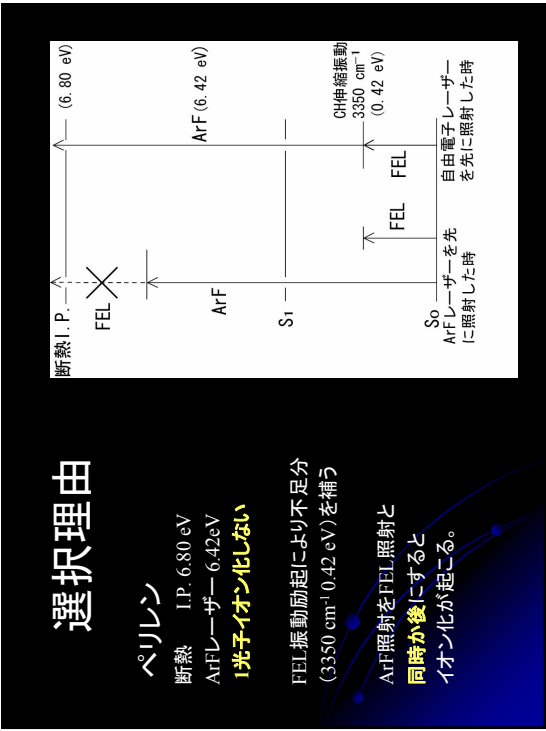
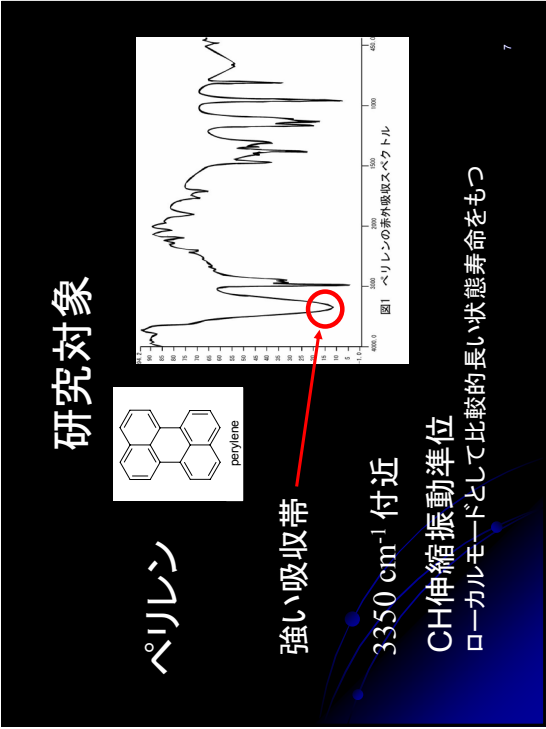
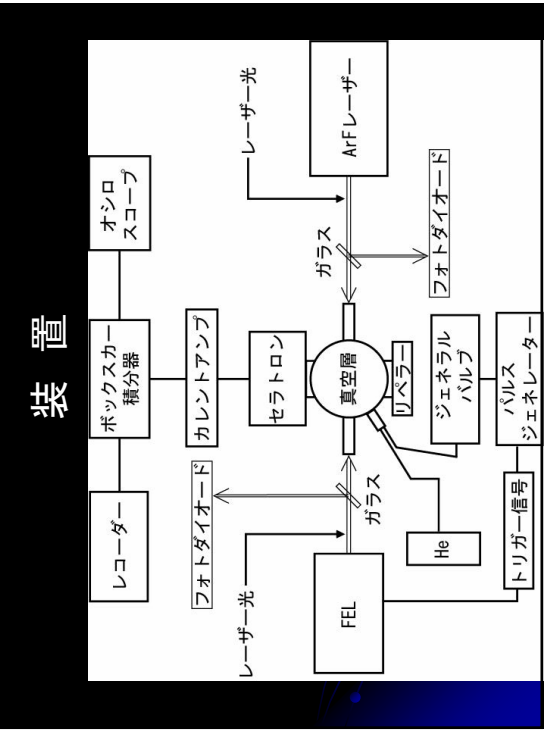
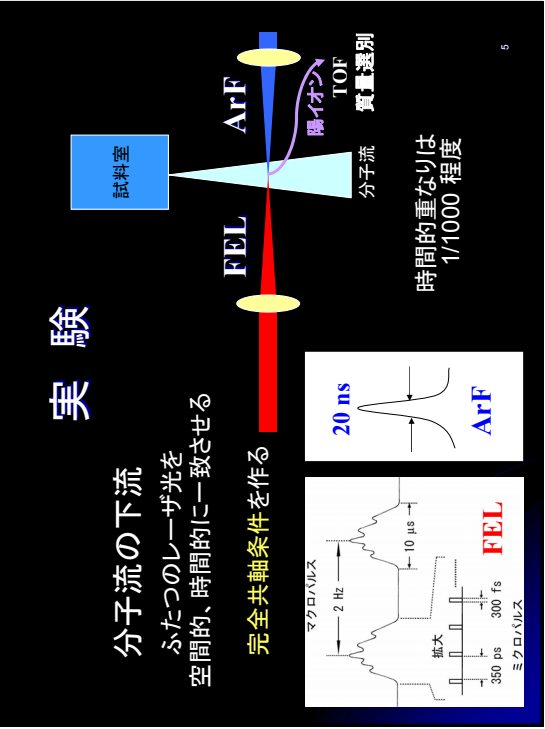
96

97

98

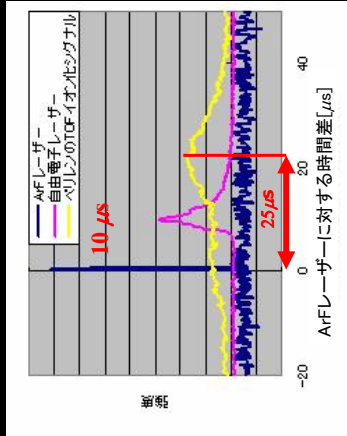
99

100



ArFレーザーを 10 μs 先に照射

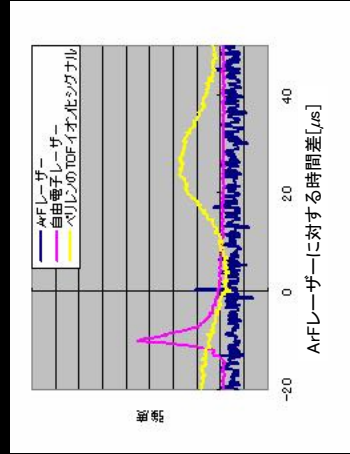
弱い
イオンシグナル
↓
2光子イオン化
25 μs 後 TOF時間
||
ペリレンの質量と一致



9

ArFレーザーを 10 μs 後に照射

弱い
イオンシグナル
しかし...
ArFレーザー強度も減少
同程度イオンシグナル
↓
長い状態寿命

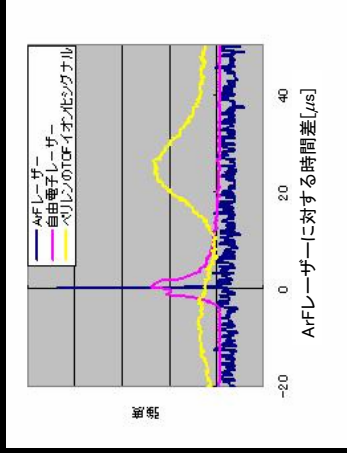


11

ArFレーザーの照射時間を一致

イオンシグナル
増加
↓
Two-Color信号

ただし、
増加量は2倍
SN比 = 1



10

まとめ

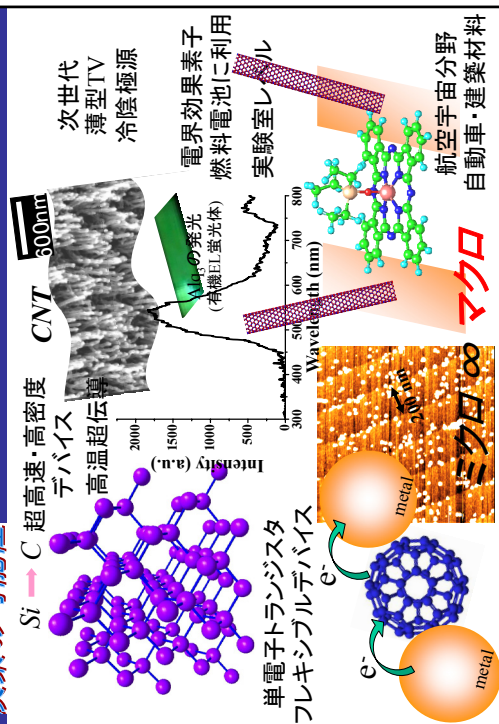
FELとArFレーザーによる
(1+1')
Two-Color-イオン化に成功
SN比はほぼ1と極めて小さく
条件改良が必要

12

光励起による
フラーレンポリマーの合成

岩田展幸・山本寛

炭素の可能性



目的

《FEL照射による光励起
と
ホールドーピング》

3次元的にホリマー化した マクロスケールのC₆₀分子集合体の創製

特性

予想される
3次元C₆₀ポリマーの特質

**九
疳
疔**

ダイヤモンド級
非晶質構造
低密度放散集合体

十三年九月

ダイヤモンド: 劈開性
ダイヤモンド: 411GD³

ダイヤモンド: 44 GPa
C₆₀: 843 GPa (18 GPa)

度
密
量
重

Fe: 7.87 g/cm³ C_{60} : **1.69** g/cm³ $\frac{1}{5}$

C₆₀ポリマーは
ダイヤモンドクラスの硬度

ポリマー化法

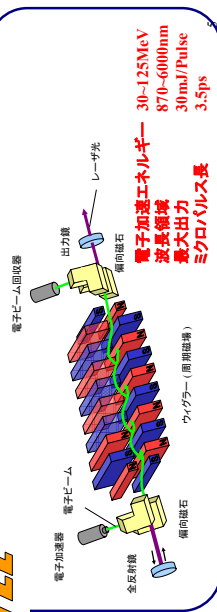
- ・紫外線、電子線照射
- ・物性探索
- ・高温高圧処理

・FEL照射による C_{60} のポリマー化

FELの特徴: 波長可変、psオーダーのマイクロパルス

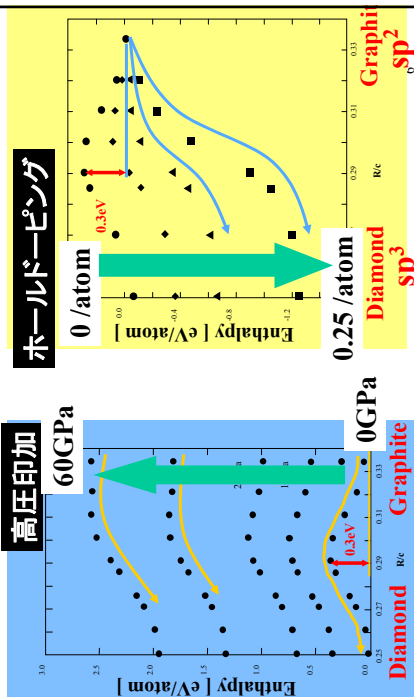
C_{60} 分子を傷つけることなくポリマー化

FEL



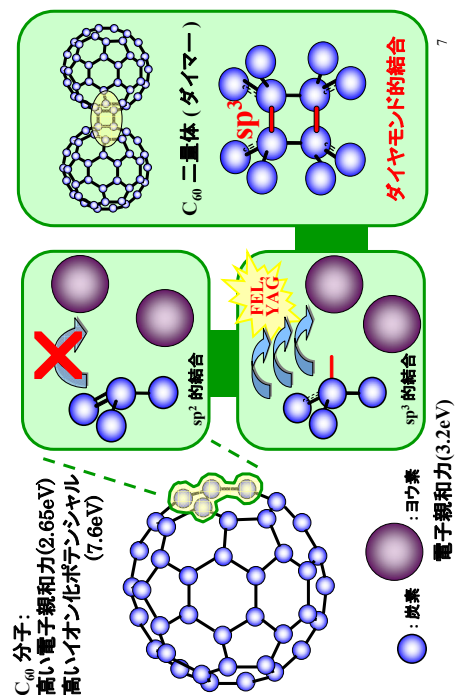
ホールドーピング

グラファイトからダイヤモンドを創製

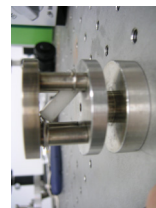
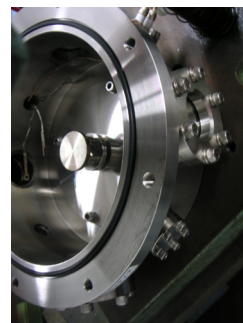


H. Nakayama and H. Katayama, J. Phys. Condens. Matter, 15(2003)R1077

600kV-合成の原理



実験装置



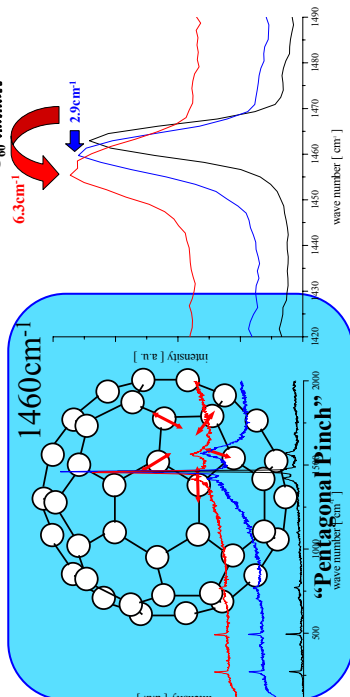
実験装置概略図

8

試料	レーザ波長 [nm]	レーザ強度 [mJ/Pulse]	圧力 [MPa]	照射時間 [min]
C ₆₀	—	—	60	—
C ₆₀	FEL : 450	0.5	—	180
	345	0.5	470	120
	YAG : 532	1.6	—	60
C ₆₀ & I ₂	FEL : 450	0.5	—	180
	345	0.5	470	120
	YAG : 532	1.6	—	60

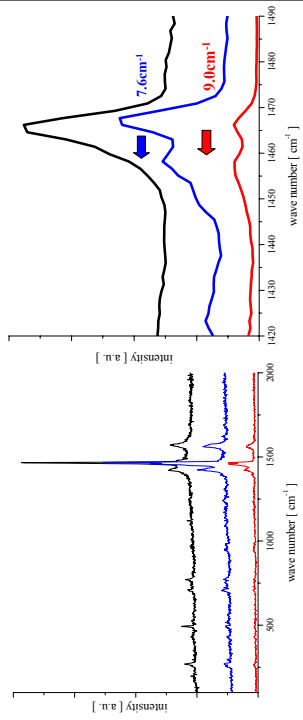
評価	Raman 分光	振動解析
	XRD	結晶構造解析

FEL ($\lambda = 450\text{nm}$)

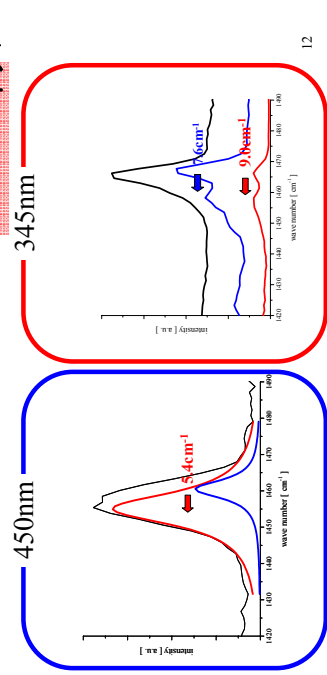


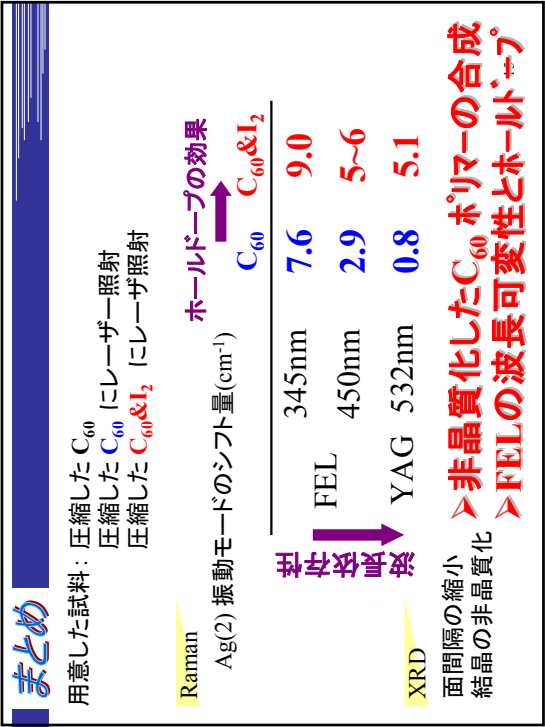
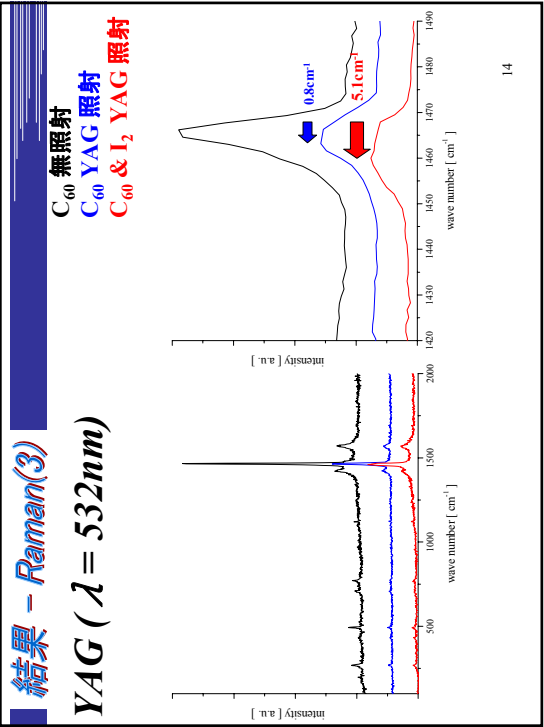
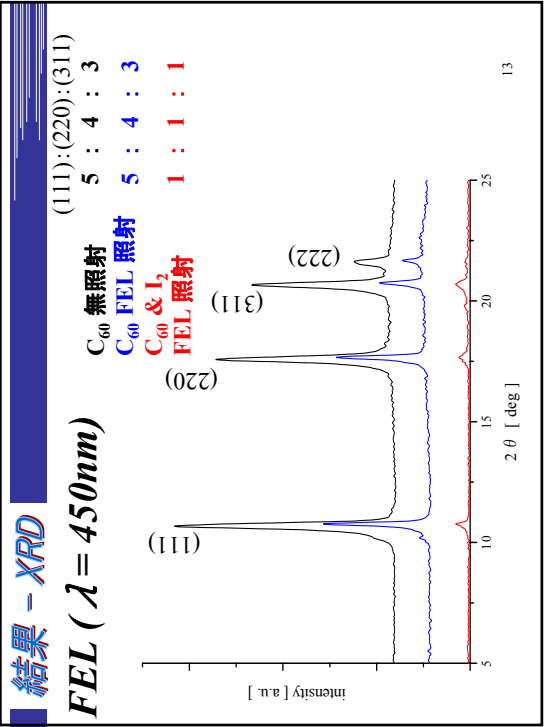
FEL ($\lambda = 345\text{nm}$)

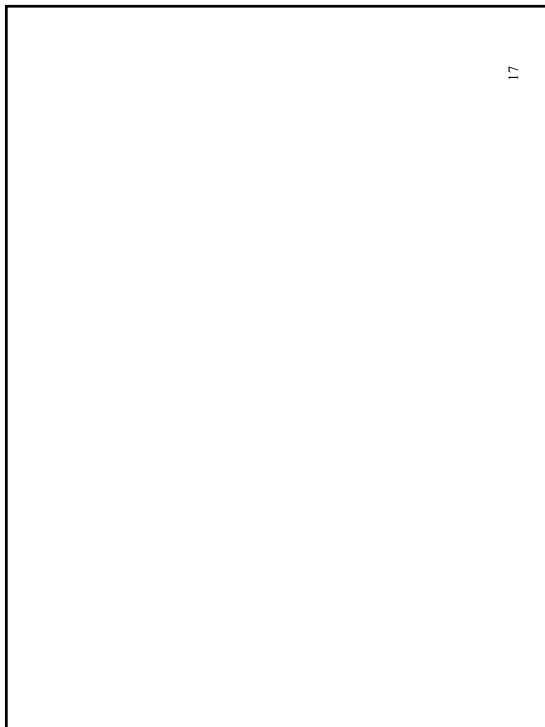
C₆₀ 無照射
C₆₀ FEL 照射
C₆₀ & I₂ FEL 照射



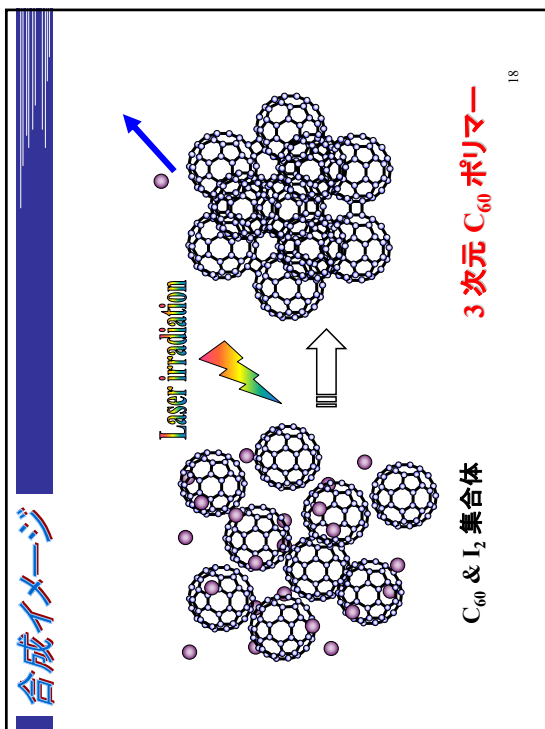
ポリマー化に差異、ピークのシフトと分裂 Raman
345nm
450nm
C₆₀ の吸収係数
514.5nm < 450nm < 345nm
(Raman分光)



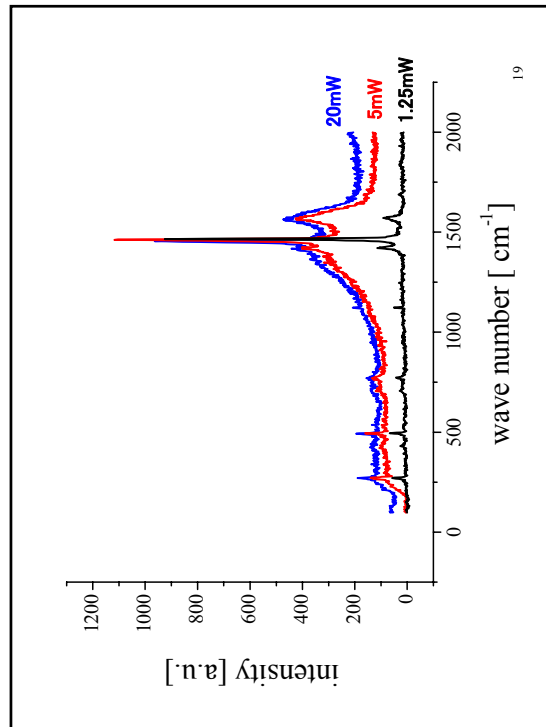




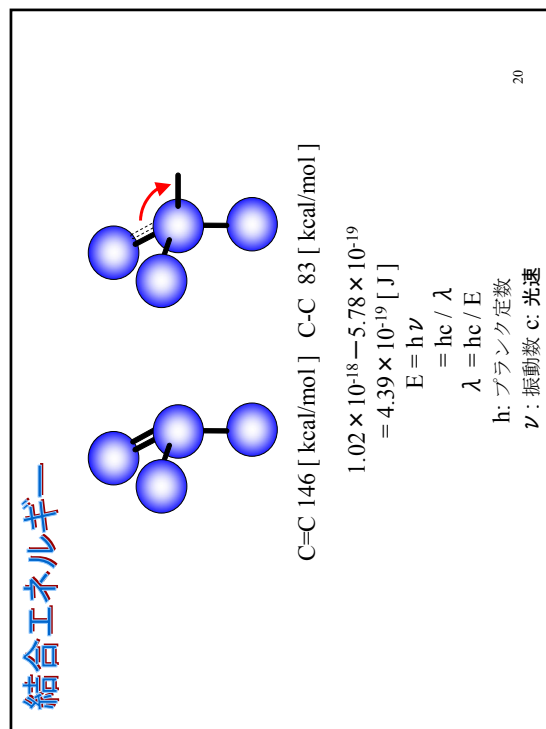
17



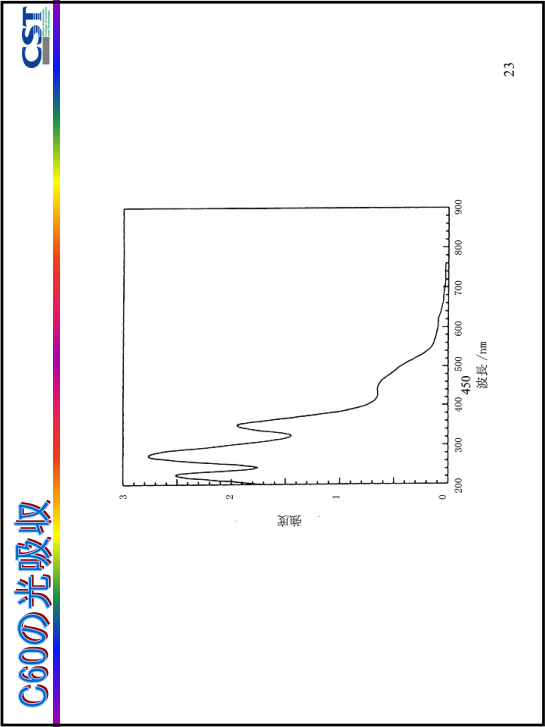
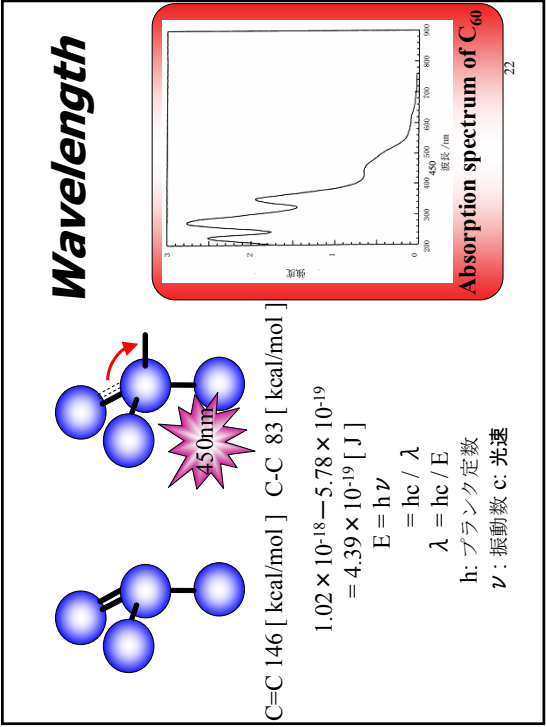
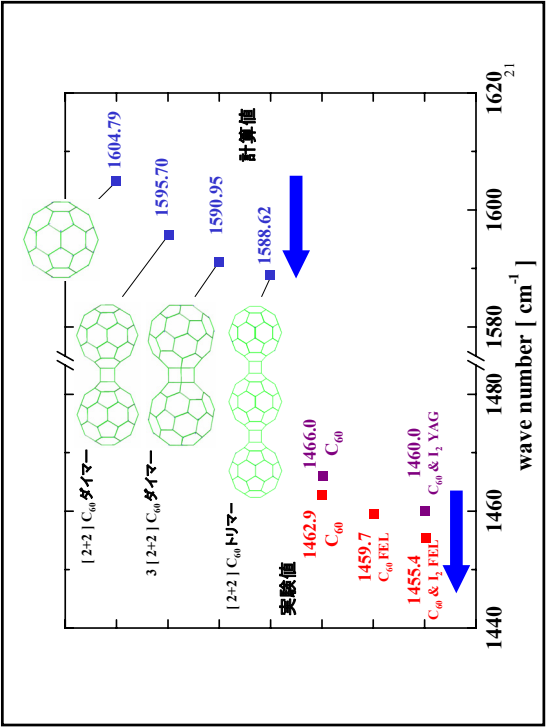
18

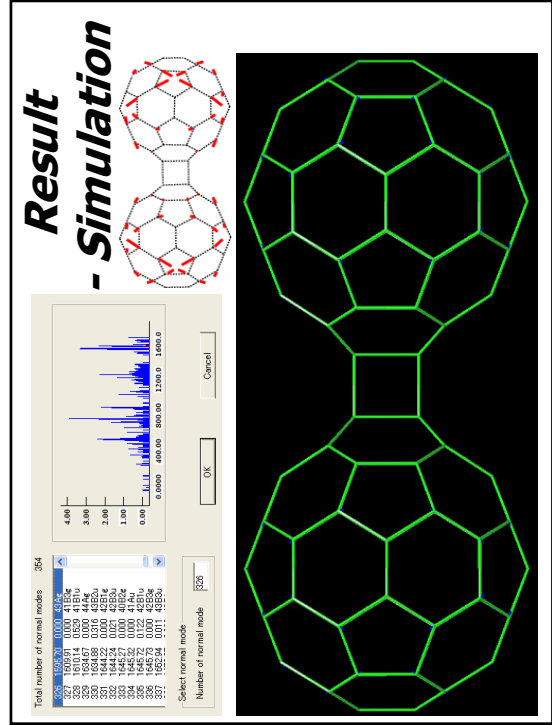
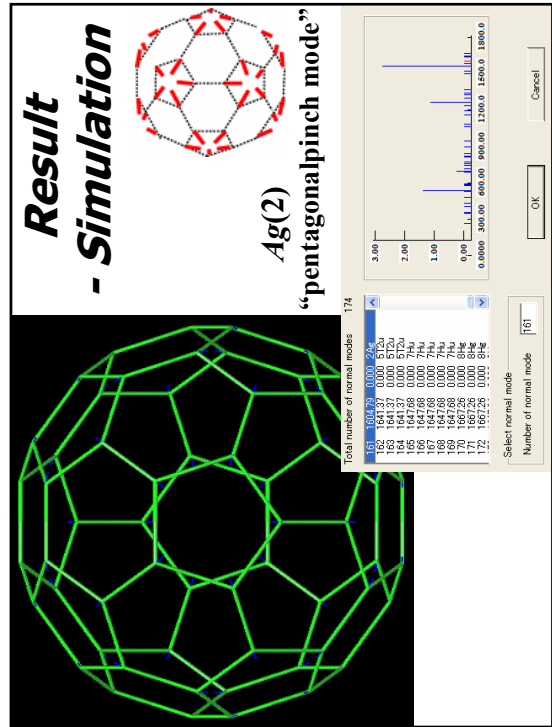
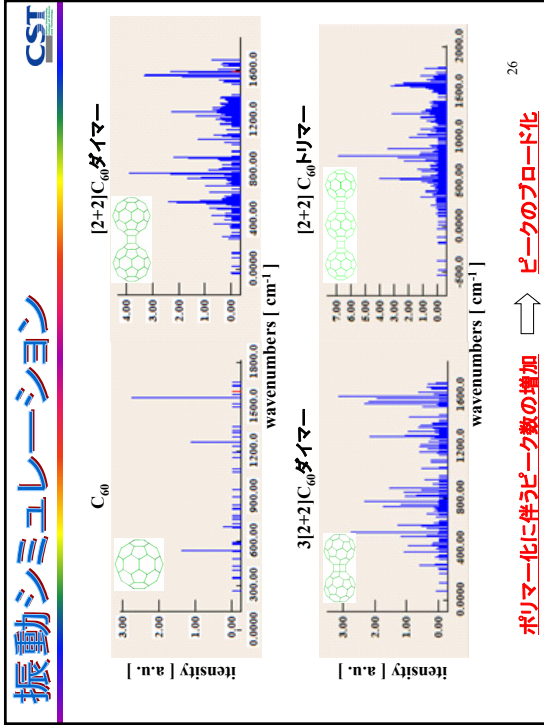


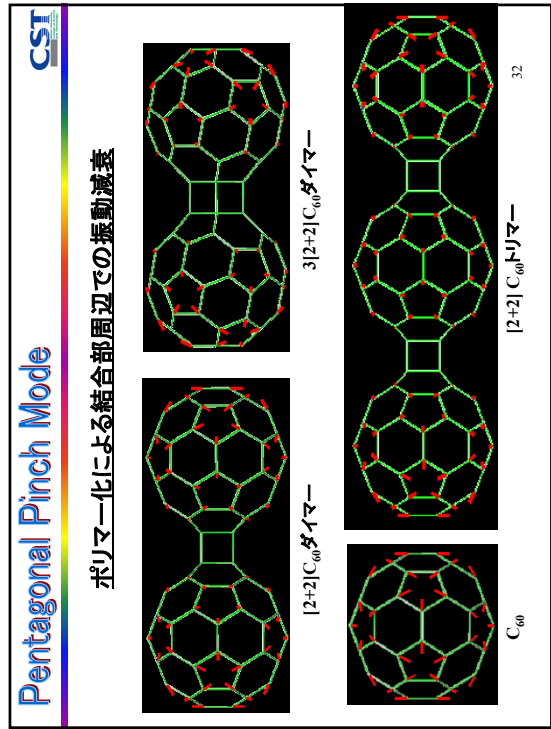
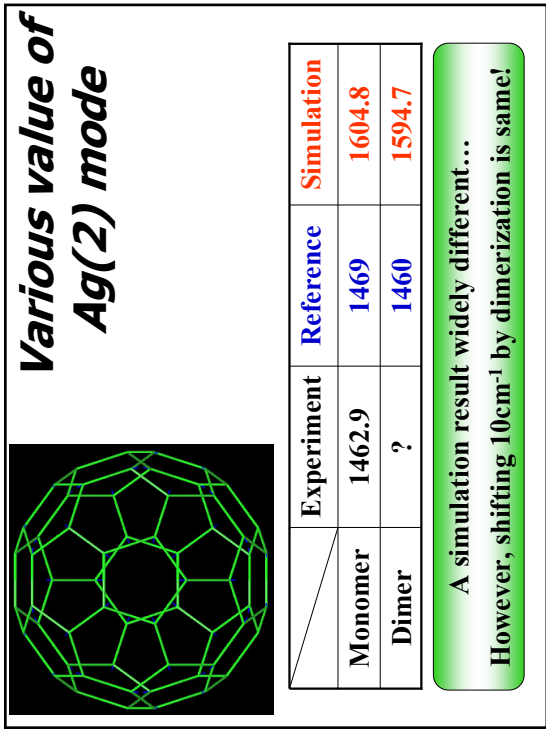
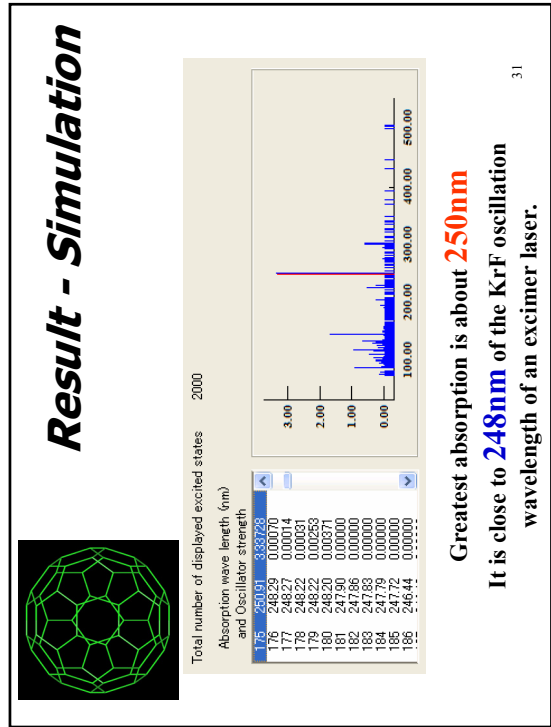
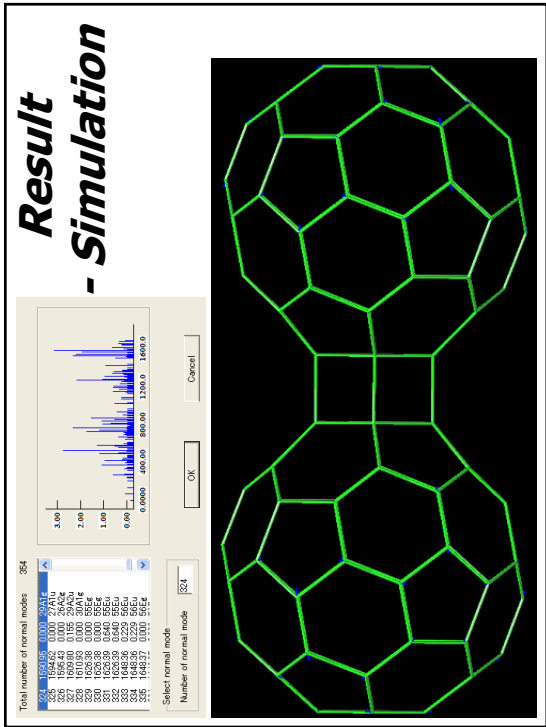
19



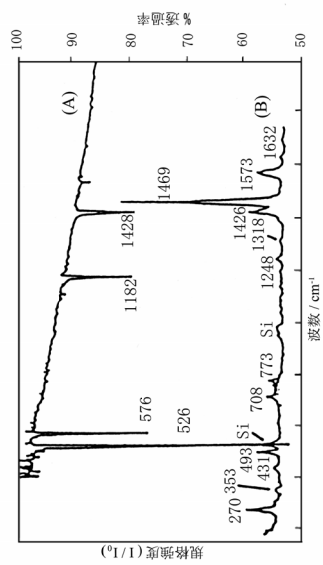
20



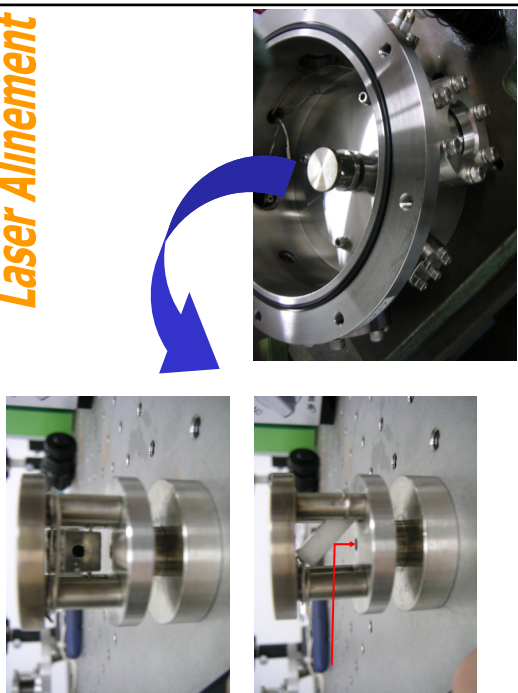




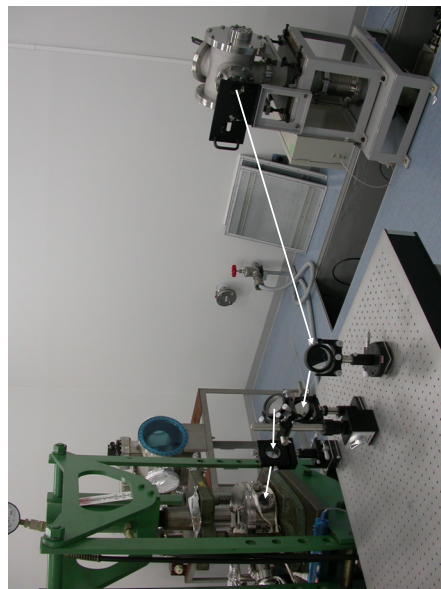
C60のIR(A)とラマン(B)



Laser Alinement

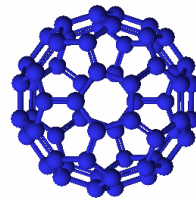


実験装置



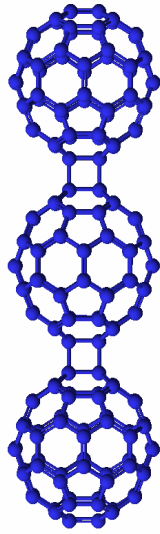
Result - Simulation

C₆₀ molecule



Result - Simulation

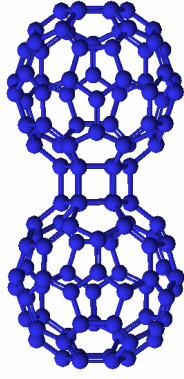
1D-C60polymer



37

Result - Simulation

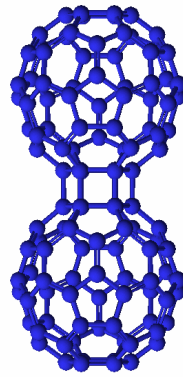
1D-C60polymer



38

Result - Simulation

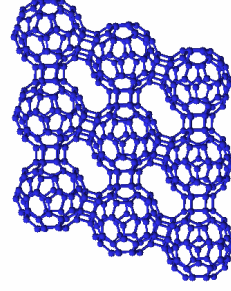
1D-C60polymer



39

Result - Simulation

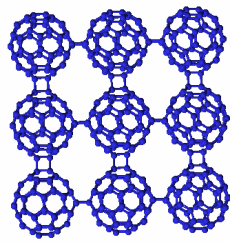
2D-C60polymer(R)



40

Result - Simulation

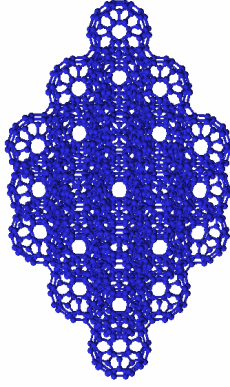
2D-C60polymer(T)



41

Result - Simulation

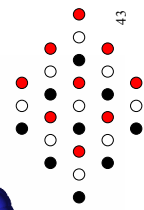
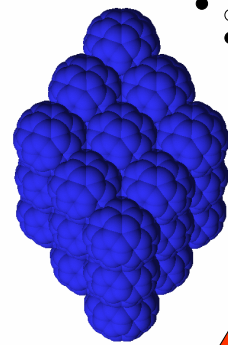
3D-C60polymer



42

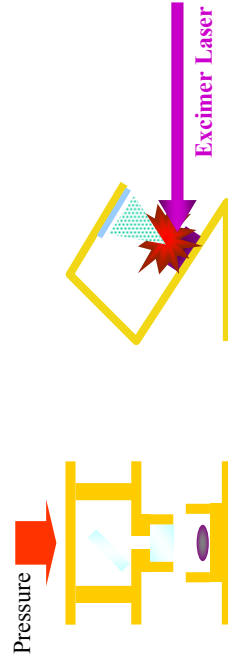
Result - Simulation

3D-C60polymer



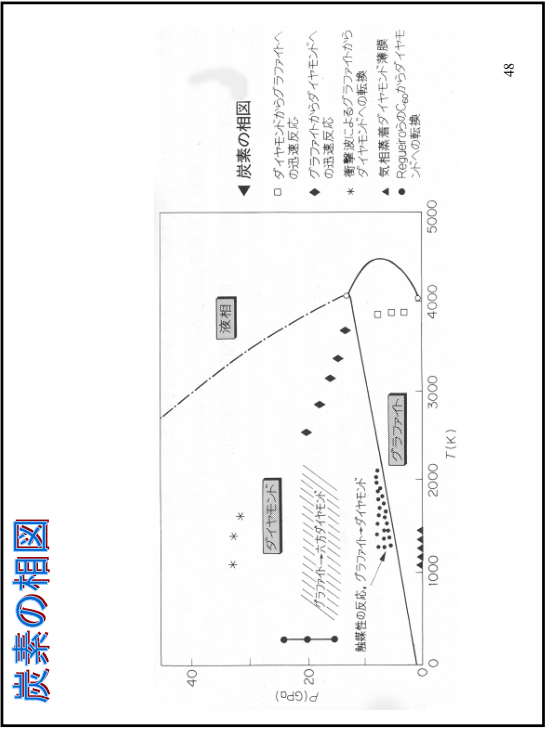
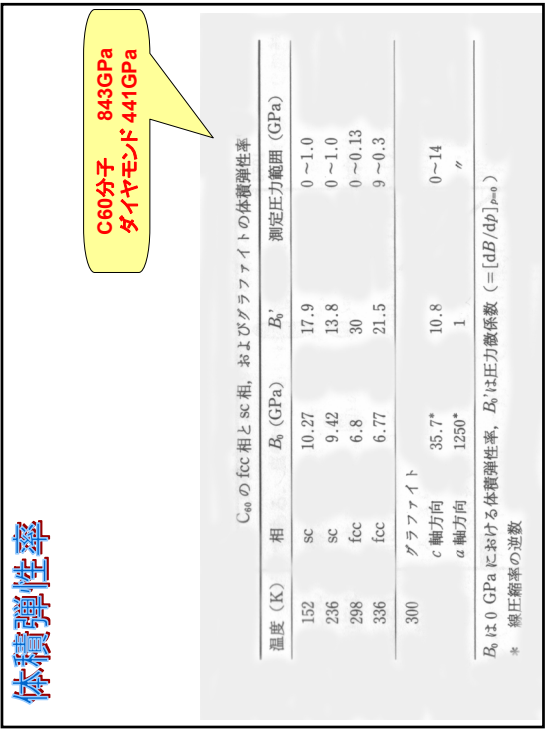
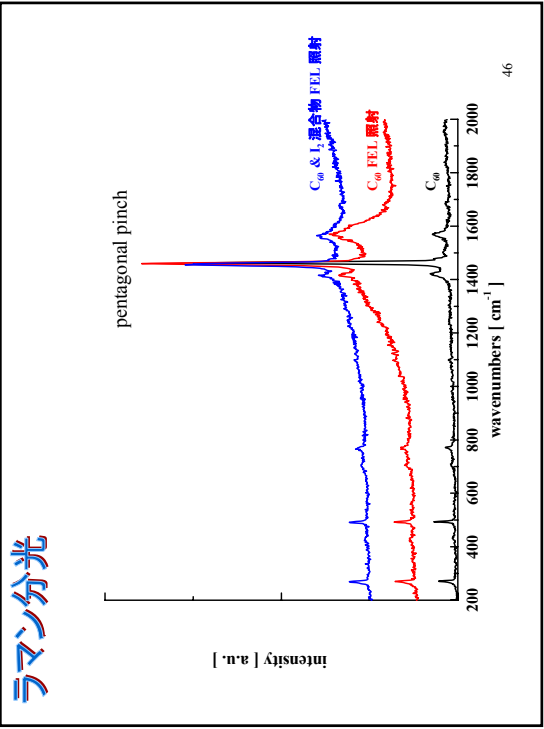
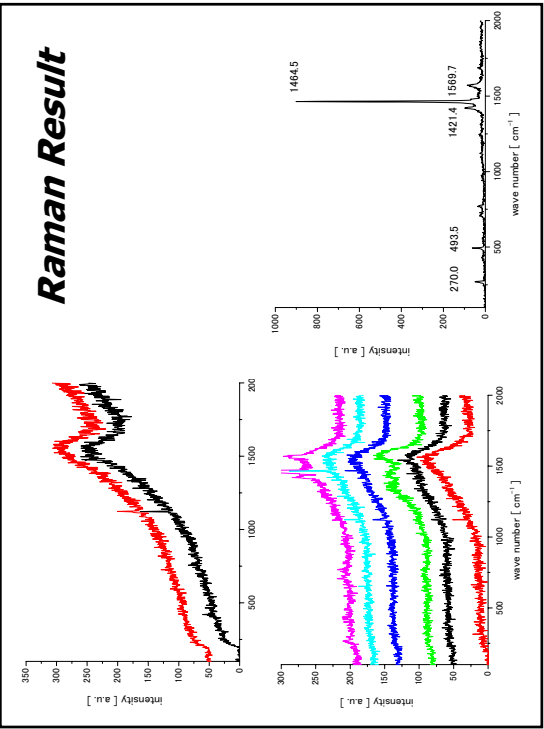
43

Laser Ablation



レーザーアブレーションとは、レーザー光を固体に照射した場合、レーザー照射強度がある大きさ以上になると、固体表面で、電子、熱的、光学的および力学的エネルギーに変換され、その結果、中性原子、分子、正負イオン、ラジカル、クラスター、電子、光が爆発的に放出され、固体表面がエッチングされるプロセス

44



体積弾性率

CST

C60分子 843GPa
ダイヤモンド 441GPa

C₆₀のfcc相とsc相、およびグラファイトの体積弾性率

温度 (K)	相	B ₀ (GPa)	B ₀ '	測定圧力範囲 (GPa)
152	sc	10.27	17.9	0~1.0
236	sc	9.42	13.8	0~1.0
298	fcc	6.8	30	0~0.13
336	fcc	6.77	21.5	9~0.3
300	グラファイト			
	c軸方向	35.7*	10.8	0~14
	a軸方向	1250*	1	"

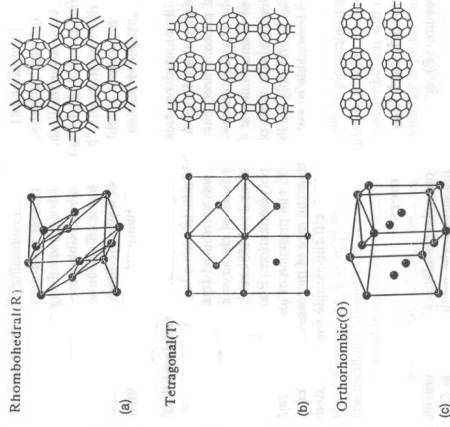
B₀は0 GPaにおける体積弾性率, B₀'は圧力微係数 (= [dB/dP]_{P=0})

* 線圧縮率の逆数

50

高圧合成C60ポリマーの相

CST



ポリマーの次元と分子間結合

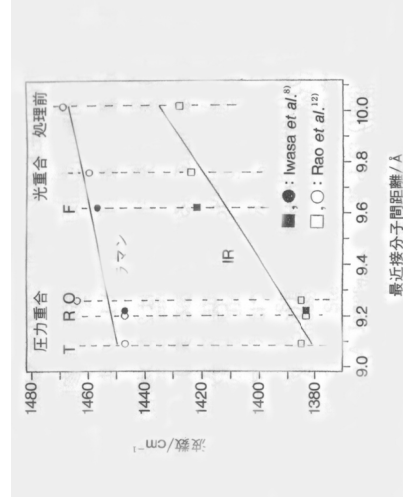
CST

C₆₀ポリマーの次元性と最近接分子間結合の種類と数

(C ₆₀) ^{1/0}	光重合 (F相)	無秩序三次元ポリマー	2本×α
	高圧 (F相)	無秩序二次元ポリマー	2本×α
	高圧 (O相)	一次元ポリマー	2本×2
	高圧 (T相)	二次元ポリマー	2本×4
	高圧 (R相)	二次元ポリマー	2本×6
	高圧 (c軸の ^{1/3} , R相)	三次元ポリマー	2本×(6+α)
(C ₆₀) ⁻¹	A ₁ C ₆₀ (O相)	一次元ポリマー	2本×2
	急冷 (F相)	二量体	1本×1
(C ₆₀) ⁻³	Na ₃ RbC ₆₀	一次元ポリマー	1本×2
(C ₆₀) ⁻⁴	Na ₄ C ₆₀	二次元ポリマー	1本×4

伸縮振動と分子間距離

CST

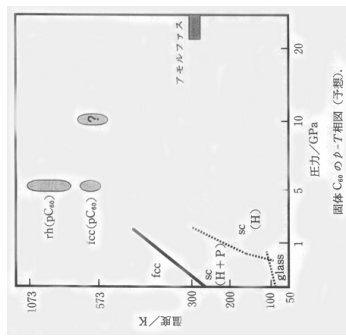


C=C伸縮振動のIRおよびラマン波数と最近接分子間距離。

52

C60からダイヤモンド?

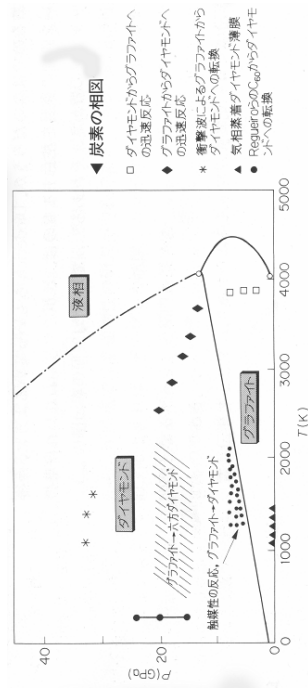
CST



53

炭素の相図

CST



炭素の相図

- ダイヤモンドからグラファイトへの迅速反応
- ◆ グラファイトからダイヤモンドへの迅速反応
- * 衝撃波によるグラファイトからダイヤモンドへの転換
- ▲ 気相炭素ダイヤモンド薄膜
- ReguibatのC₆₀からダイヤモンドへの転換

54

平成17年度学術フロンティア推進事業
「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」シンポジウム

光エネルギーを利用した 絶縁膜の低温成長

○稲野 正 (電子専攻：2年)
海老原 司 (電子専攻：1年)
西村 剛 (電子情報：4年)
高橋 芳浩 (電子情報：専任講師)
大西 一功 (電子情報：教授)

1

研究背景

集積回路の高集積化→ゲート絶縁膜の薄膜化に限界

シリコン窒化膜は酸化膜に比べ高誘電率・高密度

シリコン窒化膜の製膜方法は主に熱CVD法

・熱による基板の反り
・不純物の再拡散

低温プロセスの必要性

研究背景

低温プロセス

光CVD法

プラズマCVD法

界面特性が良好でない

新たなプロセスを提案

光励起直接窒化法

3

原理

光励起反応

$\text{NH}_3 \rightarrow \text{NH}_2 + \text{H}$

U.V.

U.V.

NH_3

NH_2

Si

SiN

Si

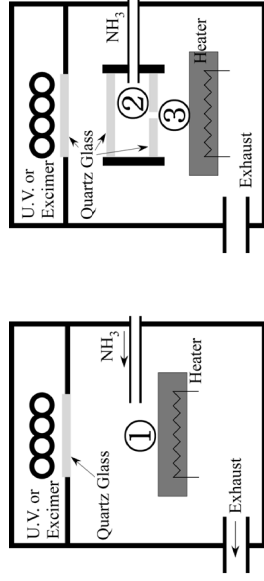
4

目的

- シリコン基板の低温窒化
- 励起管を用いた窒化膜の諸特性評価
 - XPSによる組成分析
 - 耐酸化性
 - 電気的特性
- 電流伝導機構の検証

5

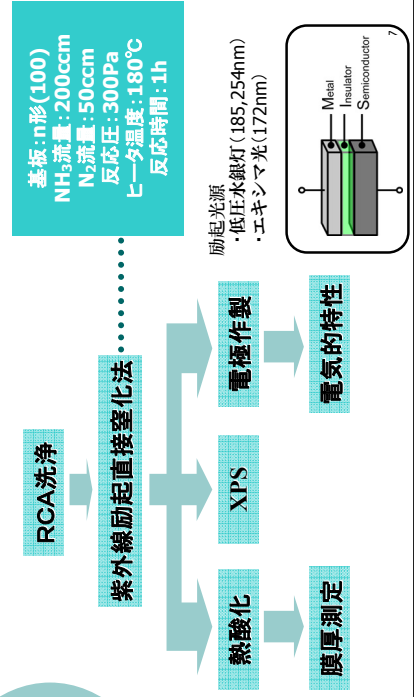
実験装置図と基板位置



- ①・・・ヒーター上 アンモニアを横から導入
- ②・・・石英ガラス上 アンモニアを横から導入
- ③・・・ヒーター上 アンモニアを上から導入

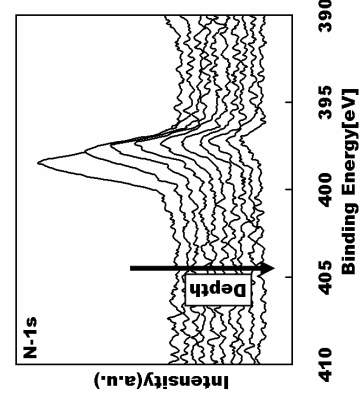
6

実験方法



7

XPSによるN-1sスペクトル



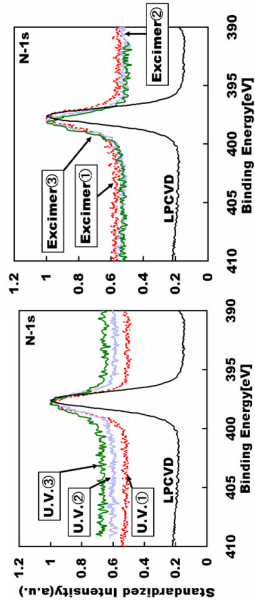
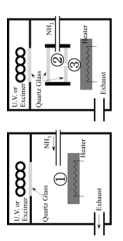
全ての膜において同様なN-1sピークを確認

8

XPSによる表面層N-1s

チャージアップを考慮、Si-2pを99eVに補正

LPCVDによる窒化膜と同様な結合状態



9

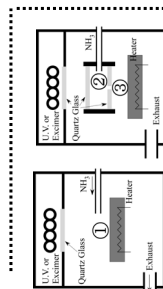
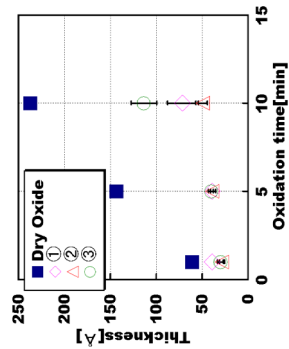
熱酸化後の膜厚比較

耐酸化性: ② > ①

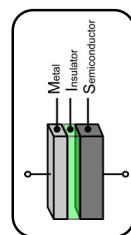
窒化後に熱酸化

今後は②を重点的に評価

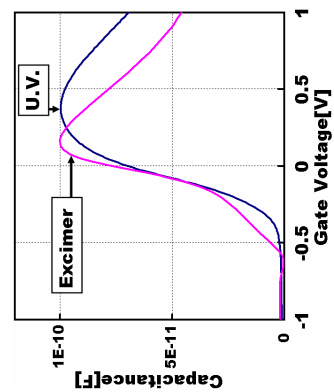
全ての膜に耐酸化性



容量電圧特性



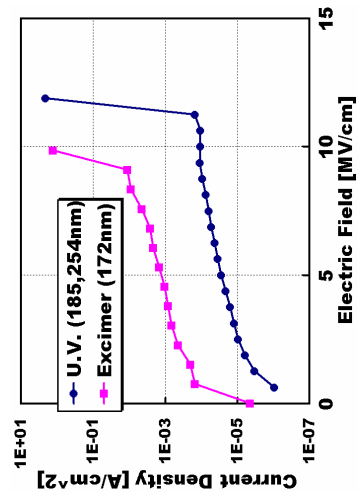
MIS構造の
CVカーブを確認



蓄積層での容量の減少は
リーク電流増加のため

11

リーク電流特性



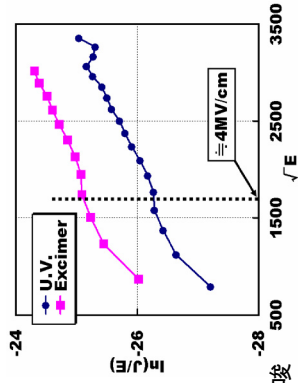
両光源共、約10MV/cmまで絶縁耐圧が得られた

Poole-Frenkel伝導プロット

Poole-Frenkel電流密度

$$J_{PF} = CE \cdot \exp\left\{-(q/kT)(\phi - \beta\sqrt{E})\right\} \Rightarrow \ln(J/E) \propto \sqrt{E}$$

C:定数
E:絶縁膜電界
 ϕ :トラップ準位
 $\beta = \sqrt{q/\pi\epsilon}$



4MV/cm以上で比例領域

Poole-Frenkel伝導機構を示唆

14

まとめ

- 光励起NH₃ガスによる低温直接窒化
- ◆ 180℃という低温で窒化が可能
- ◆ 作製した膜はシリコン結合が支配的
- ◆ 励起管を用いることにより耐酸化性が向上
- ◆ 電流伝導機構にはPoole-Frenkel伝導が寄与

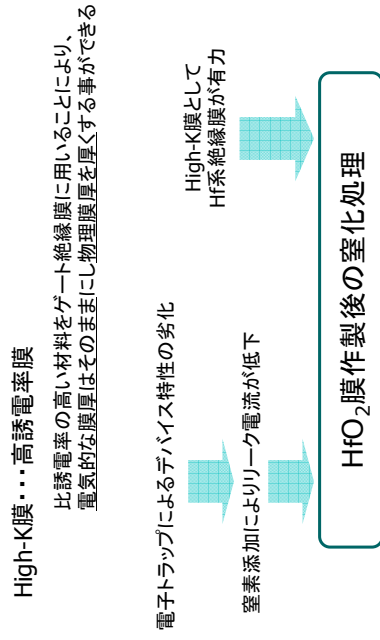
今後の方針



FEL・エキシマレーザー光を利用した窒化プロセスの検討

15

今後の方針



16

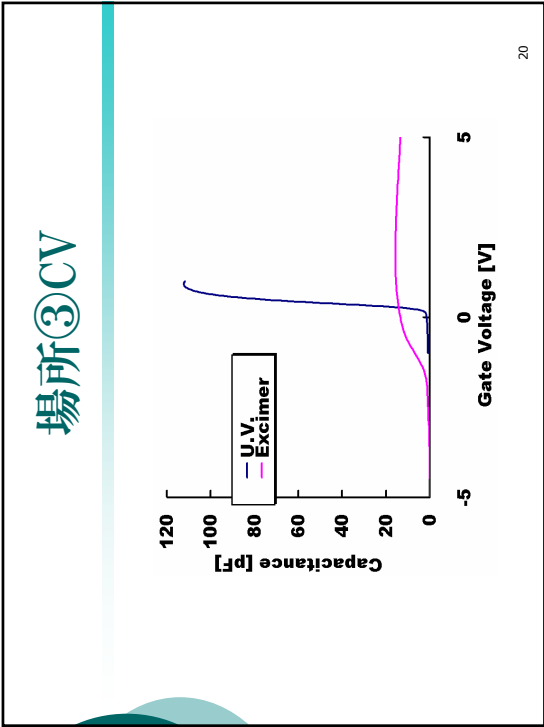
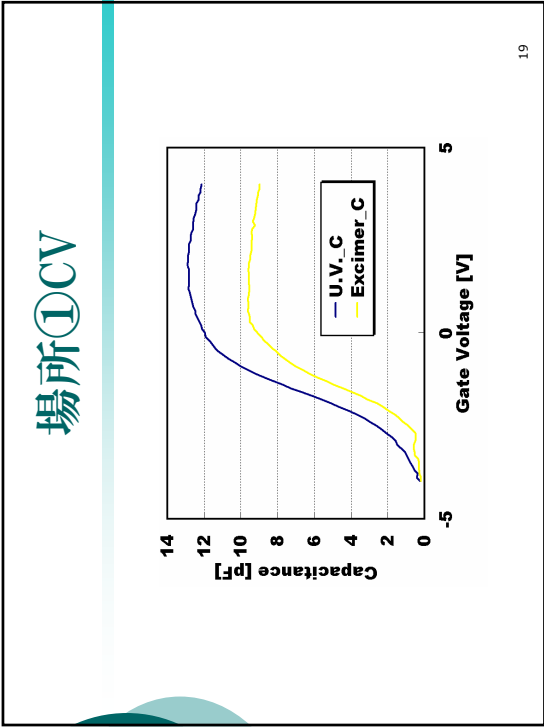
○ 以上で発表を終わります

膜厚データ

光源	ヒーターのみ	励起管内	励起管下
U.V.	2.1	2.1	2.2
	15.5	15.3	12.1
Excimer	2.1	2.1	2.2
	14.6	16.8	12.8

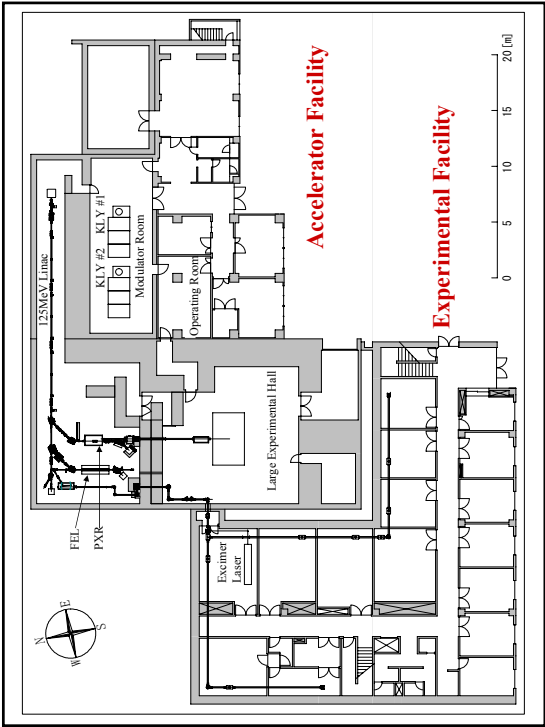
平均屈折率

平均膜厚



2005年度共同利用状況および施設の現状

日本大学量子科学研究所
 電子線利用研究施設
 田中 俊成

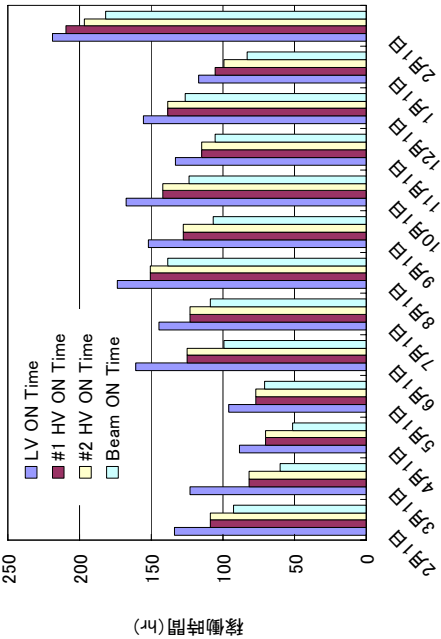


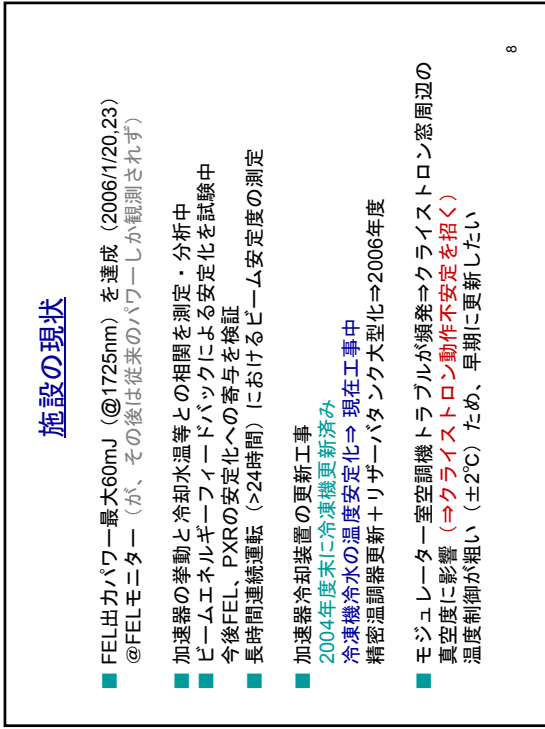
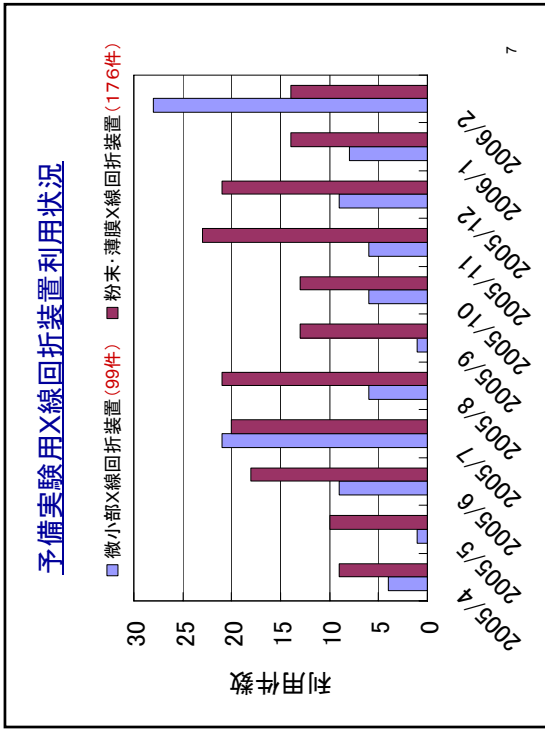
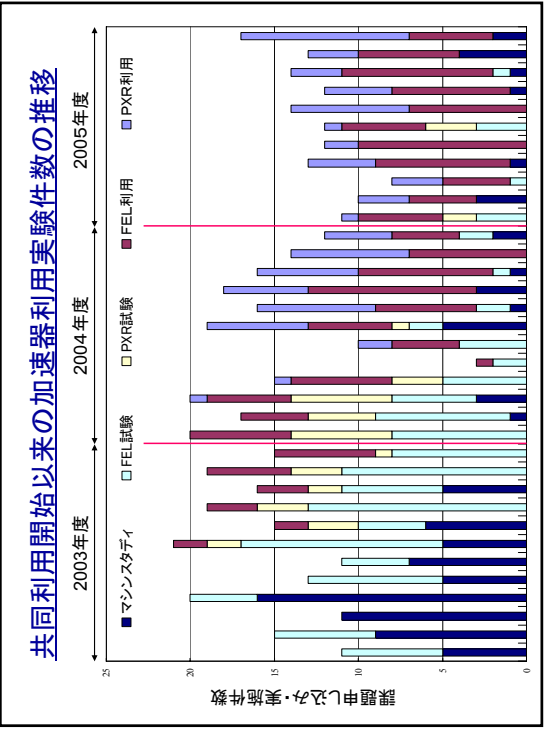
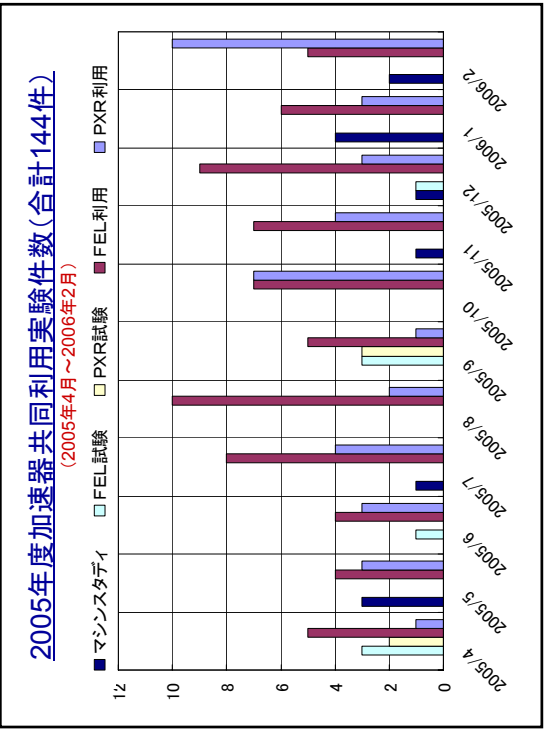
年間加速器稼働時間の推移

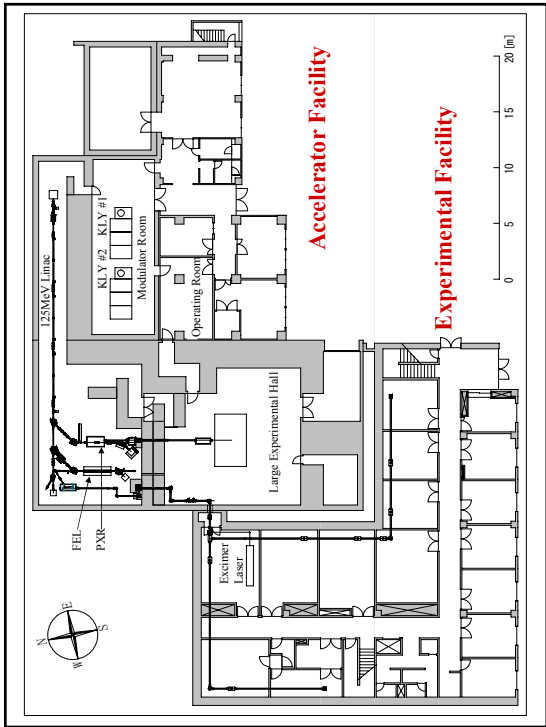
	LV ON Time (hr)	#1 HV ON Time (hr)	#2 HV ON Time (hr)	BEAM ON TIME (hr)
2003/4-2004/3	2406.27	1588.70	1894.30	852.90
2004/4-2005/3	1829.65	1353.57	1350.43	1082.28
2005/4-2006/2	1607.43	1383.57	1364.58	1196.22
Total Time	5843.35	4325.83	4609.32	3131.40
2005/3-2006/2	1730.32	1465.32	1446.33	1256.08

最近1年間の月別加速器稼働時間の推移

(2005年3月～2006年2月)



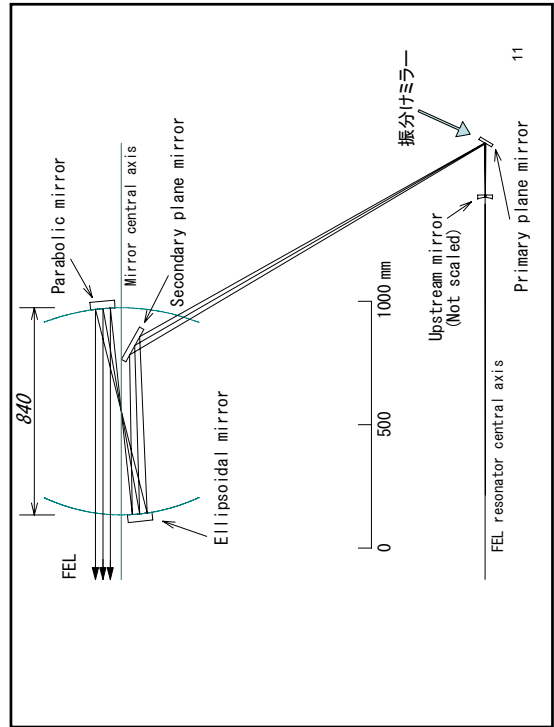




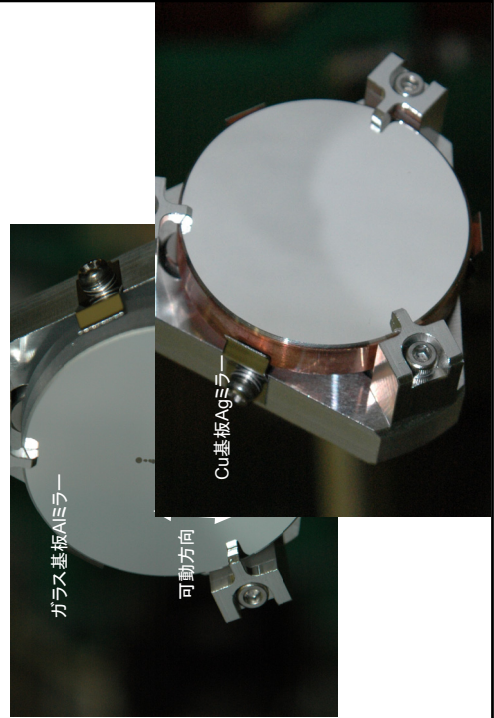
FEL利用におけるトラブルと今後の課題

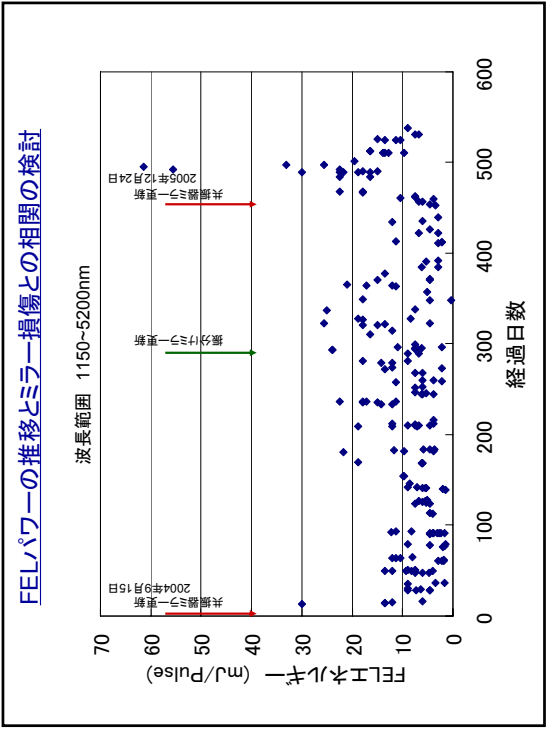
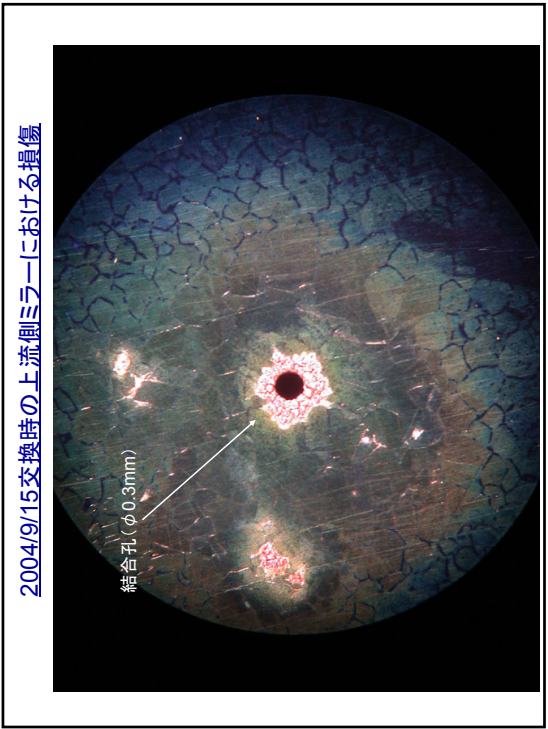
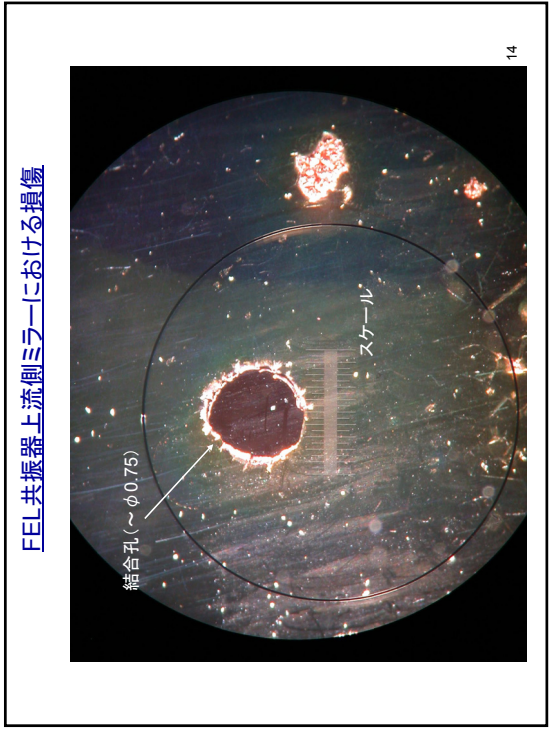
- 振り分けミラーの損傷
- 共振器ミラーの損傷
- 真空悪化
- 光輸送光学系のミスアライメント
- 実験室ポート跳ね上げミラー駆動機構
- FELモニター機構(オペレーター側)の改善
- FELモニター機構(実験室)の充実
- FELパワーの安定化

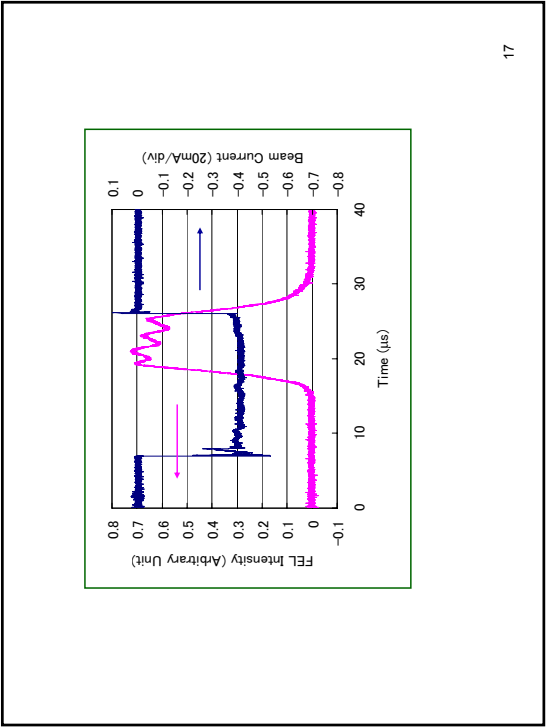
10



FEL取出し系振分けミラーの損傷と更新(2005/7/4)







結果：共振器ミラーの損傷とFELパワーの低下を明確に
関連付けられるような傾向は見られない



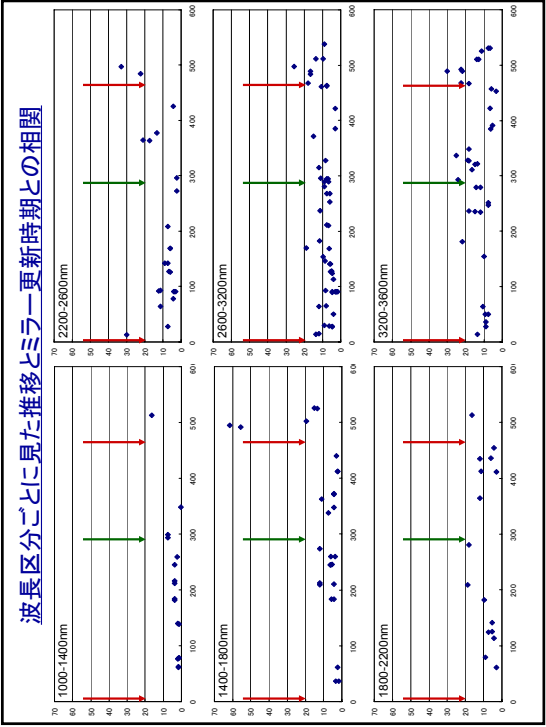
ミラーの損傷が徐々に進むのか、突然大きく損傷を受けるのか不明

経験則：ミラー更新直後は発振が容易且つ発振レベル
も概して高いが、短期的である

可能性

ミラー損傷 → FELパワー減少 → ミラー面・ビーム軌道調整
→ FELパワー回復

発振困難



ミラー材料の問題

Ag (Cu) : 現行使用 十分な耐性が得られていない

Ag (Si) : 購入予定 耐性は未知数

共振器ミラーの発熱の影響(?)

5Hz運転の際に、ビーム調整による瞬時のFELパワー変化
に加えて、1秒程度かけてさらにFELパワーレベルの遷移が
見られる



ミラー間隔の調整でパワーレベルを回復可能

動物実験系を応用したレーザー の生物学的効果の検証

多田 充裕¹, 久保山 昇², 木場 秀夫³, 岸川 道子⁴

日本大学松戸歯学部 ¹ 歯科総合診療学, ² 口腔分子薬理学,
³ 口腔病理学, ⁴ 生化学・分子生物学

1

目 的

関節リウマチの予防・治療法に関して、
ヒト慢性関節リウマチのモデル動物を用
いて、低出力レーザーおよび近赤外線照
射による抗炎症効果を検討する。

実験材料

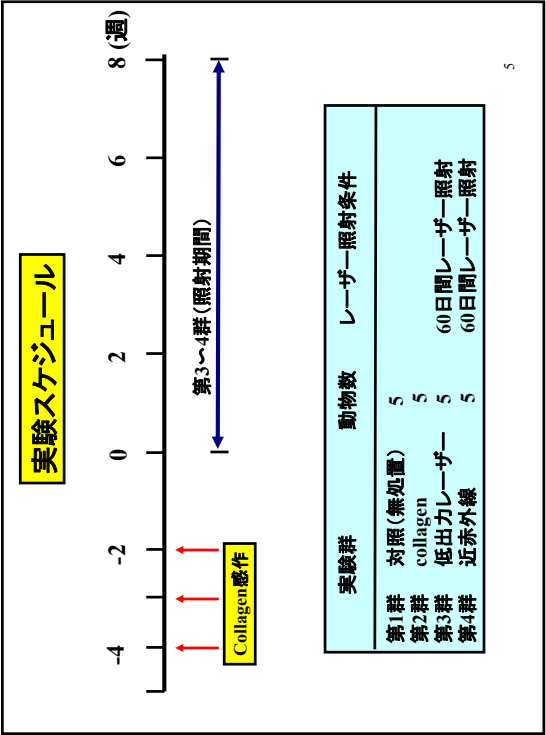
- (1) 実験動物
生後5週齢のLewis(レイス)系雌性ラット
- (2) 照射装置
 - ① 低出力レーザー (Ga-Al-As半導体) 照射装置
波長: 830nm (松下電器産業)
 - ② 近赤外線照射装置
波長帯: 600-1600nm (東京医研)

3

方 法

ラットⅡ型コラーゲン関節炎は、Lewis系雌性
ラットに抗原であるウシⅡ型コラーゲンを背部お
よび尾根部皮内に投与し、関節炎を発症させた。
低出力レーザーおよび近赤外線の照射条件は、
総照射エネルギー密度 5 J/cm² (500 sec/day: 連
続照射) で、1日おきに照射を行った。

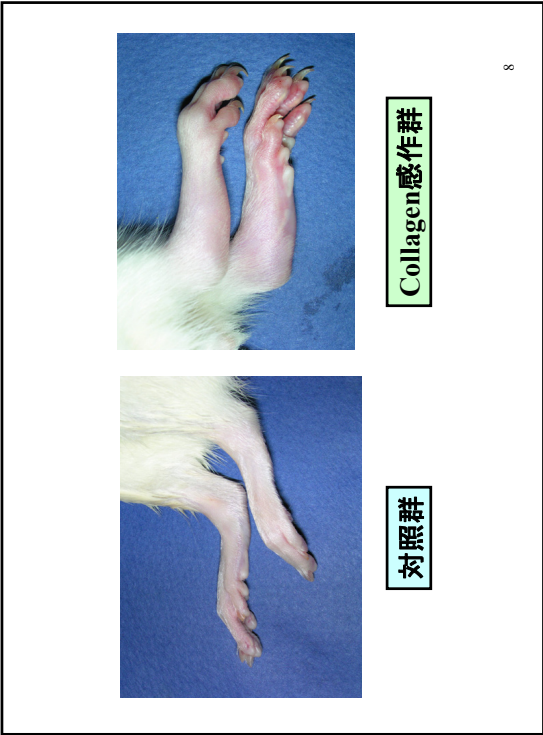
4



5



6



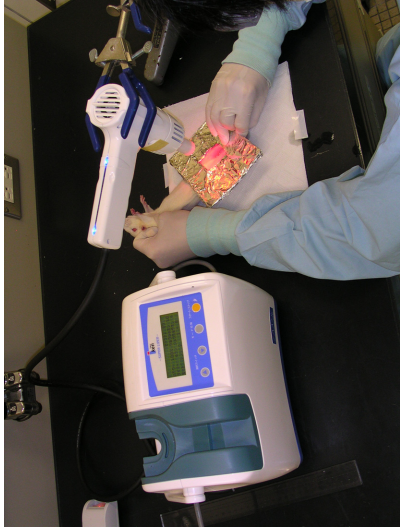
8

低出力レーザー照射(松下電器)



9

近赤外線照射(東京医研)

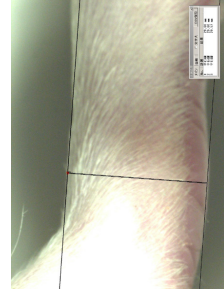


10

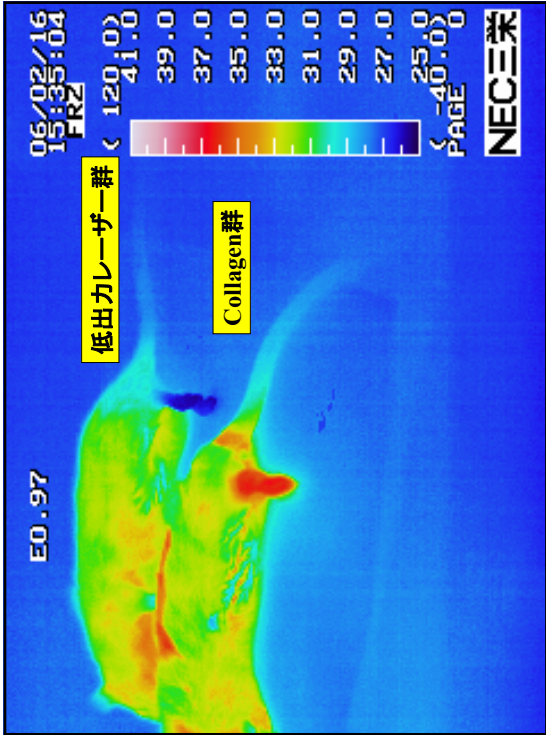
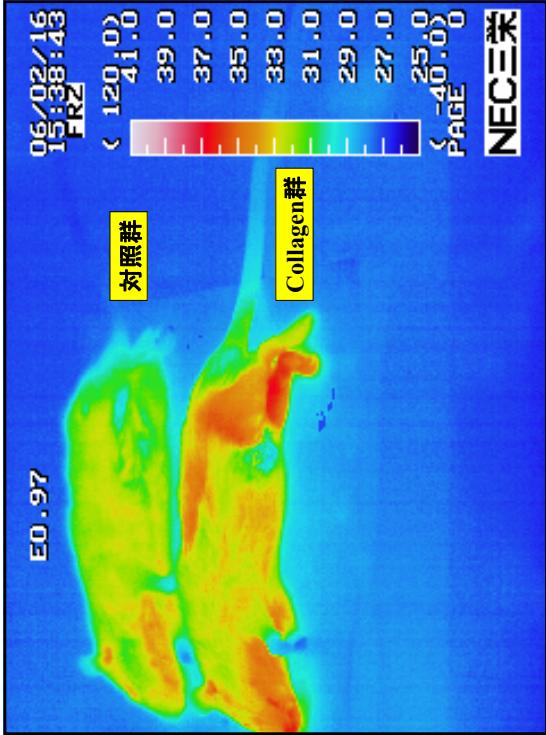
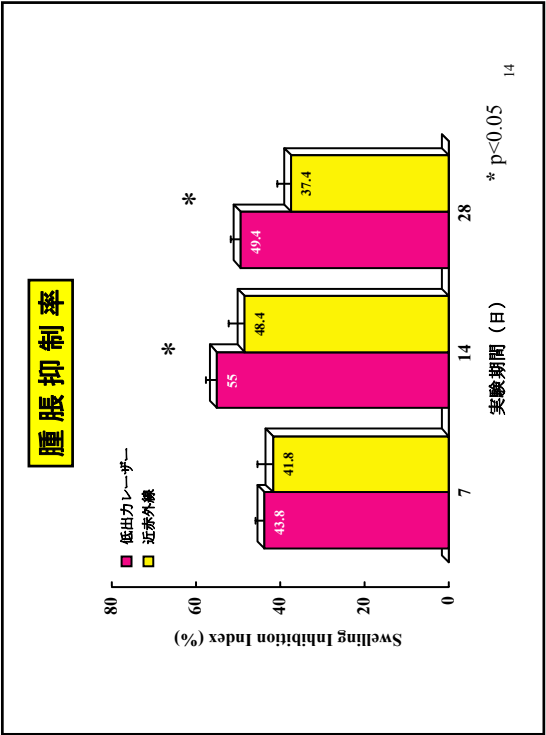
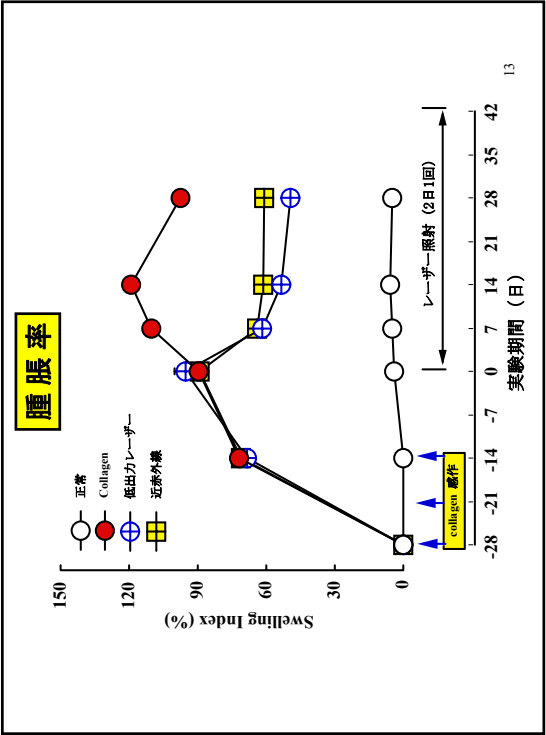
測定項目

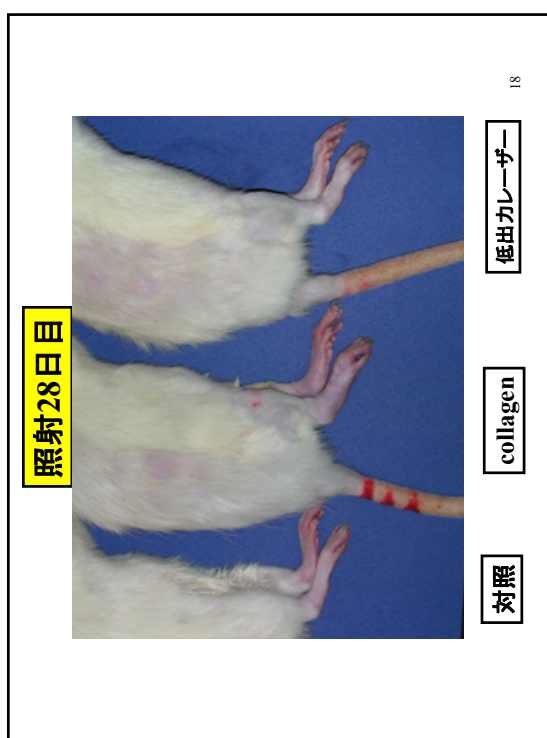
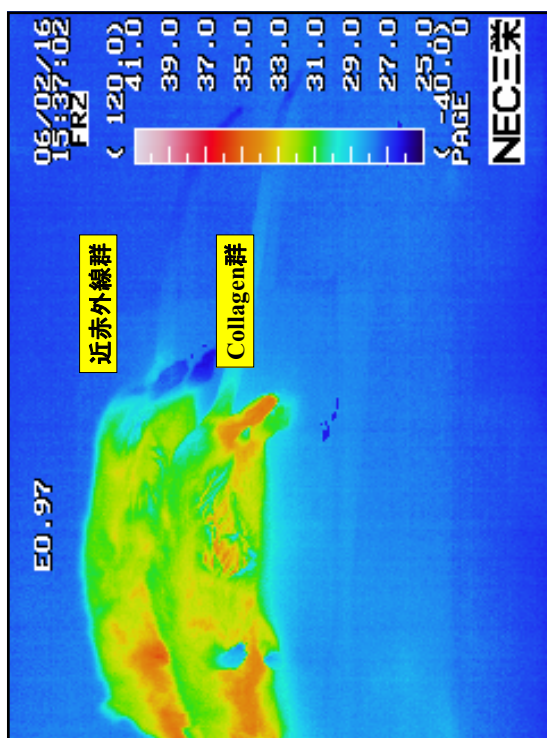
- (1) 足跡 関節の腫脹
- (2) 血液検査: IL-1 β 、PGE $_2$ 、MMP-3、IL-8、CRP
- (3) 病理組織学的観察:
足跡、膝関節の骨吸収および軟骨組織内に生成されるサイトカイン
- (4) 骨の観察:
軟エックス線およびマイクロCTによる骨吸収の観察

足跡腫脹の測定方法



12





結論

低出力レーザーおよび近赤外線照射は、II型コラーゲン関節炎ラットの後肢の腫脹を有意に抑制した。

従って、レーザー波長の可変可能な自由電子レーザーの治療効果が期待できる。



機能ゲノム科学応用による
光照射生物学的効果の機序解明

日本大学松戸歯学部 生化学・分子生物学講座
柴田 恭子、安孫子宣光

1

レーザーの歯科応用について

外科的応用
切開・切除・凝固

光治療
(レーザー治療)

疼痛緩和
口内炎・知覚過敏
顎関節症の疼痛・
矯正時の痛み

硬組織
歯の切削

軟組織
ポケット内照射・
歯石除去・メラニン

2

疼痛緩和
口内炎・知覚過敏
顎関節症の疼痛・
矯正時の痛み

研究目的
レーザー治療の機序解明
メカニズムが不明な点が多い

レーザーの生理作用
レーザーの作用機序

解明

実証科学的に発展させることが必要

レーザー治療の推進

3

実験計画

- リウマチ由来の細胞を使った系で、IL-1βによって引き起こされる現象は、レーザー照射によって抑制されるか？
- レーザー照射による効果とDexの効果に違いはあるのか？

---Microarrayによる解析---

4

リウマチについて

骨

軟骨

関節滑膜

実験医学vol.23 山本一彦先生

5

サイトカインネットワーク

マクロファージ様滑膜細胞

線維芽細胞様滑膜細胞

実験医学vol.23 山本一彦先生

6

In vitro実験

MHTA cell

(From Dr. Miyazawa K.)

リウマチ患者関節滑膜細胞由来

線維芽細胞様細胞株

An immortalized theratoid fibroblast-like synovocyte line, MHTA was established by stably transfecting FLS cells with SV40 T antigen gene.

MHTA cells were stained positively for IL-1R, ICAM-1, CD16, CD40, CD80, and CD95. IL-1b enhanced the production of IL-6, stromelysin-1, and surface expression of ICAM-1, in a manner similar to that in the parental fibroblast-like synovocyte.

Miyazawa K., et al., J. Biochem. 124, 1153-1162, (1998)

IL-1

線維芽細胞様滑膜細胞

実験医学vol.23 山本一彦先生

7

Effects of IL-1 β on MHTA cells

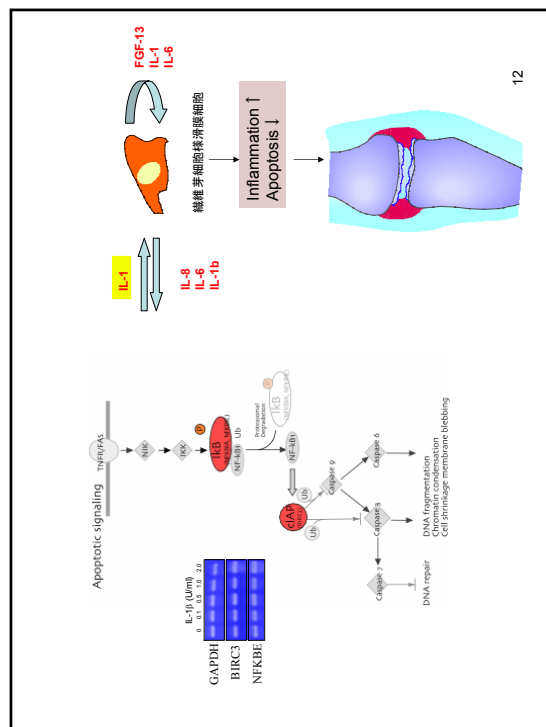
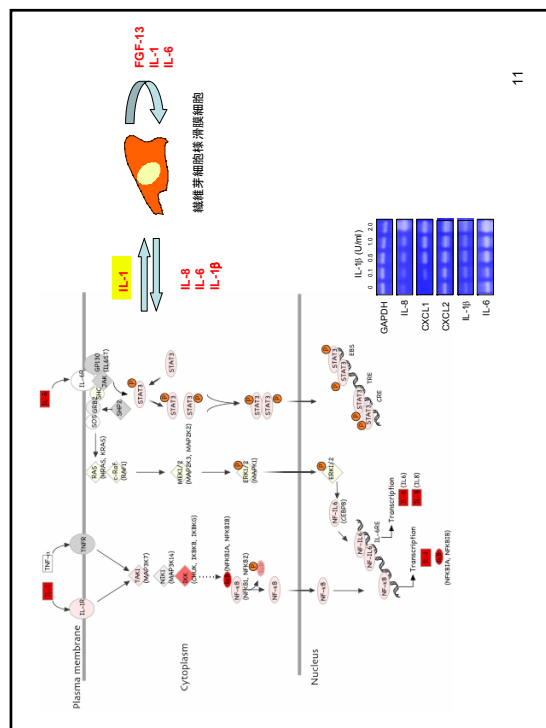
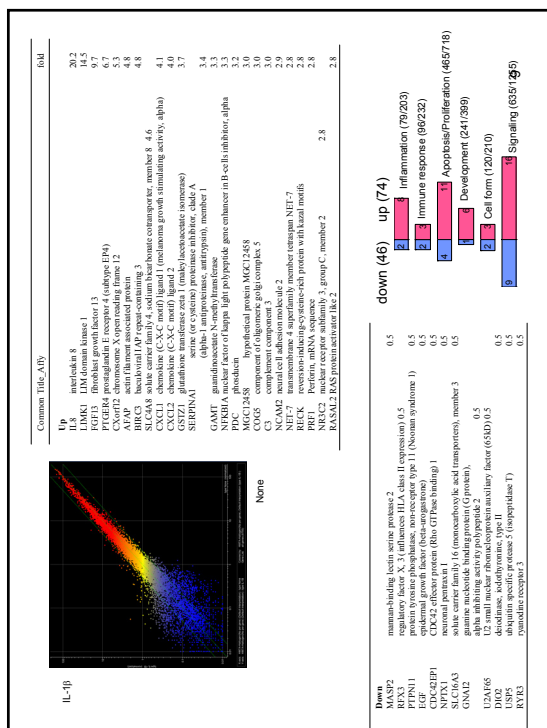
Microarray

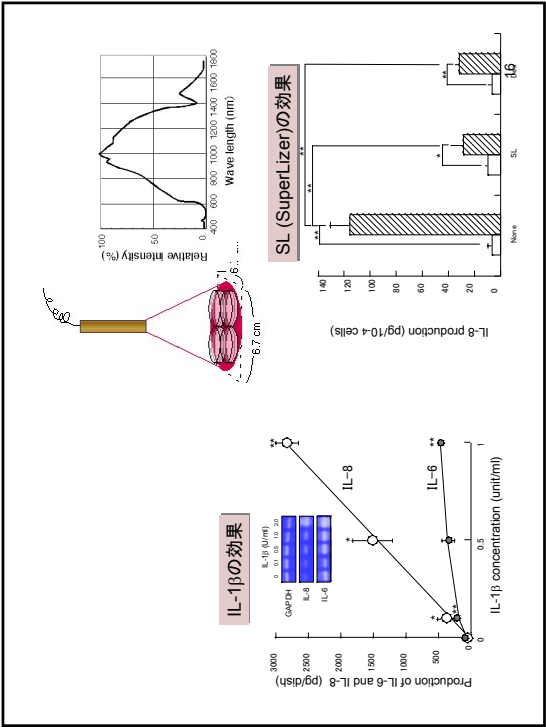
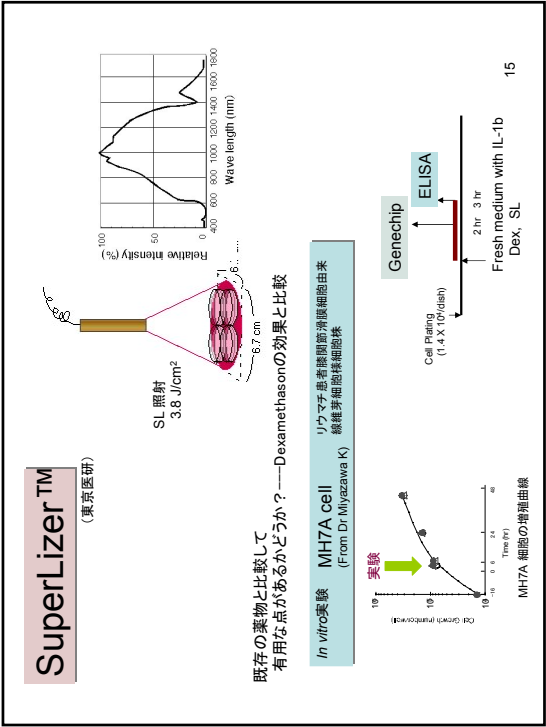
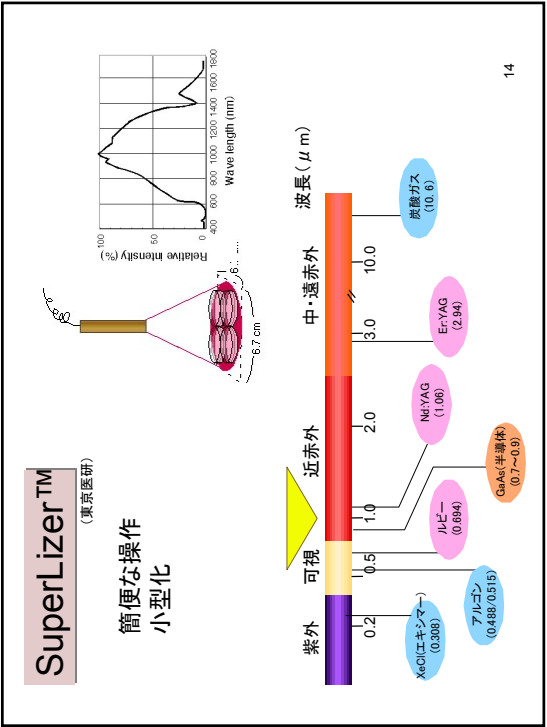
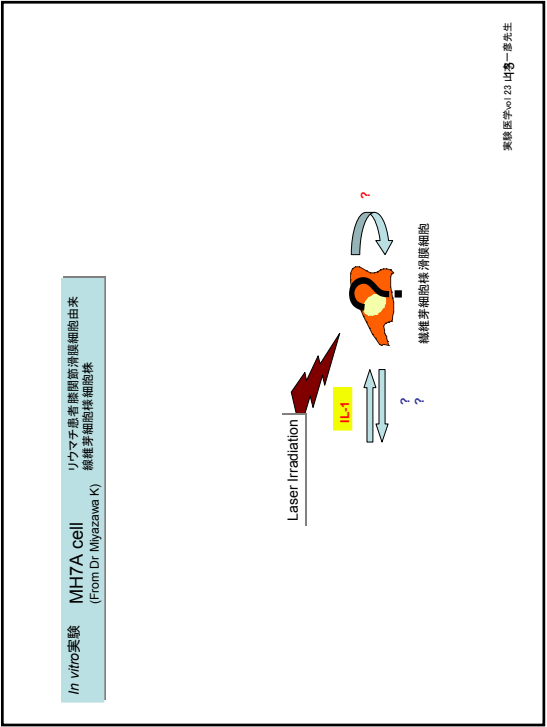
細胞 MHTA, human synovial cell line (Cell Bank, Rhein Bioresearch Center), 作用 IL-1 β (0.1 unit/ml), 2 hr, n=4

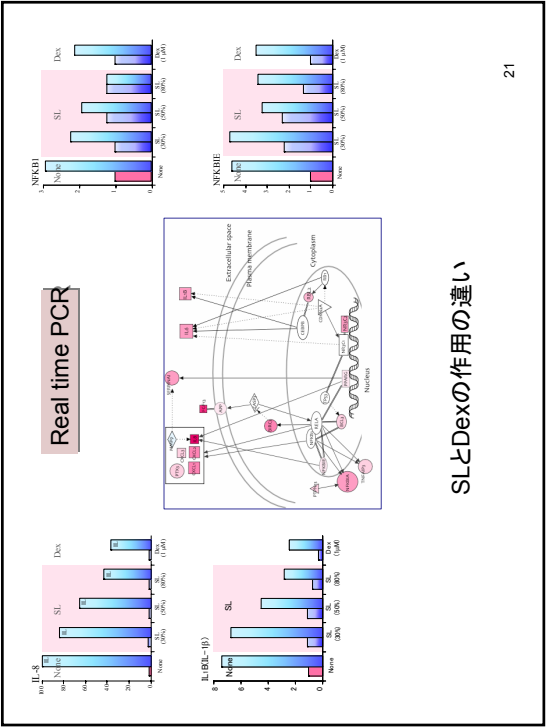
GeneChip: Affymetrix HG 8.500

実験医学vol.23 山本一彦先生

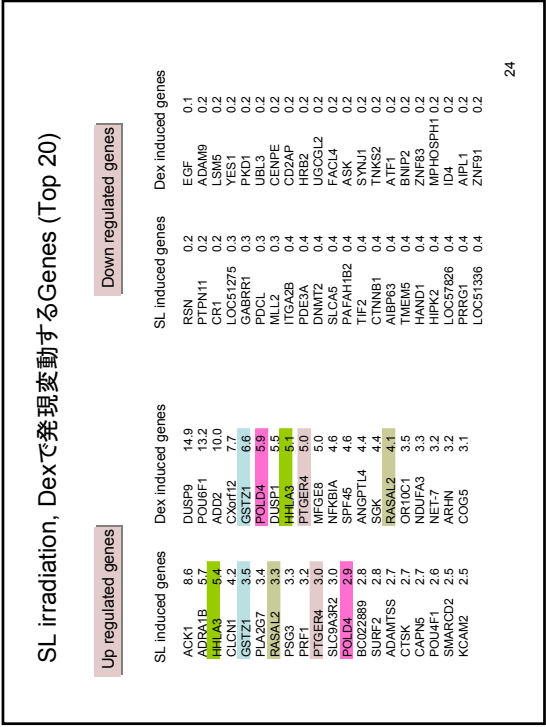
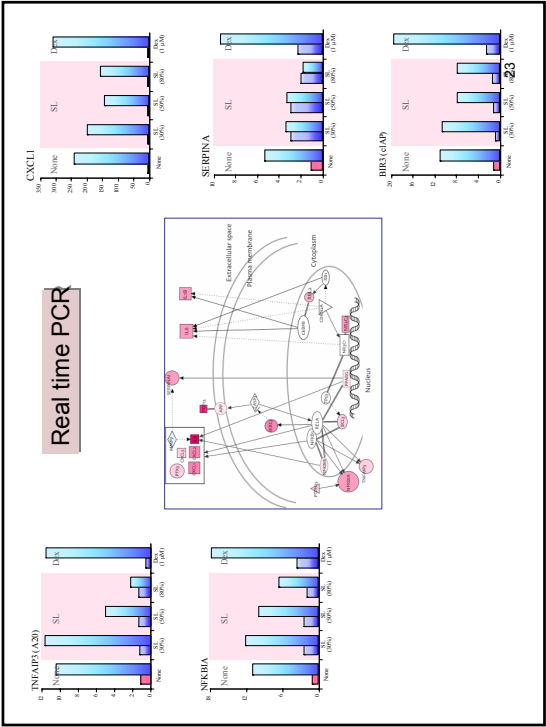
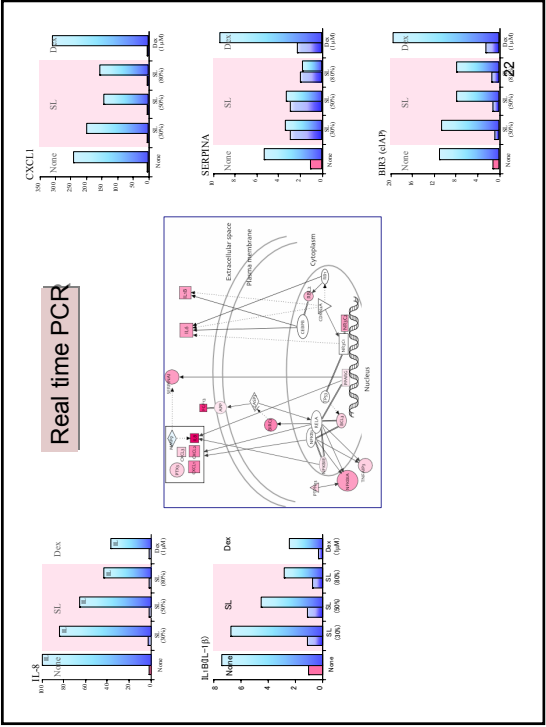
8







21



24

-結論-

- リウマチ由来の細胞を使った系で、IL-1 β によって、NF κ Bシグナル系に関わる遺伝子発現が増大し、結果として炎症性サイトカインの発現が増大した。
- アポトーシスを抑制する遺伝子発現が増大しており、結果として、関節滑膜細胞の増殖が進むと示唆された。
- これらの遺伝子発現の一部は、レーザー照射によって抑制された。
- Dexとは異なり、レーザー照射による抗炎症作用、抗増殖作用は、選択的に作用している傾向がみられた。

レーザーアブレーションによる 光機能性膜の開発と新装置試作研究

文理学部 望月研究室
石渡謙一郎, 望月章介, 飯野晃弘

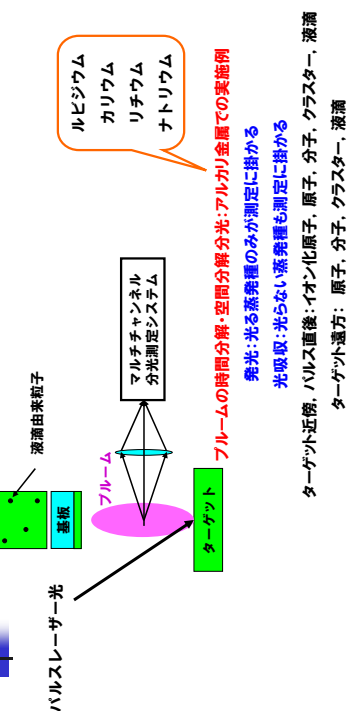
1

越世尔

今年度は学術フロンティア推進事業(継続)よりの研究経費配分より当研究室では以下の事を行った。

- ① これまでに我々は Nd^{3+} -YAGレーザーの第3高調波355nmを用いてアルカリ金属のレーザアブレーションとブルームの分光をとおしてクラスター・微粒子の成長過程
- ② 光機能性(フォトメモリー性)を有した酸化物ナノ粒子膜の作製を研究してきた。
 - (1) マイクロ波アシストドレーザアブレーション装置の試作
 - (2) レーザアブレーションによる SrTiO_3 の薄膜の作製と物性測定
種々の方法で SrTiO_3 薄膜を作製し、異常な光吸収端のブルーシフト現象を解明するとともに、薄膜固有の単結晶の光誘起効果と光・電子機能を探索する
 - (3) レーザアブレーションによる Eu_2O_3 ナノ粒子膜の作製とフォトメモリー現象

これまでのアルカリ金属のレーザーアブレーションで判ったこと



酸化物では雰囲気調整または生膜後のアニール処理が必要

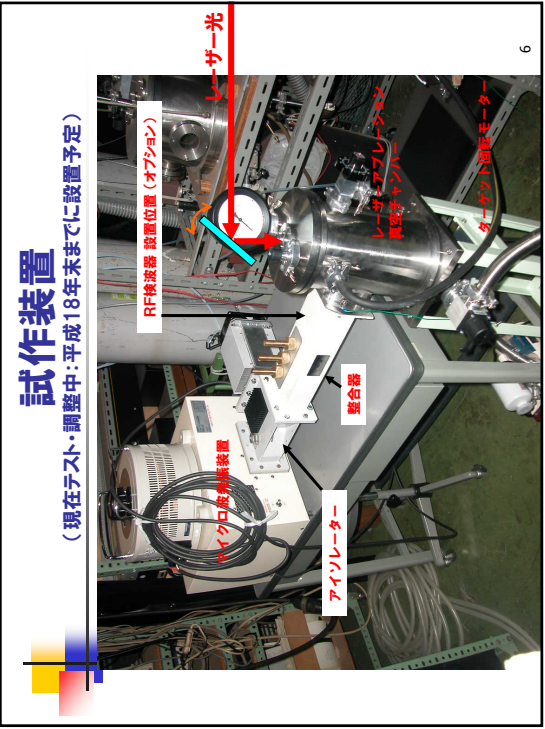
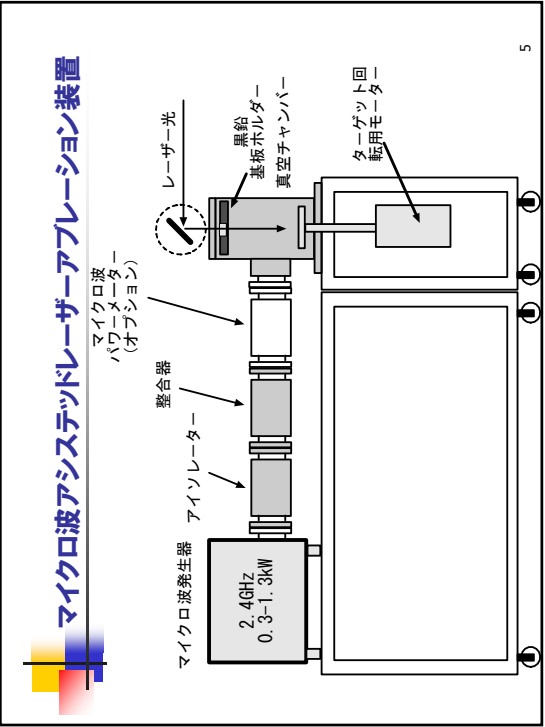
＊低温基板：アモルファス成長

3

(1) マイクロ波アシストドライザーアプリケーション装置の試作研究

- レーザーアプレーション中のマイクロ波及びプラズマ照射効果
- プラズマ元素との化合物化
- 酸素欠陥生成による発光化（例：青色発光化）
- 酸化物結晶の希ガスマイクロ波プラズマ照射による新発光体の探索
- 酸化物結晶の酸素マイクロ波プラズマ照射による改質
- 酸素欠陥の消滅に伴う完全結晶化
- 高品質の結晶が望まれる。

4



(2) レーザーアブレーションによるSrTiO₃の薄膜の作製と物性測定

as-grown SrTiO₃単結晶をターゲットに用いて、真空中でのレーザーアブレーション法により**高温 (400℃)**、**室温**の石英ガラス、金コート石英ガラス、サファイア基板上に成膜。

→ as-deposited膜、空气中873Kでアニールした膜の測定

- X線回折
- 光吸収
- フォトルミネッセンス (PL)
- SEMによる膜の形態

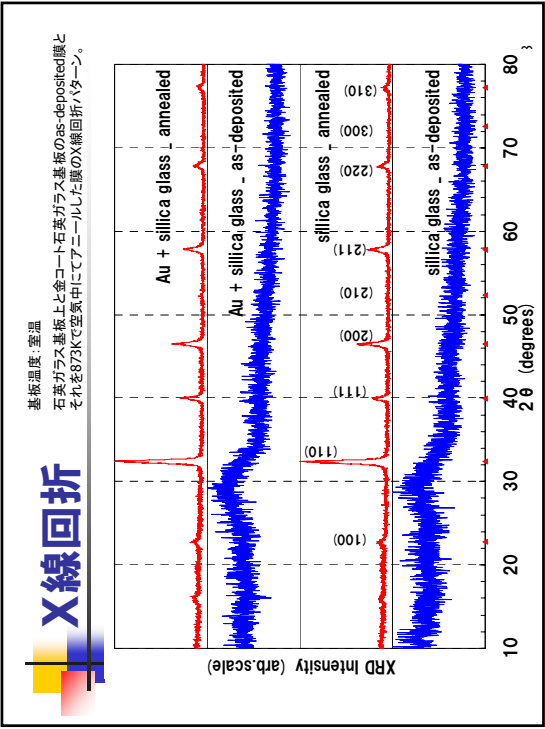
heated substrate

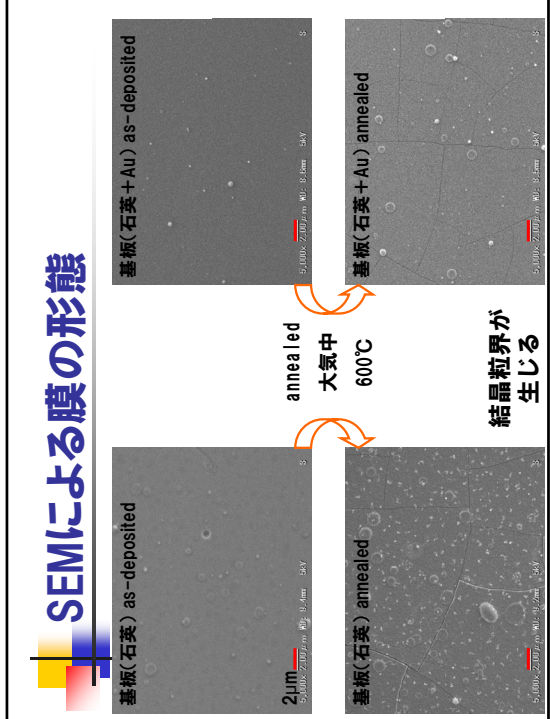
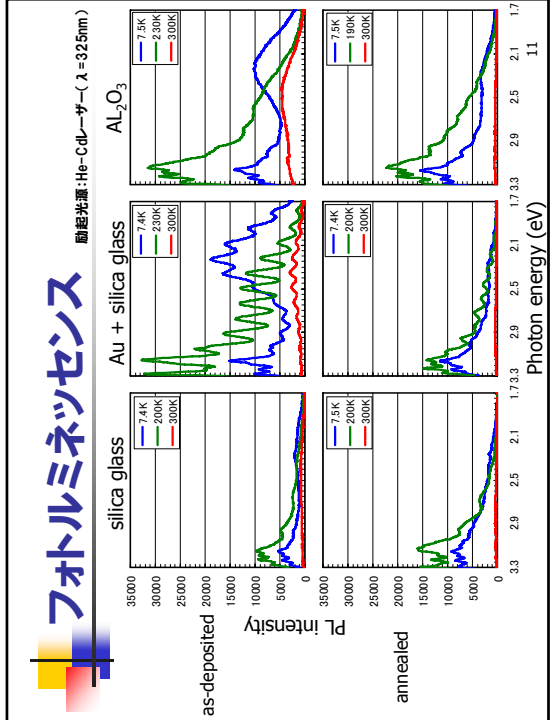
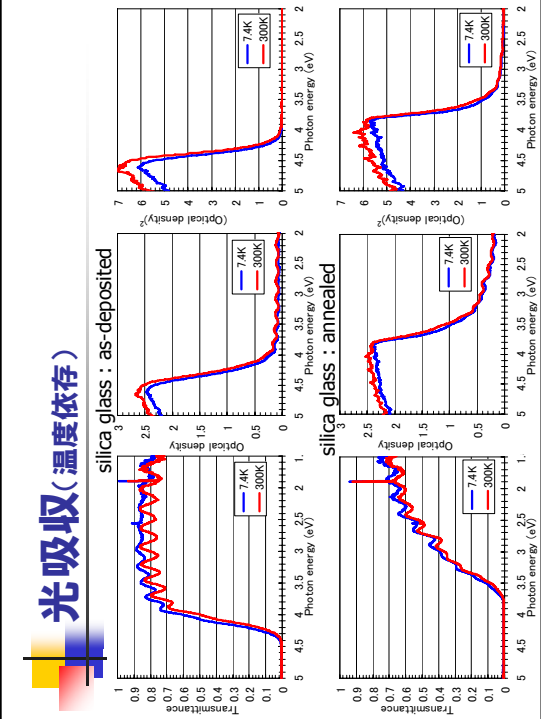
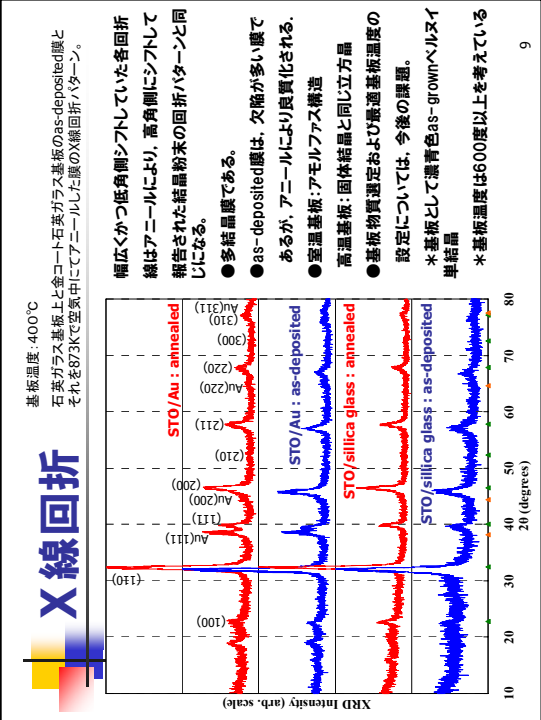
plume

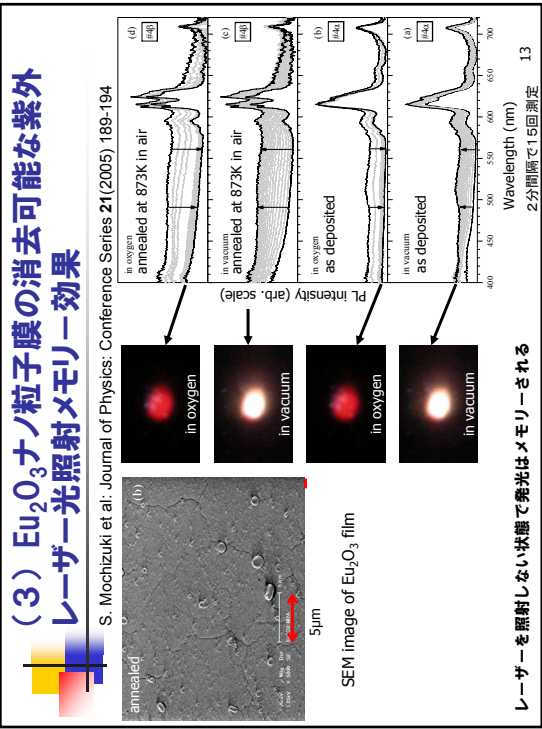
as-grown STO

Nd³⁺: YAG laser

Pulsed 355 nm laser light







レーザーを照射しない状態で発光はメモリーされる

2分間隔で15回測定

13



まとめ

マイクロ波アシストレーザーアブレーション装置

文理学部 望月研究室 テスト調整
平成18年末までにLEBRAに設置
0.8~3μm のFELでレーザーアブレーション
24時間運転

14

レーザー光・X線による誘電体の物性制御

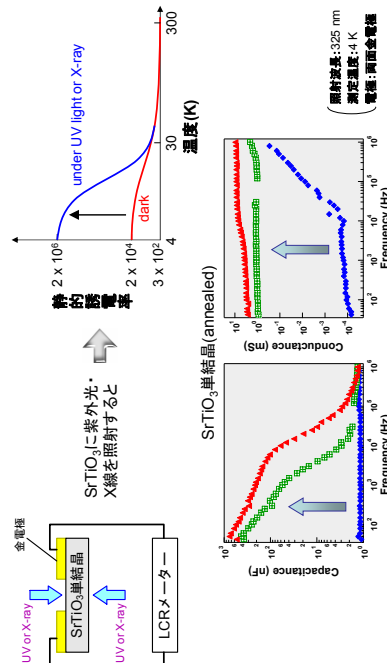
光機能性物質SrTiO₃と
高イオン導電体AgI-SrTiO₃の物性研究

～紫外レーザー光・X線誘起誘電率増大現象～

藤代 史
(総合基礎科学研究科DC3)
芝田 浩平
(文理学部4年・総合基礎科学研究科進学予定)

TMU

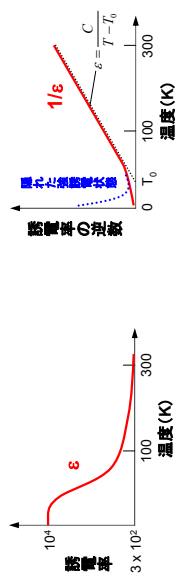
SrTiO₃の興味深い物性：光で誘起される誘電率増大現象



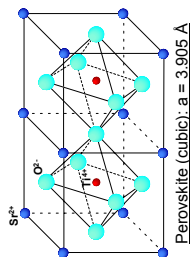
常誘電状態と強誘電状態の臨界状態にあるSrTiO₃結晶に、紫外線による外励起電子励起や、X線による内励起電子励起でマイクロな強誘電相的ドメインを形成する！

TMU

チタン酸ストロンチウム(SrTiO₃)の興味深い物性：量子常誘電性



強誘電相転移することなく常誘電体のままで、数万以上に達する(<10K)。



TiO₆八面体の中心にあるTi⁴⁺イオンは、中心とこれより僅かにずれた位置の間を揺らいでいる？



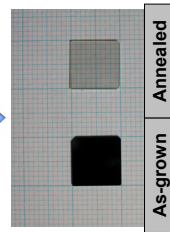
低温のSrTiO₃は外場による僅かな揺動で強誘電相転移するのではないか？

TMU

ペルヌイ法により育成されるSrTiO₃単結晶

従来の研究では、ペルヌイ法により育成された**濃青色 as-grown 単結晶**原石を適当な還元雰囲気中でアニールして無色透明化した結晶 (annealed 単結晶) が用いられてきた。

Ar+H₂ガス雰囲気中で還元処理すると



しかし、無色透明結晶には as-grown 結晶特有の欠陥(酸素欠損など)がその現象を複雑にしている可能性がある！

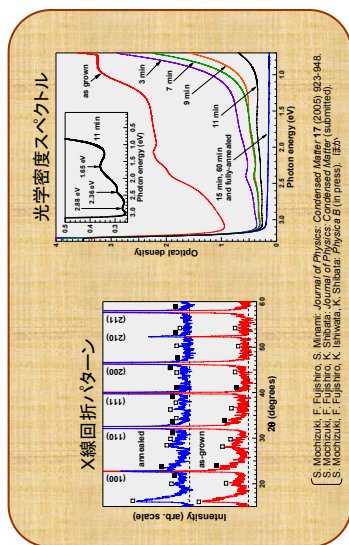


ペルヌイ法により育成された SrTiO₃ 単結晶の原石

as-grown からアニール処理をしていく段階を系統的に調べる必要がある！

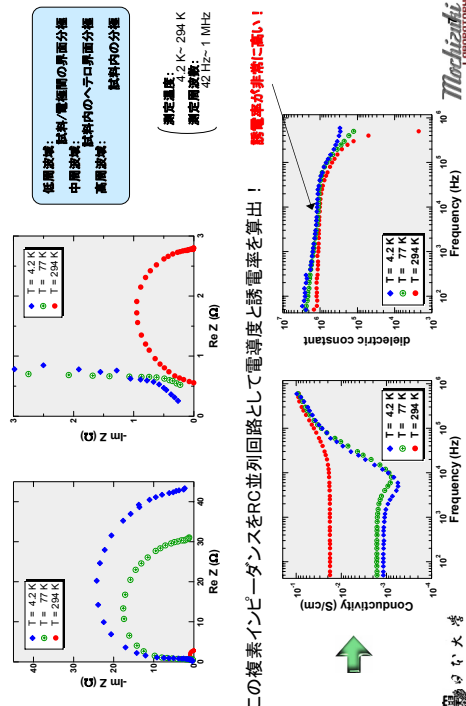
TMU

as-grown単結晶から無色透明結晶に至る過程の物性を調べると...



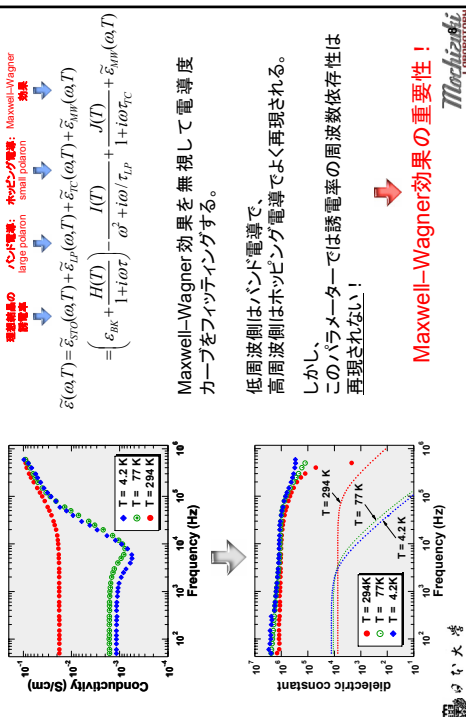
XX線回折パターン、光吸収構造はアニールで不変！
結晶の色の变化、光スペクトルの变化はギャップ内準位構造の変化が原因！

as-grown単結晶の誘電特性: 複素インピーダンス測定



この複素インピーダンスをRC並列回路として電導度と誘電率を算出！

as-grown単結晶の誘電特性:複素電導度、複素誘電率



Maxwell-Wagner 効果を無視して電導度カーブをフィッティングする。

低周波側はバンド電導で、
高周波側はホッピング電導でよく再現される。
しかし、
このパラメーターでは誘電率の周波数依存性
再現されない！

Maxwell-Wagner効果の重要性！

as-grown 単結晶の履歴曲線

$V_1 = V_2 + V_{c1} + V_{c2}$
 $V_2 = V_{\text{sample}}$
 Sawyer-Tower 回路

as-grown 単結晶は温度を下げると、強誘電性物質に特有な hysteresis loops を示すようになる。

強誘電相的ドメインが存在する！

Induced voltage (V)
 Applied voltage (V)
 $T = 284 \text{ K}$
 $T = 77 \text{ K}$
 $T = 4.2 \text{ K}$

大塚 淳

Machizumi
 UNIVERSITY OF TSUKUBA

as-grown 単結晶での
光誘起励起電率増大現象は...

[illegible]

SrTiO₃単結晶の酸素欠損と誘電的性質

10⁻² S/cm以上の電導率を示すas-grown SrTiO₃結晶の強誘電状態の発現機構は？

X線回折パターン、光吸収端構造、フオトルミネッセンススペクトル等には透明結晶 (annealed)と異なる構造は見られない。

酸素欠損などのミクロな構造が原因？

Point defect: $V_O^{\bullet\bullet} + 2e^-$

Complex defect: $Ti^{3+} + V_O^{\bullet\bullet} + Ti^{3+}$

酸素欠損はTiO₆八面体を歪ませる

永久双極子の発生！

 Machizumi
LABORATORY

 東京大学

SrTiO₃単結晶の酸素欠損と誘電的性質

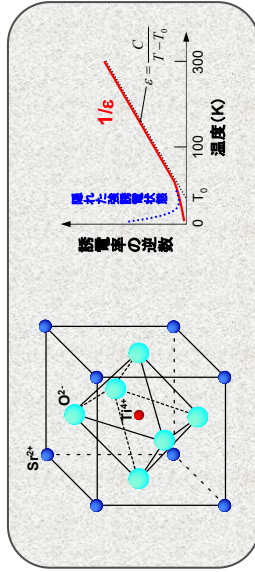
●酸素欠損の程度が小さいと (→annealed単結晶的)

永久双極子の希薄分散状態でマクロな強誘電状態に至らないが、紫外光励起下でのキャリアー捕獲により、ミクロな強誘電的ドメインを形成する！

●酸素欠損の程度を大きくすると (→as-grown単結晶的)

ミクロな強誘電的ドメインの形成、高電導・強誘電状態の発現！

光による誘電体の物性制御



- 波長可変X線で波長依存性、パワー依存性を調べ誘電体の物性制御！
 - 赤外レーザー光で格子振動を選択的に励起して強誘電状態を実現する！
- などなど...

LEBRAにおける
生命科学系利用者に対する
研究環境の整備状況

桑田隆生、早川建、田中俊成、早川恭史、
境武志、野上杏子、佐藤勇
日本大学電子線利用研究施設

1

LEBRA内 実験室の利用計画

○ 当時の計画
FEL利用研究
予備実験(FEL・PXR利用)
実験準備

2階

1階

加速器科学

物質科学

生命科学

予備実験・実験準備

LEBRA内 実験室の利用状況

○ 施設利用の現状
各実験室の専門化
共同利用可能な実験室
→ 利点・問題点

2階

1階

加速器科学

物質科学

生命科学

共通利用

LEBRAの研究環境

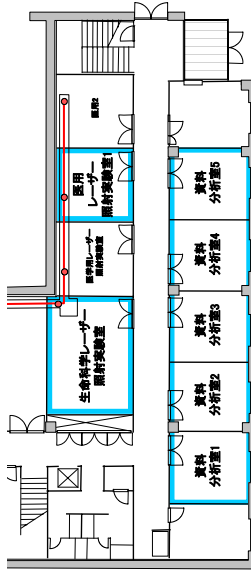
○ 利点
予備的研究が可能
共同利用可能な実験設備・機器
FEL利用研究の環境整備
↓ ↑
FEL利用研究の件数の増加

○ 問題点
研究環境についての情報不足
↓ ↑
新規参入の障害
↓ ↑
FEL利用のための研究環境の不備
→ 研究室の準備状況の報告

4

176

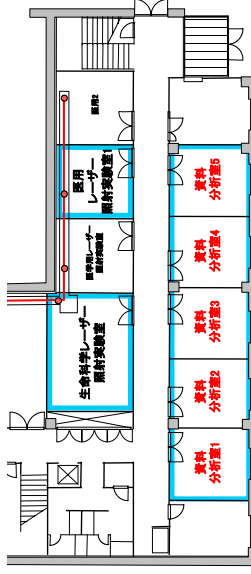
生命科学系利用者の研究環境



- ・資料分析室1～5
- ・医用レーザー照射実験室1
- ・生命科学レーザー照射実験室

5

生命科学系利用者の研究環境



- ・資料分析室1～5
- ・医用レーザー照射実験室1
- ・生命科学レーザー照射実験室

6

資料分析室1・4・5 ～X線回折装置～

資料分析室1



資料分析室5



様々なX線回折
実験が可能
→多くの研究
分野で活用

- ・粉末・薄膜・微小部X線回折装置

資料分析室4



- ・生体高分子X線回折装置
- ・動的散乱光測定装置
- ・凍結保存(LN₂)容器

蛋白質のX線結晶解析に関わる機器

資料分析室2 ～Cold Room ～



- ・コードルルーム(5℃設定)
- ・遠心分離機(～5,000rpm、遠沈管各種用)
- ・実体顕微鏡(50倍)
- ・スターラー



- ・グローブボックス
(N₂、O₂、CO₂ポンペ)
- ・恒温・恒湿器
- ・実体顕微鏡(～50倍・～115倍)

蛋白質結晶化に関わる機器
+ α



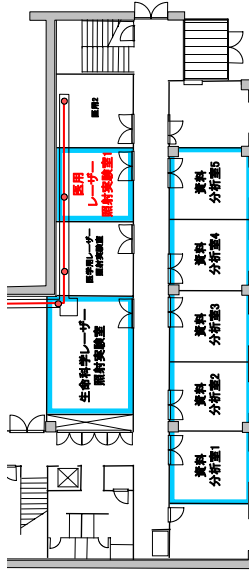
資料分析室3 ～実験準備室～



- ・薬品保冷库(4℃・-20℃) ・遠心機(6・9・12 x 1000rpm、エッペンチューブ用)
 - ・分光光度計 ・精密天秤 ・pHメーター ・乾燥機 ・ホモジナイザー
- 最も整備が進んでいる生命科学関係の実験準備室
→使用頻度が高い(生化学以外の実験)

9

生命科学系利用者の研究環境



- ・資料分析室1～5
- ・医用レーザー照射実験室1
- ・生命科学レーザー照射実験室

10

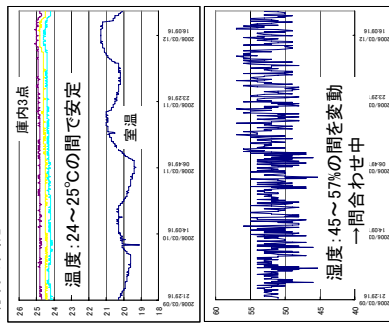
医用レーザー照射実験室1 ～動物飼育装置～

動物飼育装置



温度: 22-24℃、湿度: 50-60%
日照条件(室内電灯)制御可
自動給水装置
48ケース(マウス用ケージ)設置可

動作確認



11

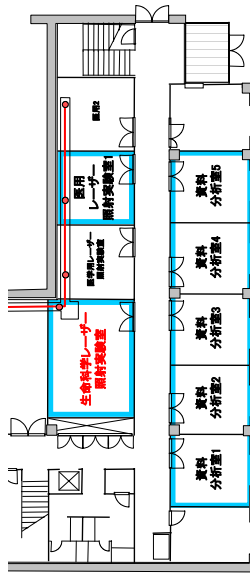
医用レーザー照射実験室1 ～動物飼育装置～

- 実験室内設備
- ・飼育装置
 - ・流し台(2層シンク)
 - ・光学台
 - ・実験台(120 x 80 x 70)
 - ・薬品棚(90 x 50 x 180)
 - 必要に応じて
- 消耗品
- ・ディスプレイケージ
 - * 床材、餌は無い

- 施設として対応しないこと
- ・実験動物の飼育
 - ・屍体処理
 - ・飼育ケースの廃棄

12

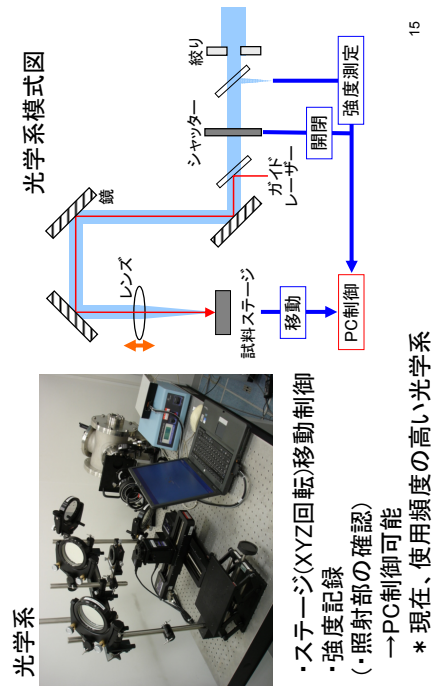
生命科学系利用者の研究環境



- ・資料分析室1～5
- ・医用レーザー照射実験室1
- ・生命科学レーザー照射実験室

13

生命科学レーザー照射実験室 ～自動ステージ用 光学系～



15

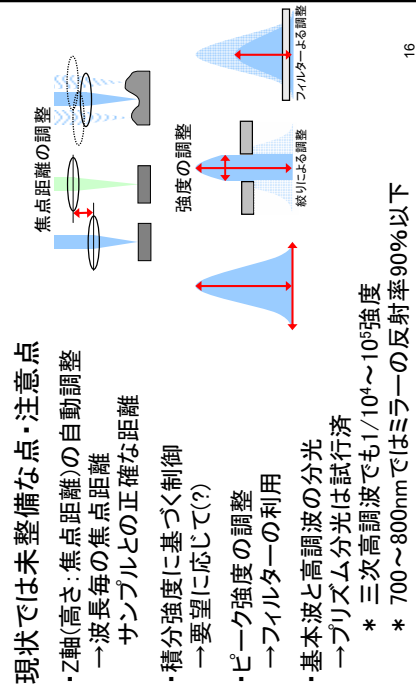
生命科学レーザー照射実験室 ～自動ステージ・グリーンベンチ用 光学系～



- ・自動ステージを用いた照射実験
- ・グリーンベンチ内での照射実験

14

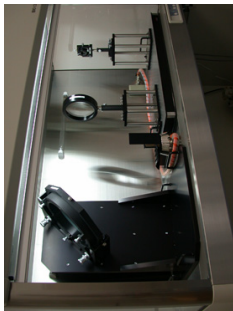
生命科学レーザー照射実験室 ～自動ステージ用 光学系～



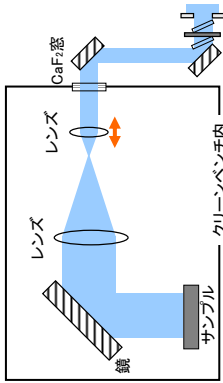
16

生命科学レーザー照射実験室 ～クリーンベンチ用 光学系～

光学系



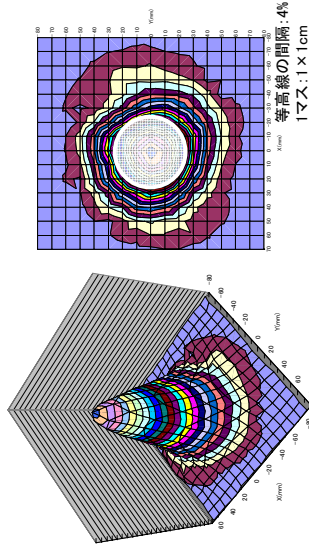
光学系模式図



- ・クリーンベンチ内へ平行光照射
- ・広い照射野

17

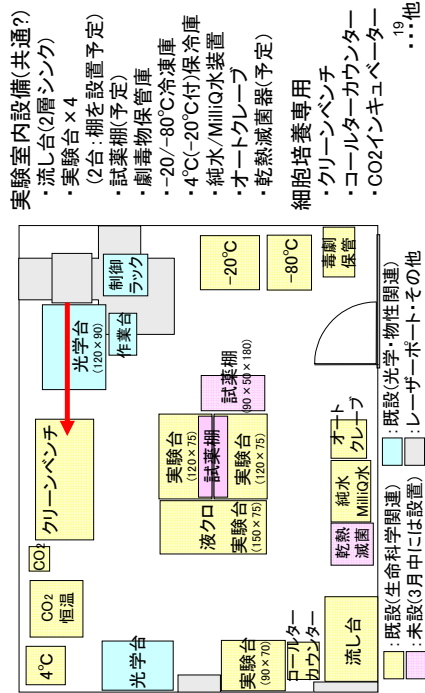
生命科学レーザー照射実験室 ～クリーンベンチ内 強度分布(波長2200nm)～



- ・白枠領域(直径約5cm): 50%～強度
 - ・Peak値(2.4cm角): 約0.35mJ
- 問題点・改善点は？

18

生命科学レーザー照射実験室 ～現状 機器・設備～



19

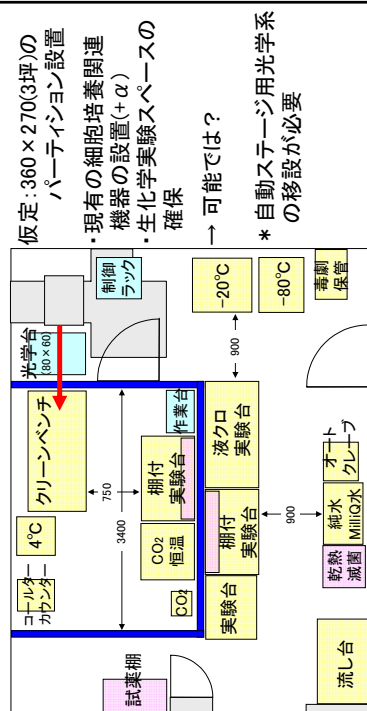
生命科学レーザー照射実験室 ～現状 機器・設備～



- ・様々な機器が雑然と配置
- 生化学的(細胞培養)実験が可能な状態？

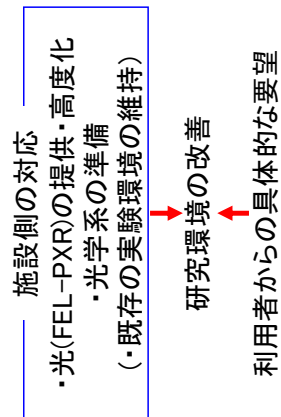
20

生命科学シ－ザ－照射実験室
～研究環境の改善(案)～



21

LEBRA研究環境の整備



22

LEBRA Linacにおける自動ビーム調整

日本大学大学院理工学研究科
中尾圭佐

1

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA)

- ◆ 1995年から電子線形加速器(Linac)建設開始
- ◆ 2001年5月に自由電子レーザー(FEL)の発振に成功
- ◆ 2003年10月にFEL利用実験開始
- ◆ 利用時間は100時間/月 (2005年)
- ◆ 長時間照射の要求

2

加速器の中心軌道

- ◆ 加速器の設計軌道として選ばれた軌道
- ◆ 加速器機器の設置誤差、残留磁場、地磁気などによる、電子ビーム軌道の影響を補正するために、ステアリングコイルが設置されている
- ◆ 中心軌道とのずれを測定するビーム位置モニタが設置されている
- ◆ 四極トリプレット(QT)の中心を通る軌道を、中心軌道とする

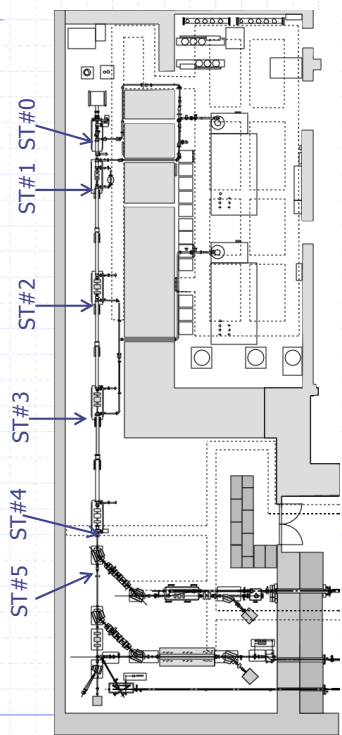
3

ステアリングコイル

- ◆ 電子ビーム軌道を調整するためのコイル
- ◆ 加速管及びバンチャーの側面に設置

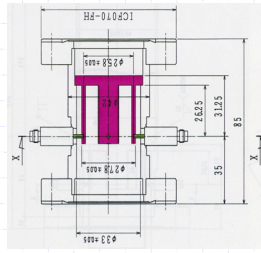
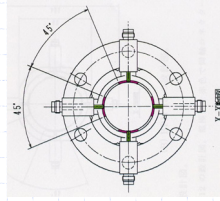


ステアリングコイル配置図

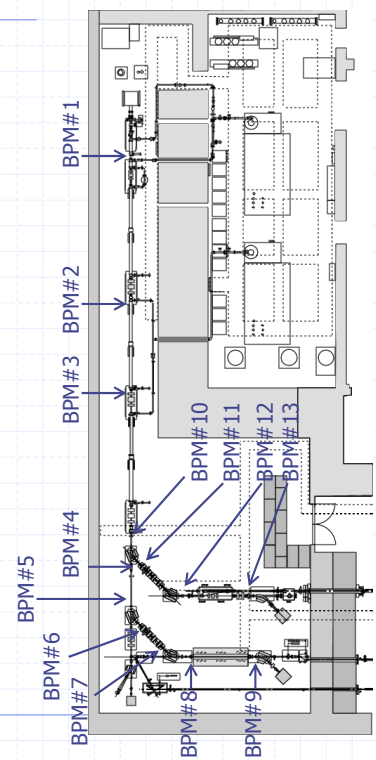


ビーム位置モニタ

- ◆ビーム位置モニタ(BPM)は電子ビームの
重心の位置を測定する計測器
- ◆電子ビームから生じる2856MHzのRFを検
出し位置を求める



BPM配置図

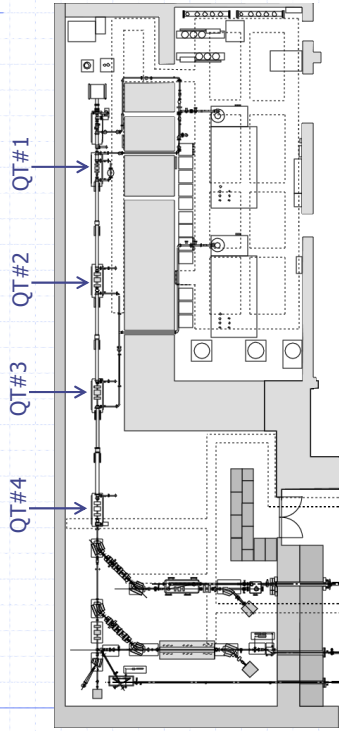


四極トリプレット

- ◆ 広がったビームを集束する電磁石
- ◆ 四極電磁石を3個等間隔に配置
- ◆ 水平、鉛直方向の集束が同時にできる



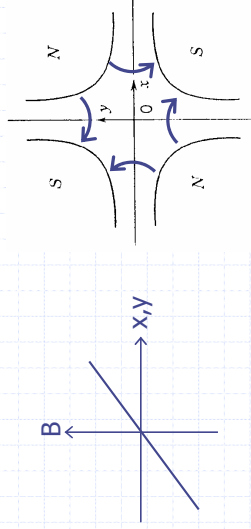
四極トリプレット配置図



9

四極電磁石(1)

- ◆ 勾配が一定の磁場を作る
- ◆ 中心の磁場は0
- ◆ x方向が集束であればy方向は発散
- ◆ y方向が集束であればx方向は発散



10

四極電磁石(2)

x方向集束の四極電磁石に、座標 (x_0, y_0)
x軸、y軸との傾き θ_0, φ_0 で入射した電子は

$$\begin{bmatrix} x \\ y \\ \theta \end{bmatrix} = \mathbf{F} \begin{bmatrix} x_0 \\ y_0 \\ \theta_0 \end{bmatrix} \quad \begin{bmatrix} y \\ \varphi \end{bmatrix} = \mathbf{D} \begin{bmatrix} y_0 \\ \varphi_0 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{F} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ F_c & 1 \end{bmatrix} \quad \mathbf{D} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ F_d & 1 \end{bmatrix}$$

$$F_c = -F_d = |g|e \frac{I}{E}$$

e: 素電化
g: 単位電流あたりの磁場の勾配
I: コイルに流す電流
E: ビームエネルギー

で書ける (x, y, θ, φ) に移動する。

11

四極トリプレットの転送行列(1)

LEBRAのLinacに設置されている四極トリプレットの配置はFDFなので、四極トリプレットの転送行列は

$$\begin{bmatrix} x \\ y \\ \theta \end{bmatrix} = \mathbf{FSDSF} \begin{bmatrix} x_0 \\ y_0 \\ \theta_0 \end{bmatrix} \quad \begin{bmatrix} y \\ \varphi \end{bmatrix} = \mathbf{DSFSD} \begin{bmatrix} y_0 \\ \varphi_0 \end{bmatrix}$$

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} 1 & s \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$$

となる。行列Sは長さsの自由空間の転送行列である。

12

四極トリプレットの転送行列(2)

$$x = \{1 + sF_d - F_c(2s + s^2F_d)\}x_0 + [2s + s^2F_d + L\{1 + sF_d - F_c(2s + s^2F_d)\}]\theta_0$$

$$y = \{1 - sF_c + F_d(2s - s^2F_c)\}y_0 + [2s - s^2F_c + L\{1 - sF_c + F_d(2s - s^2F_c)\}]\theta_0$$

Lebraの加速器に設置されている四極トリプレットは、FとDの四極電磁石の励磁電流を独立に制御できる。
どちらか一方に流す電流を変化させると

$$\Delta x = (ax_0 + b\theta_0)\Delta I$$

$$\Delta y = (cy_0 + d\theta_0)\Delta I$$

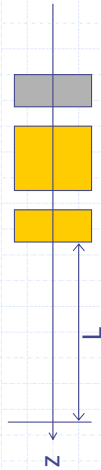
13

四極トリプレットの転送行列(3)

この四極トリプレットを通過後、自由空間をに進んだ位置でのビーム軌道は

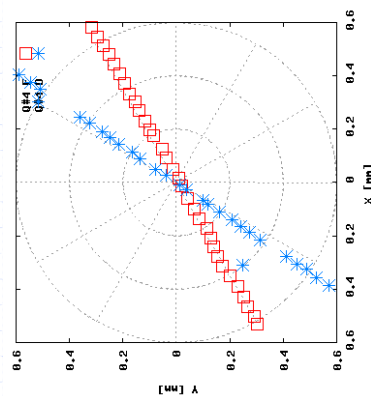
$$\begin{bmatrix} x \\ \theta \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \mathbf{FSDSF} \begin{bmatrix} x_0 \\ \theta_0 \end{bmatrix} \quad \begin{bmatrix} y \\ \varphi \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \mathbf{DSFSD} \begin{bmatrix} y_0 \\ \varphi_0 \end{bmatrix}$$

と書ける



14

四極電磁石の電流を変化させた時のビーム位置の変化
(ビームがトリプレットの中心を通っていない場合)



QT #4
L=4m

15

ビームをトリプレットの中心に通す理由

- ビームがトリプレットの中心を通っていないと
- ◆ビームの径を変化させると軌道が変化する
- ◆RF等の変動でビームエネルギーが変化する
と、軌道が変化する
- ◆Linacでは上流のビーム軌道の変化は、下流の軌道に影響する

FEL安定発振のためには、
ビームをトリプレットの中心に通す必要がある

16

加速器中心軌道探索プログラム

- ◆ 加速器の中心軌道を、Linacに設置されている全ての四極トリプレットの中心を通る軌道とする
- ◆ 加速器の中心軌道軌道を探索、BPMを較正するプログラムを開発した

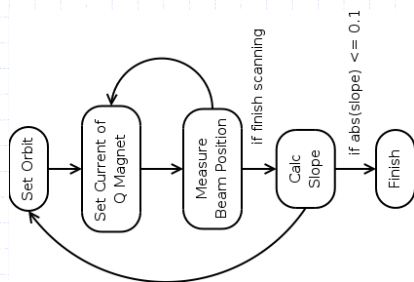
17

トリプレット中心探索の処理

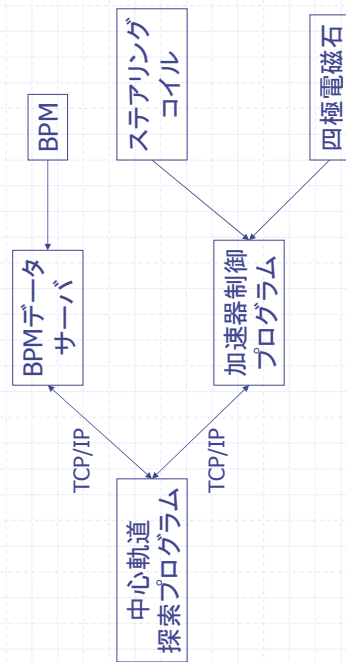
トリプレットの四極電磁石の励磁電流と、ビーム位置の変化の関係をを用いる

$$\Delta x = (ax_0 + b\theta_0)\Delta I$$

$$\Delta y = (cy_0 + d\phi_0)\Delta I$$

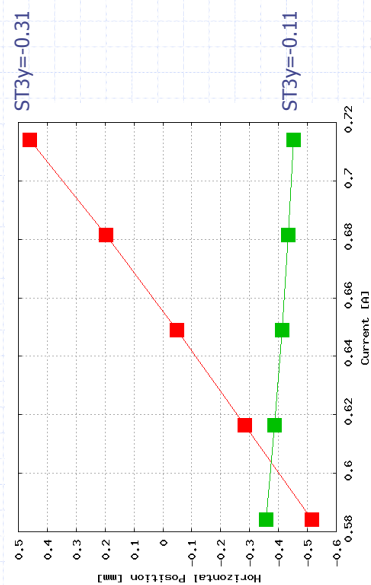


システム構成図



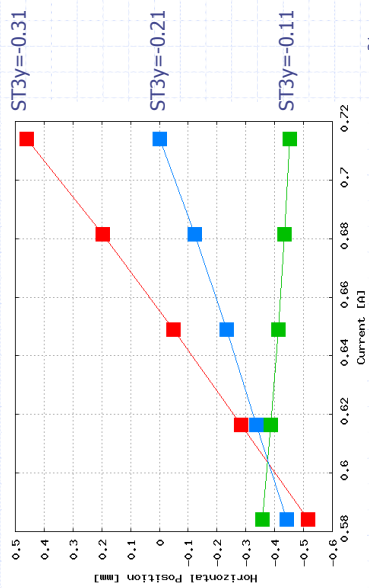
19

四極電磁石の励磁電流とビーム位置の関係



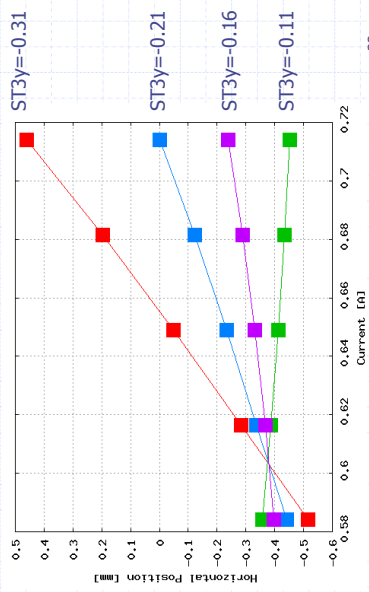
20

四極電磁石の励磁電流とビーム位置の関係



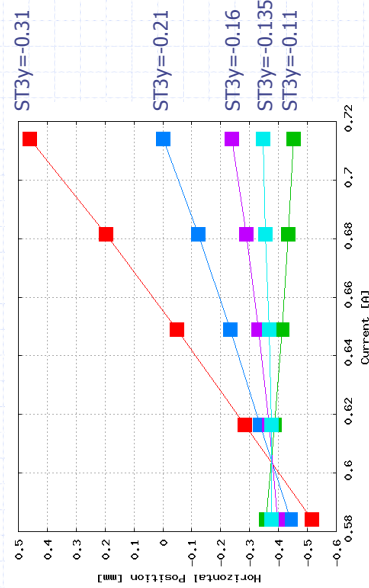
21

四極電磁石の励磁電流とビーム位置の関係

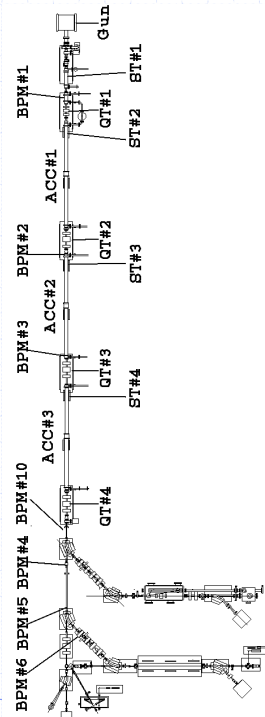


22

四極電磁石の励磁電流とビーム位置の関係

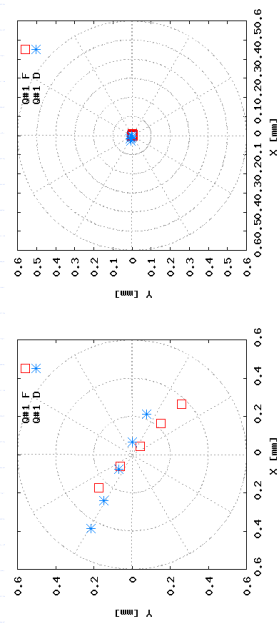


23



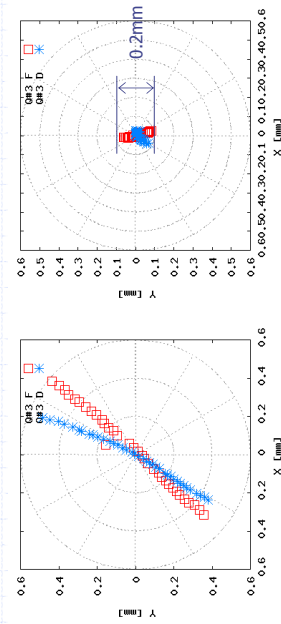
24

四極電磁石の電流を変化させた時のビーム位置の変化 (QT#1)



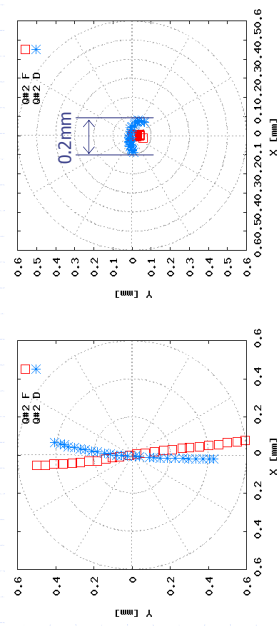
25

四極電磁石の電流を変化させた時のビーム位置の変化 (QT#3)



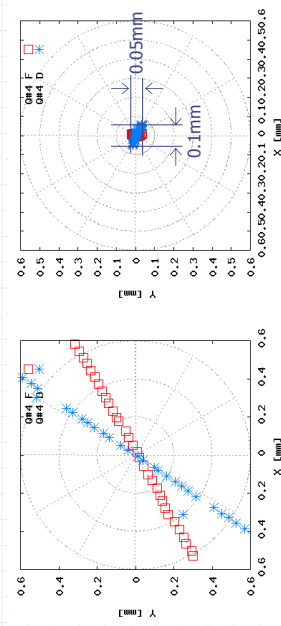
27

四極電磁石の電流を変化させた時のビーム位置の変化 (QT#2)



26

四極電磁石の電流を変化させた時のビーム位置の変化 (QT#4)



28

中心軌道自動探索プログラムの精度

◆ 加速管のディスクの内 $\Delta x = (ax_0 + b\theta_0)\Delta I$
径は20mm

$\Delta y = (cy_0 + d\phi_0)\Delta I$

◆ 加速管の長さは4m

◆ ビーム軌道がとらえる
角度は最大0.3mrad

◆ 誤差の最大値は
70um

$$\varepsilon_x = \frac{b}{a}\theta_0$$

$$\varepsilon_y = \frac{d}{c}\phi_0$$

29

中心軌道探索プログラムの評価

◆ アンジュレータ入り口でのビーム位置の変化
■ QT#4の四極電磁石の励磁電流を±10%変化させた
場合 → 0.2mm

◆ 目標

■ アンジュレータに入射する電子ビーム軌道のずれ
< 0.4mm

◆ ビーム軌道に関する目標を達成した

30

31