

文部科学省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

研究代表者 日本大学量子科学研究所所長 小嶋 勝衛

総合研究成果発表会報文集

平成17年3月11日～12日

日本大学量子科学研究所 電子線利用研究施設

量子科学研究所 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」

総合研究成果発表会プログラム (2005.3.5 修正)

3月	時刻	内容
11日 (金)	10:00~10:10	開会挨拶 (研究代表者)
	10:10~10:40	総括講演
	10:40~11:20	口頭講演: 施設報告 (O1-1~2) [コーヒープレーク (15分)]
	11:35~12:15	口頭講演: 施設報告 FEL (O1-3~4)
		昼食
	13:40~14:20	口頭講演: レーザー利用(生命) (O1-5~6)
	14:20~15:10	招待講演 浜口宏夫(東大:教授) 「時間と空間を分解した振動分光学: 分子から生細胞, 人体組織まで」 [コーヒープレーク (10分)]
	15:20~16:20	ポスターセッション (P1-1~16)
16:20~17:20	口頭講演: レーザー利用(物性) (O1-7~9)	
18:00~19:30	懇親会	
12日 (土)	10:00~11:20	口頭講演: X線利用(生命) (O2-1~4) [コーヒープレーク (15分)]
	11:35~12:25	特別講演 R. Z. LeGeros(ニューヨーク大:教授) 「Calcium Phosphates in Biological and Synthetic Systems」
		昼食
	13:40~14:20	口頭講演: X線利用(物性) (O2-5~6)
	14:20~15:10	特別講演 中井 泉(東京理科大:教授) 放射光で住みよい環境をつくる: 「科学捜査から重金属蓄積 植物による環境浄化機構の解明まで」 [コーヒープレーク (10分)]
	15:20~16:20	ポスターセッション (P2-1~20)
16:20~17:00	口頭講演: PXR 報告・利用 (O2-7~8) 閉会の辞	

総合研究成果発表会・講演一覧

***** 招待講演 *****

3月11日 14:20~15:10

時間と空間を分解した振動分光学:分子から生細胞、人体まで

浜口 宏夫

(東大院理)

***** 特別講演 *****

3月12日 11:35~12:25

Calcium Phosphates in Biological and Synthetic Systems

R. Z. LeGeros

(ニューヨーク大歯)

3月12日 14:20~15:10

放射光で住みよい環境をつくる:「科学捜査から重金属蓄積植物による環境浄化機構の解明まで」

中井 泉

(東理大理応用科学)

***** 総括講演 *****

3月11日 10:10~10:40

学術フロンティア推進事業と電子線利用研究施設進展の総括

佐藤 勇, 電子線利用研究グループ

(日大量科研)

***** 一般講演(口頭発表) *****

3月11日(金)-----

10:40~11:20

(O1-1) 加速器の稼働状況と共同利用の進展

田中俊成¹, 佐藤 勇¹, 早川 建¹, 早川恭史¹, 桑田隆生¹, 横山和枝¹, 森 啓¹, 野上杏子¹, 境 武志¹,
菅野浩一², 石渡謙一郎², 中尾圭佐², 福田茂樹³, 榎本収志³, 大沢 哲³, 諏訪田剛³, 古川和郎³,
道園真一郎³

(日大量科研¹, 日大院理工量子², KEK³)

(O1-2) クライストロン電源の安定化

早川 建¹, 田中俊成¹, 早川恭史¹, 佐藤 勇¹, 境 武志¹, 横山和枝², 中尾圭佐³

(日大量科研¹, KEK², 日大院理工量子³)

11:35~12:15

(O1-3) FELビームラインの現状とFELビームの特性

早川恭史¹, 佐藤 勇¹, 早川 建¹, 田中俊成¹, 桑田隆生¹, 森 啓¹, 野上杏子¹, 境武志¹,
石渡謙一郎², 中尾圭佐²

(日大量科研¹, 日大院理工量子²)

(O1-4) FEL供給ラインの現状とエキシマレーザの重畳

森 啓¹, 早川恭史¹, 田中俊成¹, 早川 建¹, 佐藤 勇¹, 桑田隆生¹, 野上杏子¹, 境武志¹, 中尾圭佐²

(日大量科研¹, 日大院理工量子²)

13:40~14:20

(O1-5) レーザー照射骨芽細胞の遺伝子発現プロファイリングと Ingenuity Pathway 解析

多田充裕, 安孫子宜光

(日大松戸歯)

(O1-6) 自由電子レーザーによる新しい尿路結石治療への試み

吉川哲夫¹, 松井 強¹, 吉田利夫¹, 滝本至得¹, 岡田清己¹, 佐藤 勇²

(日大医泌尿¹, 日大量科研²)

16:20~17:20

(O1-7) 酸化物の紫外レーザー光に誘起された価数変化・欠陥生成

藤代 史¹, 望月章介²

(日大院文理¹, 日大文理²)

(O1-8) フラーレンポリマーの創製

山本 寛, 岩田展幸, 石川貴之*, 橋本亮二*

(日大理工電子情報工, 日大院理工電子情報工*)

(O1-9) 自由電子レーザーアブレーション法による広バンドギャップ半導体の成膜

鈴木 薫

(日大理工電気工)

3 月 12 日(土) -----

10:00~11:20

(O2-1) 日本大学電子線利用研究施設における X 線回折装置の現状

桑田隆生¹, 佐藤 勇¹, 寒河江登志朗², 宍倉文夫³, 石川紘一⁴, 早川 建¹, 田中俊成¹, 早川恭史¹, 森 啓¹, 野上杏子¹, 境 武志¹

(日大量科研¹, 日大松戸歯², 日大医生物³, 日大医薬理⁴)

(O2-2) 分泌型 IgA 構成成分の構造解析

茂呂 周

(日大歯)

(O2-3) ヘモグロビンの構造解析と日大生体高分子研究グループ

宍倉文夫¹, 石川紘一², 奥 忠武³, 杉田博昭⁴, 高木 尚⁵, 後藤寿夫⁶

(日大医生物¹, 日大医薬理², 日大生物資源³, 筑波大生物⁴, 東北大院生命⁵, 徳島大総合科学自然システム⁶)

(O2-4) アカムシユスリカ・ヘモグロビン(TA-V, TA-VII)の構造解析

桑田隆生¹, 長谷川智一², 佐藤 秀³, 高木 尚³, 佐藤 勇¹, 石川紘一⁴, 宍倉文夫⁵

(日大量科研¹, リガクX線研², 東北大院生命³, 日大医薬理⁴, 日大医生物⁵)

13:40~14:20

(O2-5) In-situ法によるCuシースMgB₂超伝導線材の作製と特性評価

谷口 優, 赤尾 崇

(日大理工物理)

(O2-6) 陽極酸化法を用いた酸化亜鉛薄膜の作製と物性評価

青池将之

(日大理工物理)

16:20~17:00

(O2-7) パラメトリック X 線源の実用化と線源としての現状

早川恭史¹, 佐藤 勇¹ 早川 建¹, 田中俊成¹, 桑田隆生¹, 森 啓¹, 野上杏子¹, 境 武志¹,
石渡謙一郎², 中尾圭佐²

(日大量科研¹, 日大院理工量子²)

(O2-8) LEBRA-PXR の波長可変 X 線による恐竜の卵化石中の Sr の同定

寒河江登志朗¹, 早川恭史², 田中俊成², 早川 建², 森 啓², 桑田隆生², 野上杏子², 境 武志²,
佐藤 勇²

(日大松戸歯¹, 日大量科研²)

***** 一般講演(ポスター発表) *****

3 月 11 日(金) -----

15:20~16:20

(P1-1) FEL LINAC に於ける RF 系の改良によるビーム安定化

横山和枝

(KEK)

(P1-2) クライストロンの長パルス化

境 武志¹, 佐藤 勇¹, 福田茂樹², 道園真一郎², 早川 建¹, 田中俊成¹, 早川恭史¹, 石渡謙一郎³,
中尾圭佐³

(日大量科研¹, KEK², 日大院理工量子³)

(P1-3) 自由電子レーザー用マルチバンチ高周波電子銃のためのLaB₆光陰極の研究

菅野浩一¹, 佐藤 勇², 早川 建², 田中俊成², 早川恭史², 森 啓², 野上杏子², 境 武志¹,
石渡謙一郎¹, 中尾圭佐¹

(日大院理工量子¹, 日大量科研²)

(P1-4) 熱陰極電子銃の低エミッタンス化

菅野浩一¹, 佐藤 勇², 早川 建², 田中俊成², 早川恭史², 境 武志¹, 石渡謙一郎¹, 中尾圭佐¹

(日大院理工量子¹, 日大量科研²)

(P1-5) リニアック入射部の整備と改良

田中俊成, 佐藤 勇, 早川 建, 早川恭史, 横山和枝*, 桑田隆生, 野上杏子, 森 啓, 境 武志
(日大量科研, KEK*)

(P1-6) 自発放射自己増幅の観測

田中俊成, 早川 建, 佐藤 勇, 早川恭史, 横山和枝*, 桑田隆生, 野上杏子, 森 啓, 境 武志

(日大量科研, KEK*)

(P1-7) ビームモニターの開発

石渡謙一郎

(日大院理工量子)

(P1-8) 電子ビーム及びFELビームパルス長の計測

早川 建, 横山和枝*, 中尾圭佐, 佐藤 勇, 田中俊成, 早川恭史

(日大量科研, KEK*)

(P1-9) LEBRA における真空度モニタシステムの整備

野上杏子¹, 佐藤 勇¹, 早川 建¹, 田中俊成¹, 早川恭史¹, 石渡謙一郎², 中尾圭佐²

(日大量科研¹, 日大院量子理工²)

(P1-10) 日本大学電子線利用研究施設における放射線監視システムの現状

中尾圭佐

(日大院理工量子)

- (P1-11) PXR を利用したアプリケーションの整備と現状
森 啓¹, 早川恭史¹, 佐藤 勇¹, 早川 建¹, 田中俊成¹, 桑田隆生¹, 野上杏子¹, 境 武志¹, 城所明生²,
寒河江登志朗³, 高橋由美子⁴
(日大量科研¹, 日大院理工量子², 日大松戸歯³, 日大理工⁴)
- (P1-12) LEBRA-PXR を使った X 線回折像について
寒河江登志朗¹, 早川 徹¹, 岡田裕之¹, 中田浩史¹, 早川恭史², 田中俊成², 早川 建², 森 啓²,
桑田隆生², 野上杏子², 境 武志², 佐藤 勇²
(日大松戸歯¹, 日大量科研²)
- (P1-13) パラメトリック X 線による多波長観測と画像解析
佐藤昌憲
(駒沢大医療健康科学)
- (P1-14) 酸化物のカラーフォトメモリー現象
望月章介¹, 藤代 史²
(日大文理¹, 日大院文理²)
- (P1-15) 量子常誘電体SrTiO₃のフォトルミネッセンス
望月章介¹, 藤代 史², 山田 篤¹
(日大文理¹, 日大院文理²)
- (P1-16) 日大自由電子レーザーによる近赤外・赤外領域散乱分光とレーザーアブレーション(将来計画)
望月章介
(日大文理)

3 月 12 日(土) -----

15:20~16:20

- (P2-1) 光励起によるスーパーダイヤモンド合成
橋本亮二¹, 山本 寛², 岩田展幸², 石川貴之¹
(日大院理工¹, 日大理工²)
- (P2-2) 自由電子レーザーアブレーション法による DLC 太陽電池の作成
田中慶彦
(日大院理工電気工)
- (P2-3) レーザーアブレーション法による酸化チタンの成膜
益田恵太
(日大院理工電気工)
- (P2-4) レーザーアブレーション法による発光材料(LaO)CuS の成膜
清水洋平
(日大院理工)
- (P2-5) 紫外線励起アンモニアガスによるシリコン窒化膜の作製及び評価
稲野 正¹, 海老原司², 福岡大樹², 高橋芳浩², 大西一功²
(日大院理工¹, 日大理工²)
- (P2-6) 陽極酸化法による純水中でのSiO₂膜の作製と評価
藤田明良¹, 菅沼卓仁², 藤岡州次², 新垣 久², 高橋芳浩², 大西一功²
(日大院理工¹, 日大理工²)
- (P2-7) FEL波長 2.94 μ m の歯質削除効果について
岩井啓寿¹, 福島千春², 神谷直孝², 佐藤 勇³, 池見宅司²
(日大院松戸歯¹, 日大松戸歯², 日大量科研³)

- (P2-8) LEBRA-FEL 照射による歯のエナメル質と象牙質の変化
 佐藤由紀江¹, 寒河江登志朗¹, 早川恭史², 田中俊成², 早川 建², 森 啓², 桑田隆生², 野上杏子²,
 境 武志², 佐藤 勇²
 (日大松戸歯¹, 日大量科研²)
- (P2-9) 過酸化水素処理による骨芽細胞様細胞株 MC3T3-E1 の bone nodule 形成への影響
 —石灰化物の結晶学的検索—
 佐藤俊紀¹, 寒河江登志朗², 田中陽子³, 妻鹿純一³, 安孫子宜光⁴
 (日大院松戸歯¹, 第2解剖学², 障害者歯科学³, 生化学⁴)
- (P2-10) 針状粉体を出発原料とした高アスペクト比ペロブスカイト粉体の合成および評価
 内木場文男¹, 渡辺 誠²
 (日大理工精密機械¹, 日大院理工²)
- (P2-11) 時分割X線回折法によるスメクティック液晶の動的構造解析
 高橋由美子¹, 飯田厚夫², 関澤和子¹, 高野良紀¹, 高瀬浩一¹
 (日大理工¹, KEK²)
- (P2-12) ラビット緻密骨アパタイトの結晶性の変異についての微小部 X 線回折法による研究
 諏訪武利¹, 中田浩史²
 (日大院松戸歯¹, 日大松戸歯²)
- (P2-13) LEBRA-PXR による兔脛骨に埋入したインプラント周囲新生骨の X 線透過像観察
 中田浩史¹, 諏訪武利¹, 早川恭史², 田中俊成², 早川 建², 佐藤 勇²
 (日大松戸歯¹, 日大量科研²)
- (P2-14) 特異的な卵状構造をもつ唾石の結晶分析
 豊田千枝
 (日大院松戸歯)
- (P2-15) ヘモグロビン(Hbs)構造研究の展開:(1)両生類のHb, (2)環形動物のHb, (3)軟体動物のHb
 宍倉文夫¹, 竹内浩昭², 後藤寿夫³, 鈴木知彦⁴
 (日大医生物¹, 静岡大理², 徳島大総合科学自然システム³, 高知大理生物⁴)
- (P2-16) アルダブラゾウガメ・ヘモグロビン(Hb D)の構造解析
 桑田隆生¹, 長谷川智一², 佐藤 勇¹, 石川紘一³, 宍倉文夫⁴
 (日大量科研¹, リガクX線研究所², 日大医薬理³, 日大医生物⁴)
- (P2-17) カプトガニ・ヘモシアニンサブユニット(HT6)の結晶化
 桑田隆生¹, 長谷川智一², 杉田博昭³, 宍倉文夫⁴, 佐藤 勇¹
 (日大量科研¹, リガクX線研², 筑波大生物³, 日大医生物⁴)
- (P2-18) 電子線形加速器におけるパルス内ビーム変動に関する研究
 高崎 寛¹, 田中俊成², 榊泰直³, 佐藤 勇², 早川 建², 早川恭史², 野上杏子², 境 武志²,
 石渡謙一郎¹, 中尾圭佐¹
 (日大院理工量子¹, 日大量科研², 日本原研³)
- (P2-19) パラメトリックX線のエネルギー特性に関する研究
 城所明生¹, 早川恭史², 佐藤 勇², 早川 建², 田中俊成², 森 啓², 野上杏子², 境 武志²
 (日大院理工量子¹, 日大量科研²)
- (P2-20) 電子線形加速器冷却水の放射化に関する研究
 稲垣 学¹, 佐藤 勇², 早川 建², 田中俊成², 早川恭史², 野上杏子², 境 武志², 石渡謙一郎¹,
 中尾圭佐¹
 (日大院理工量子¹, 日大量科研²)

以下の演題及び発表者に変更あり。

「時間と空間を分解した振動分光学:分子から生細胞、人体まで」 浜口 宏夫 (東大院理)
→ 「新たな分光測定法の開発と物理化学現象の観測」 岩田 耕一 (東大院理)

「分泌型 IgA構成成分の構造解析」 茂呂 周 (日大歯)
→ 発表辞退

一般講演(口頭発表)

加速器の稼働状況と共同利用の進展

田中俊成¹, 佐藤勇¹, 早川建¹, 早川恭史¹, 桑田隆生¹, 横山和枝^{1*}, 森 啓¹, 野上杏子¹, 境 武志¹, 菅野浩一^{2**}, 石渡謙一郎², 中尾圭佐², 福田茂樹³, 榎本収志³, 大沢哲³, 諏訪田剛³, 古川和朗³, 道園真一郎³

¹ 日本大学量子科学研究所 電子線利用研究施設 〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1

² 日本大学大学院理工学研究科 〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1

³ 高エネルギー加速器研究機構(KEK) 加速器研究施設 〒305-0801 茨城県つくば市大穂1-1

1. はじめに

日本大学における赤外～紫外領域の自由電子レーザー(FEL)開発の研究計画は東北大学、動力炉核燃料開発事業団(現:核燃料サイクル開発機構)、高エネルギー物理学研究所(現:高エネルギー加速器研究機構、KEK)および電子技術総合研究所(現:産業技術総合研究所)の研究協力により1994年に始まった。1996年にはKEKとの間で共同研究(研究課題:「電子線形加速器の高性能化とその高度利用」)が開始され、KEK光子ファクトリーの陽電子生成リニアックの一部を日本大学理工学部船橋校舎に移設して125MeV電子線形加速器が建設された^[1]。1998年1月から電子ビーム加速が開始され2001年5月に波長1.5 μm のFEL発振に成功した。この間に学術フロンティア推進事業が開始し、加速器の利用目的としてパラメトリックX線(PXR)の発生が加わった^[2]。

日本大学の125MeV電子線形加速器は短波長のFELを目指したために長パルスのクライストロン動作が要求され、その安定化に多くの時間が費やされた。加速器の仕様は、電子エネルギー125MeV、ピークビーム電流

200mA、ビームマクロパルス幅20 μs 、パルス繰り返し12.5Hzであるが、これに必要とされるクライストロンのピーク出力RF電力30MWを早期に実現するのは難しいと判断された。そこで実際の使用ビームを最高エネルギー100MeV、平均ビーム電流最大25 μA (繰り返し12.5Hz時にはピーク電流100mAに相当)として加速器の使用許可申請を行い、2003年3月に放射線施設検査に合格した。これにより漸く電子線形加速器の利用が可能となった。

本報告ではこの2年間における加速器の稼働状況と、2003年後半から開始された加速器共同利用の実績および実験施設整備状況の概要について述べる。

2. 加速器運転状況

2.1 運転時間

図1に2003年4月から2005年2月までの月間加速器運転時間の推移を示す。図において、LV ONはクライストロンパルスモジュレーターの低圧電源が投入されている状態を指す。通常はクライストロン1号機と2号機のモジュ

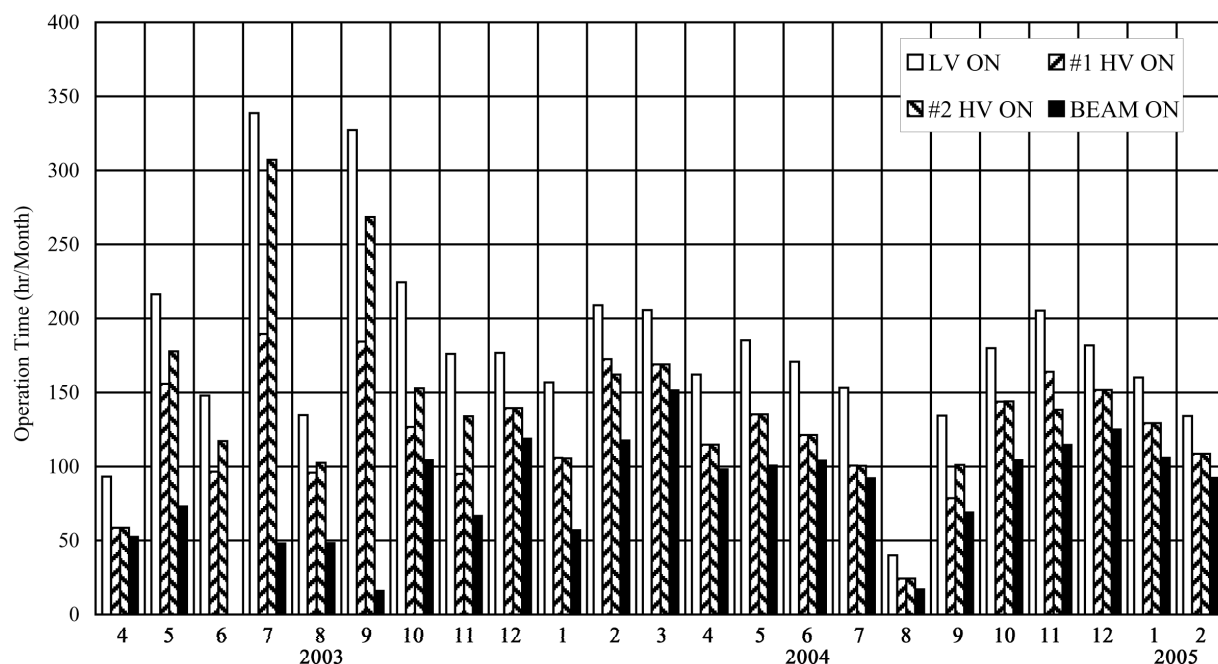


図1. 2003年4月から2005年2月までの月間加速器運転時間の推移。各月の棒グラフは左からクライストロンパルスモジュレーター低圧電源ON時間、クライストロン1号機高圧印加時間、2号機高圧印加時間、ビーム利用時間を示す。

* Present Address : 茨城県つくば市大穂1-1 高エネルギー加速器研究機構

** Present Address : 神奈川県川崎市麻生区万福寺1-2-3 エー・イー・ティー・ジャパン

表1. 加速器運転時間のまとめ。2004年度は2005年2月までの時間を含む。

	LV ON Time (hr)	#1 HV ON Time (hr)	#2 HV ON Time (hr)	BEAM ON TIME (hr)
F.Year 2003	2406.27	1588.70	1894.30	852.90
F.Year 2004	1706.77	1271.82	1268.68	1022.42
Latest 12 Months	1987.22	1504.80	1491.27	1199.18
Total Time	4113.03	2860.52	3162.98	1875.32

レーターはほぼ同時に低圧電源を投入しているため、共通の時間としてある。HV ONはそれぞれのパルスモジュレーターで発生させた大電力パルスがクライストロンに通常2Hzの繰り返しで印加されている状態を指す。つまり、通常はクライストロンから大電力RFが加速管に供給されて、電子ビームの加速が可能な状態である。BEAM ONはクライストロン2台ともHV ONの状態電子銃にグリッドパルスを通常2Hzの繰り返しで供給している状態を指す。つまり、実際に電子銃から電子を引き出し、ビーム加速がパルスので行われている状態である。

2003年5月から6月にかけてはFEL取り出し後の光輸送ライン組み立て工事が行われた。また、2003年1月に2号機クライストロンを新しいタイプのPV3040Nに更新して以来、放射線施設検査に合格するために十分エージングを行う前にビーム加速を行っていたことからクライストロンの動作が安定していなかった。これらの事情により6月はクライストロンの長パルス運転での安定化のため長時間にわたるエージングが行われ、ビーム加速時間は0となった。この時期に2号機の高圧印加時間が特に長くなっているのはエージングのためである。

2003年10月から暫定的にFELのユーザー利用が開始した。11月から2004年1月にかけては2号機クライストロンの安定度がまだ不十分であったためエージングを繰り返していたが、その後は安定しほとんどエージングを行っていない。この結果ユーザーによるビーム利用が順調に進み、図1から分かるように2004年2月以降はほぼ毎月約100時間のビーム利用があった。

加速器の起動にはウォーミングアップが必要なため、LV ON時間に対してHV ON時間は一定程度短くなることは避けられない。また、ユーザーの実験によっては途中でHVをOFFせず実験終了まで連続して印可し続ける場合もあるが、加速器オペレーターの昼食時間はHV OFFとして休憩時間を入れている場合が多いため、この時間もLV ONのみとなる。図1から、安定にユーザー利用が行われるようになった最近の例ではLV ON時間とHV ON時間の差は1ヶ月あたり約30時間と見積もられる。加速器運転は基本的に毎週火曜日から金曜日までの週4日間としてきたので、1日当たり約1.5時間である。オペレーター不在でHV ONを続けることはできないが、オペレーターが交代で昼食を取る体制が確立すれば、1日当たりのLV ONとHV ONの時間差のうち約1時間は解消できる。

表1にこれまでの運転時間を合計した結果をまとめた。BEAM ON時間は、その時の実験内容によってビーム加速を随時停止することもあるため、加速器の利用時間を必ずしも反映しているとは言えない。したがって加速器オペレーターが運転を行っている時間であるHV ON

時間を加速器の利用時間とするのが実際的である。2004年度は概ね順調に加速器稼働したため最近1年間ではHV ON時間が約1500時間あり、日中運転のみによる加速器利用としては高い稼働率を示している。

2.2 整備およびマシントラブル

加速器の利用開始後約2年間に行われた加速器その他の主要な整備とマシントラブル等について以下に簡単に述べる。

2.2.1 偏向電磁石コイル位置移動

2003年1月にFELラインにビームを導く90° 偏向系の1台目の偏向電磁石コイルが冷却水停止後も通電していたために過熱し、コイルの一部が短絡した。このコイルは他のコイルに比べ励磁電流不足となったが、3台目の偏向電磁石に移動することで利用し続けても当面不都合がないため、移動を行った。しかし将来的にはコイルの修理が必要である。

2.2.2 FEL共振器用ミラー更新

初期のFEL発振実験以来、共振器ミラーとして誘電体多層膜ミラーを使用してきた(後に金蒸着ミラーも試用)が、FEL発振強度が高くなるとミラー表面が破壊されることが明らかとなった。このためより強度の高いミラーを採用することが不可欠となり、2003年8月以降のFEL実験では銀蒸着の銅ミラーに変更した。これによりFEL発振強度・安定度の改善のための様々な基礎データの収集が可能となった。銀蒸着ミラーにおいても長期間にわたる耐性は十分ではなく、最初に用いた銀蒸着ミラーは表面の破損・劣化が進みFEL出力が下がったため、約1年で新たなものと交換した。

2.2.2 電子銃カソード交換

加速器入射部のDC電子銃に用いているEIMAC Y646B Ba含浸型ディスペンサーカソードは寿命があり、2003年7月には電子銃からのエミッションが減少したため交換した。さらに交換後のカソードにはグリッドメッシュに欠陥があり、2004年4月にカソードグリッド間の短絡により交換を行った。その後約10ヶ月間支障は起きていない。

2.2.3 PXRラインの整備

2003年10月に初めてPXRラインに電子ビームを導入しビームラインのテストが行われた。原因は不明であるが、ビームを導入しているとPXRラインの真空が悪化することが判明した。この真空悪化はビーム導入テストを繰り返すうちに抑制されるようになった。さらに、PXRラインへの90° 偏向電磁石系の調整がFELラインと同じパラメータではビームが正常に通過しないことが判明した。後に四極電磁石に配線の間違ひが見つかり、現在は正常に無分散ビームをPXRラインに導入できるようになっている。

PXRラインは2004年3月に施設検査に合格し、4月にPXRの取り出しを確認しユーザー利用が可能になった。

2.2.4 ビーム位置モニターの整備

2001年以来ビーム位置モニターの設置・整備を進め、2003年9月にはリニアックの各4m加速管入口とFELライン90° 偏向系内に設置、さらに2004年4月にはPXRラインにも設置した。これにより、リニアック直線部、ビーム偏向系内、ビーム利用ラインの全てのビームラインにおける電子ビーム軌道の振舞を常時監視可能になった。

2.2.5 加速器冷却系の一部更新

従来使用してきた加速器の冷却水循環装置は、1984年から開始したダブルサイデッドマイクロトロン建設に伴って整備されたもので、老朽化が進んでいた。一方、当時のCW運転加速器に比べ、現在のパルス運転を行うリニアックは使用電気量が大幅に減少しているために冷却能力が過剰であった。このため、まず2003年12月に冷却塔の更新工事を行い、この際に冷却能力がそれまでの1/2の冷却塔に変更した。さらに、2005年3月に冷水循環のための冷凍機および冷水配管の更新、また一部冷却水配管の更新を行った。それまで冷却水および冷水の配管の多くの部分に塩化ビニールパイプを使用しており、耐久性に不安があったため、更新工事では全て内面腐蝕防止処理された鉄配管またはステンレス配管に切り換えられた。冷水循環によって熱交換された加速器本体冷却用の純水循環系における冷却水温度安定度は $30 \pm 0.1^\circ\text{C}$ を実現している。今後はさらに加速器本

体の精密冷却装置および粗温調冷却装置の更新も検討している。

3. 共同利用の推進状況

図2に2003年4月に加速器の利用が可能になって以降の加速器利用状況を棒グラフで示してある。図中では加速器利用を5項目に分類し、加速器自体のエージングおよび調整運転・実験を行った日数、FEL利用のための調整・試験を行った日数、ユーザーによるFEL利用実験を行った件数、PXR利用のための調整・試験を行った日数、ユーザーによるPXR利用実験を行った件数、にまとめてある。利用を日数ではなく件数としているのは、同じ日に異なるユーザーがそれぞれ別の実験を行った場合にはそれぞれを独立に計数したためである。

2003年は加速器の安定動作を実現するためにクライストロンのエージングに長時間を費やしたことから、図2に示すように加速器の調整運転時間が多くを占めている。2004年後半からの調整運転の多くは加速器性能向上のための試験運転であり、クライストロンが安定になったためエージングはほとんど行っていない。FEL利用のための調整・試験は、2003年から2004年前半に集中している。これは、2003年後半に開始されたFELのユーザー利用実験におけるFELの安定動作を目的として、加速器の動作パラメータとFEL発振強度との関係を調査した結果である。

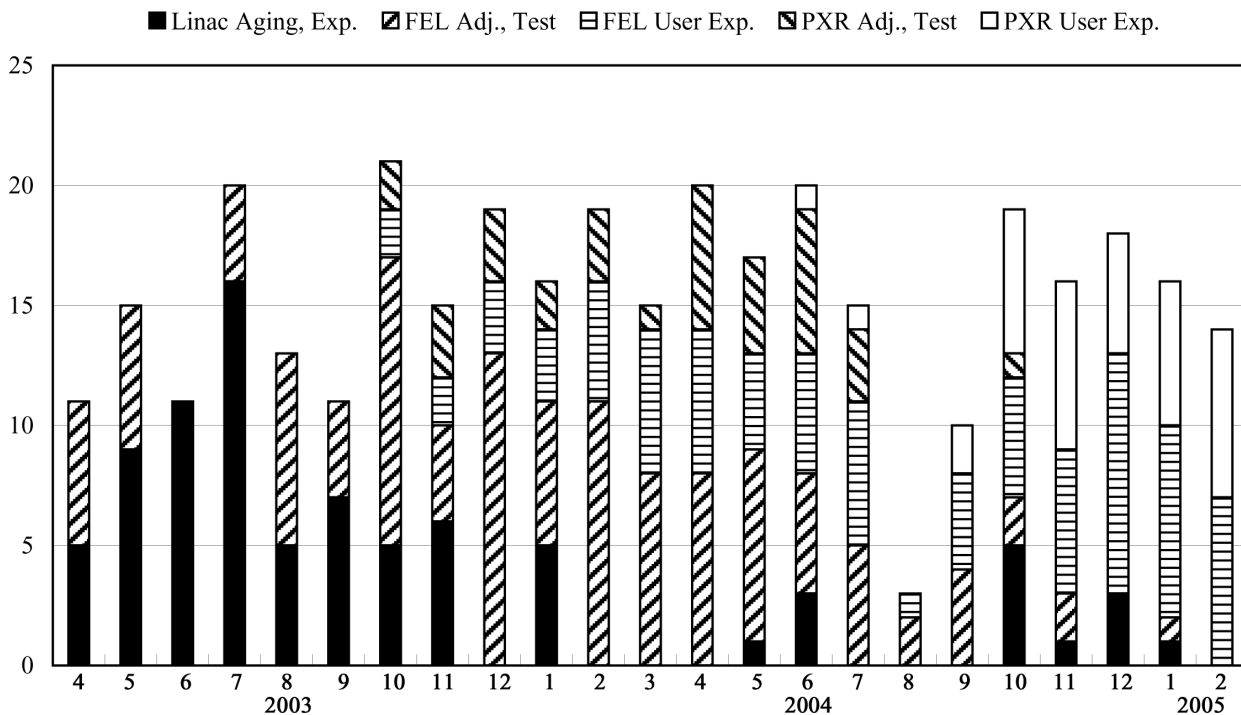


図2. 加速器共同利用の月間利用分野別利用件数の推移。

表2. 2003年4月～2005年2月の加速器利用件数のまとめ

加速器調整・実験	FEL調整・試験	FEL利用実験	PXR調整・試験	PXR利用実験	総件数
83	119	83	34	35	354

2004年後半からはPXRの利用が進み、最近数ヶ月間はマシンタイムの大部分がFELとPXRの利用実験となっている。表2はこの2年間の加速器利用件数をまとめたものである。少ない運転要員ながらほぼ2日に1日の割合で加速器を運転し、高品質の電子ビームを必要とするFELとPXRのユーザー利用実験をこれだけ継続できたのは、加速器の高性能化に成功し且つ非常に安定に動作させてきたことが要因である。

4. 実験施設の整備状況

4.1 FEL照射実験光学系

FEL利用実験に使用する照射光学系は、光学実験台の上に並べられた鏡、レンズおよびシャッターなどをユーザーの照射目的・方法に応じて組み合わせて使用できるように実験室ごとに用意し整備してきた。このうち、1グループのみで使用している実験室については光学系

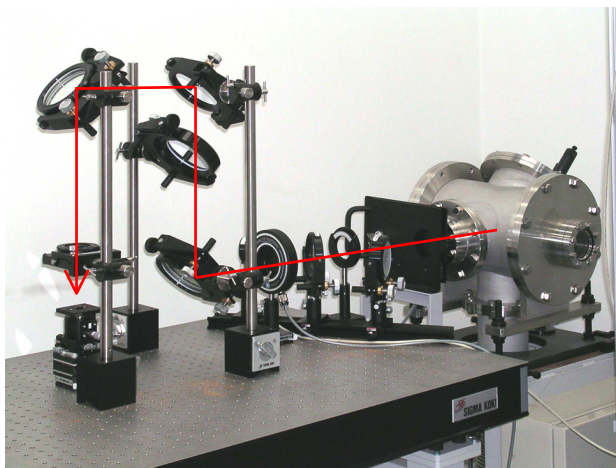


図3. 生命科学実験室の集光照射光学ライン。a) 手動シャッター、b) ビームスプリッター、c) 電子制御シャッター、d) ϕ 50mm / f 100mm CaF₂レンズ。ビームスプリッターでポート出力FEL光の数%をサンプリングし、常時FELパワーをモニターする。電子制御シャッターは外部回路を用いてFEL光パルスに同期して開閉可能。

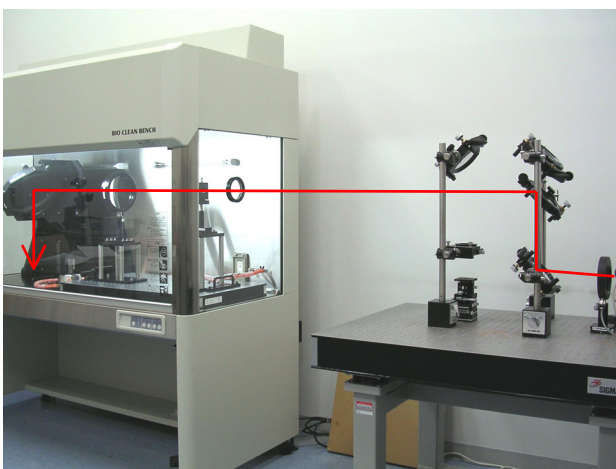


図4. クリーンベンチ用平行光照射光学ライン。図3の光ラインの途中から振り分け、クリーンベンチ内において一旦短焦点レンズで集束した後発散させ光ビーム径を拡大して平行光に戻し、下向きに反射させて照射を行う。クリーンベンチ入射窓にはCaF₂板を用いている。

の組み合わせがほぼ固定しており、実験セットアップに応じてユーザー側で独自に光学系の調整を行っている。一方、同じ実験室で複数の実験グループがビームラインを共有している生命科学実験室については、ビームの振り分けと若干の光学系の組み替えが必要となっている。ここでは生命科学実験室で使用している光学系セットアップの例を示す。

図3はFELビームラインを輸送されて来た平行光を集束光して照射する光学系の例である。実験施設建屋一階の床下ピット内の真空ダクト中を輸送されて来たFEL光は実験室床下の鏡で跳ね上げられ、出力ポート(図3の右端)の鏡で水平方向に取り出される^[3]。出力ポートには安全のために手動のシャッターが設置してある。取り出された光は手動の絞りを通過しビームスプリッターで数%だけ光強度のモニター用に分けられ残りは電子制御シャッターを通過し鏡を用いて集光用CaF₂レンズまで導かれる。電子制御シャッターは外部回路を用いてリニアックのメイントリガーに同期させて開閉することが可能で、FELマクロパルスで1パルスから任意のパルス数まで照射が可能である。

図4はFEL光をクリーンベンチ内に導き広い面積にわたり平行なFEL光を照射するための平行照射光学系である。図3の光学系の途中に挿入した鏡により光をクリーンベンチに向けて振り分け、CaF₂板の入射窓を通して入射される。FEL光は一旦短焦点レンズで集光され、大きく発散した後もう一つのレンズで平行光に戻される。平行光は250mm径の鏡で反射され下向きに照射される。光ビームの径は集光レンズの焦点距離とFEL光の波長に依存する。

4.2 PXR照射実験室

PXRはX線の性質から任意の実験室に輸送できないため、実験は加速器建屋の大実験室でのみ可能となっている^[4]。

PXRは加速器本体室内で発生し、図5のように大実験室と本体室の間の放射線遮へい壁を貫通する真空ダクトを通して取り出される。PXRを用いたX線イメージング

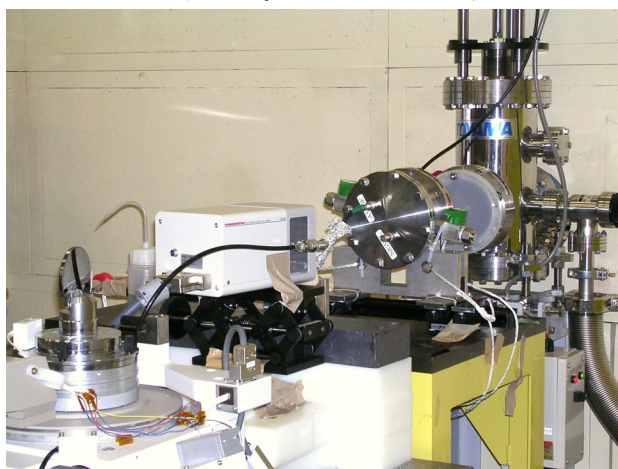


図5. 加速器建屋の大実験室にあるPXR取り出しポートの写真。写真右奥側が加速器本体室。写真中央付近にX線強度測定用のイオンチェンバー、その下流にX線CCDカメラが設置してある。さらに下流にはX線集光用のグレーティングミラーシステムとX線回折装置の小部屋が配置してある。

のための照射実験は、図5の取り出しポート下流に試料とイメージングプレートまたはX線CCDカメラなどを配置して行われている。PXRビームライン下流にはグレーディングミラーを用いたX線集光光学系が設置しており、そのさらに下流において集光したX線を用いたX線回折実験が行える。

5. まとめ

2003年3月に放射線施設検査に合格し漸くリニアックの利用が開始された。これに引き続き、2003年後期からはFELの、また2004年4月からはPXRの共同利用が開始された。この約2年間にユーザーによる共同利用実験は118件行われ、リニアックの調整運転まで含めると350件以上の利用を重ねた。

一方、加速器自体の運転は、建設以来最重要課題であったクライストロンの安定動作が確立したことから、ビームの利用が増加し年間約1500時間の運転時間に達している。この間、加速電子ビームの安定化のための加速器改良・改善も進められ、特に高性能且つ高安定度が要求されるFELへの応用においても、FELの安定発振と高出力を実現することが出来た。

ユーザーの実験設備の整備としては、FEL光ビーム利用のための光学系とFEL計測システムの整備が進んだ。また、PXRについては加速器建屋の大実験室においてX線イメージングを主とした実験設備が整いつつある。今後、X線集光光学系の整備によりPXRを用いた単色X線回折実験が開始される予定である。

参考文献

- [1] T.Tanaka et al., Free Electron Lasers 1997, North-Holland; Proceedings of the 19th International Free Electron Laser Conference and 4th FEL Users' Workshop (Beijing, China, Aug. 18-22, 1997) II-103 - II-104.
- [2] I.Sato et al., Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan (Jul. 12-14, 2000, Himeji, Japan)24-28.
- [3] T.Tanaka et al., Jpn. J. Appl. Phys. 41 Suppl. 41-1 (2002) 34-40.
- [4] Y.Hayakawa et al., Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 4-6, 2004, Funabashi, Japan) 60-62.

クライストロン電源の安定化

早川 建¹、田中俊成¹、早川恭史¹、佐藤 勇¹、境 武志¹、横山和枝²、中尾圭佐³

日本大学量子科学研究所¹
〒274-6501 船橋市習志野台 7-24-1
高エネルギー加速器研究機構²
〒305-0801 茨城県 つくば市 大穂 1-1
日本大学理工学研究課³
〒274-6501 船橋市習志野台 7-24-1

1. はじめに

電子線利用研究施設において、自由電子レーザー発振実験を行っている時、しばしば電子ビームの激しいエネルギー変動を経験した。特に、午後9時以降の時間帯は変動が著しく、実験を続けられないほどであった。このような変動が現れた場合、最初に疑うべきは商電源電圧の変動である。そこで、クライストロン出力、クライストロンパルス電圧、商用電源電圧を同時に測定した。結果の一例を図1に示す。この図から、これらの測定量の間に関連が存在するのは明らかである。すなわち、商用電源電圧の変動に追従してパルス電圧が変動し、その結果、クライストロンの出力が変動するのである。因果関係は明らかであり、この問題の解決は容易に思われた。ところが、それほど単純なことではなかった。商用電源は変動するものであるから、設計段階から対策は盛り込まれている。このクライストロン電源の場合、高压直流電源にこう安定度のものを用意し、パルス電圧に商用電源電圧の変動が入り込まないようにした。また、運用直後に、クライストロンやサイラトロンのヒーターが電源変動の影響を受け、パルス電圧を変動させていることがわかったので、これらを含むクライストロン電源の低電圧システム全体をAVRを介して電力供給するようにした。この結果、かなり改善されたの

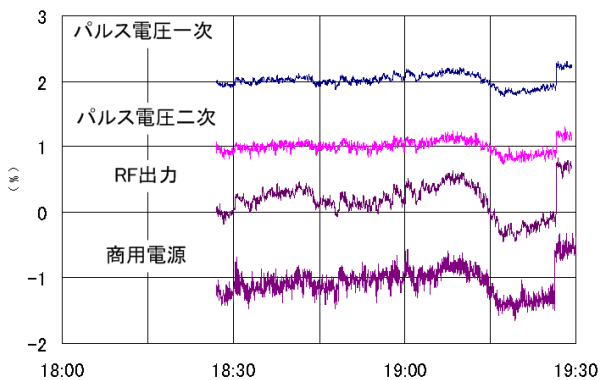


図1. 電源変動とパルス電圧，クライストロン・マイクロ波出力。上から順に、一次側パルス電圧、二次側パルス電圧、マイクロ波出力（検波器出力）、商用電源電圧。

であるが、依然として、図1に示すような変動が残っている。AVRを挿入することにより、細かい変動は残るが、大きな変動はほぼ完全に補償される。つまり、パルス電圧が商用電源変動に追従して変動するはずは無い、と結論せざるを得なくなったのである^[1]。

2. 商用電源変動

商用電源変動の状況を把握するために、監視システムを製作し、常時電圧を記録するようにした。ここに蓄積されたデータには、幾つかの変動パターンがあることが見出された。図2に示したのは平日の典型的な変動パターンである。昼間（午前9時から午後9時）は長周期の変動の幅が $\sim 4\%p-p$ と大きい。短周期の変動幅は比較的小さい（ $\sim 0.5\%p-p$ ）。これに対して、夜間（午後9時から翌日午前9時）は長周期の変動幅は同じくらいであるが、短周期の変動が大きく $\sim 1.5\%p-p$ に達する。短周期の変動は周期が数秒程度の不規則な変動であるが、約1時間周期で同じパターンを繰り返している。また、週末と休日は昼間もこのパターンが続く。ビームへの影響が大きいのは夜間の短周期の変動である。夜間及び休日にもこのような変動をもたらす電力需要が発生していると考えられるが、真相はいまだに不明である。昼の部の変動でも、そのためにパルス電圧が変動してい

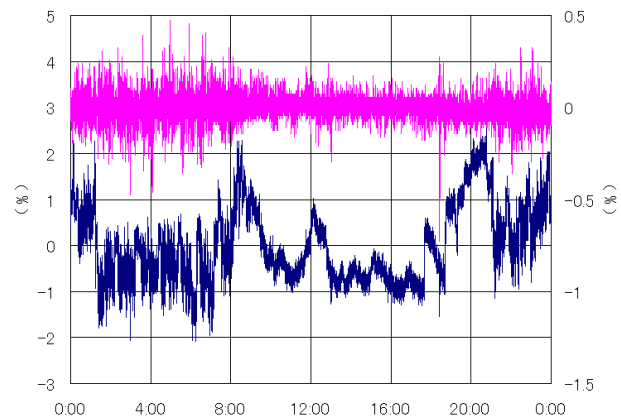


図2. 平日の電源変動パターン、上が AVR 出力（右側目盛り）、下が商用電源。

ることには変わりなく、その侵入経路を見つけてこれを遮断しなければ、自由電子レーザーの安定化は果たせない。何としてもこの影響を排除しなければならなかった。

3. 電源変動の侵入経路

図3にクライストロン電源のブロック図を示す。クライストロン電源は高圧直流電源とコンデンサーとインダクターから構成されるパルス形成回路(PFN)及び、PFNを充放電する回路からなる。放電用のスイッチにはサイラトロンを採用している。この図から分るように、商用電源から電力を供給されているのは、高圧直流電源、サイラトロンヒーター、リザーバーヒーター、キープアライブ電源、トリガー回路、クライストロンヒーター電源、パルスランスバイアス電源、および図には示さなかったが、クライストロン収束コイル電源である。クライストロン収束コイル電源については、たとえこの電流が変動してもパルス電圧に影響するとは考えられない。前記のように、サイラトロン周りの電源が変動すると確かにパルス電圧が変動していた。そこで、商用

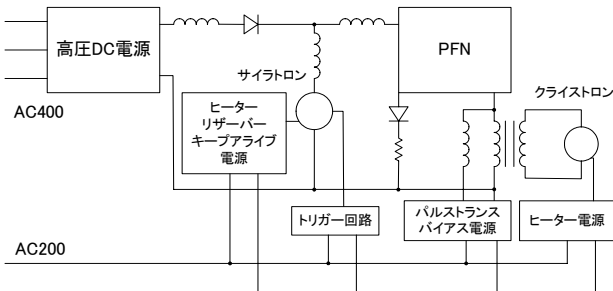


図3. パルスモジュレーター、直流電源、クライストロンアッセンブリ概略図

電源変動の影響を除去するために、電力供給ラインにAVRを挿入した。この結果、パルス電圧変動は劇的に低下した。しかしそれでも図1に示したように商用電源変動のパターンでパルス電圧が変動していた。商用電源の、比較的時間スケールの長い変動はAVRによってほぼ完全に除去できるので、AVRから給電される装置はこのパターンでは変動しないはずである。そこで、大容量のAVRを導入して、サイラトロン周りだけでなく、高圧直流電源を除く全ての電源をAVRから給電するようにした。ところが状況は一向に改善されないものであった。高圧直流電源は仕様どおり 10^4 程度の安定度を示しており、全く問題ないように見えた。あるいは、測定系の問題なのではないかと思ひ至り、バッテリー駆動のオシロスコープによる測定も試みたが、結果は同じであった。サイラトロン周りを安定化したにもかかわらず変動していることから明らかであったが、PFNの充電電圧もまた変動していた。ここに至って、電源変動の侵入経路は高圧直流電源以外に考えられなくなった。そこで、

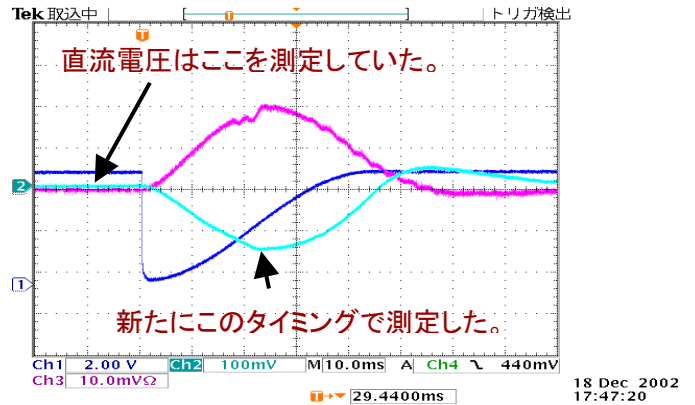


図4. 充電中のPFN電圧(S字型曲線)、充電電流(上に凸)、充電電圧波形(下に凸)。

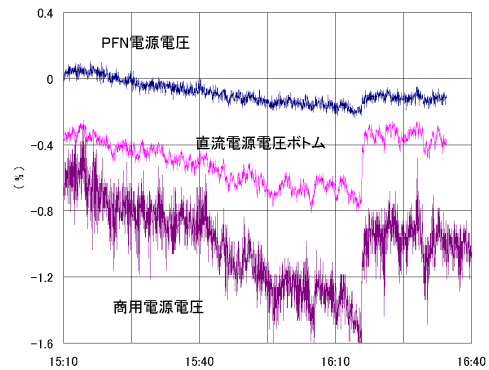


図5. 充電中の高圧直流電源電圧とPFNに充電された電圧の変動。商用電源と同じパターンで変動している。

それまでは放電直前のタイミングで測定していた電圧を充電中に測定してみた。チャージングチョークの電源側に高圧プローブが取り付けられているので、これを利用した。図4に示すように、充電中の電圧波形は、充電電流波形をひっくり返したような形の落込みを示している。充電電流を多く流す時には、供給側の容量が不足して、電圧が落込むのである。この電圧の落込んだ底の部分の電圧を長時間に渡って測定した。この測定の結果を図5に同じ時刻の電源変動と共に示す。明らかに、同じパターンで変動している。高圧直流電源電圧は充電中には変動していたのである。この事実がわかれば、その侵入経路を推定することは容易である。すなわち、充電中、高圧直流電源は安定化されていないのである^[2]。

3. 高圧直流電源

高圧直流電源は前記のように、仕様どおり 10^4 程度の安定度を示しており、それで安心していただけ、元々は定負荷用に作られた電源であるので、パルスモジュレーターのように変動の大きな負荷に接続した時の振る舞いをもっとよく考えておくべきであっ

た。直流電源回路のブロック図を図6に示す。この図では、昇圧トランスと整流回路を電池の記号で表している。破線及び括弧内の数値は改造前の状態である。これから分かるように、トランスで昇圧した後整流した 3kV程度の電圧を制御用電子管のカソード・アノード間に印加する。その電圧にIVRで昇圧後、整流した約 20kV程度の電圧を積み重ねている。定負

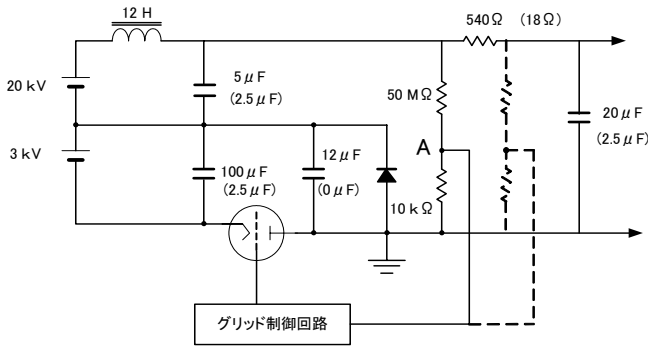


図 6. 高圧直流電源のブロック図。破線及び括弧内の数値は改造前の状態。出力抵抗増強と検出点の移動、コンデンサの容量増加が変更点。

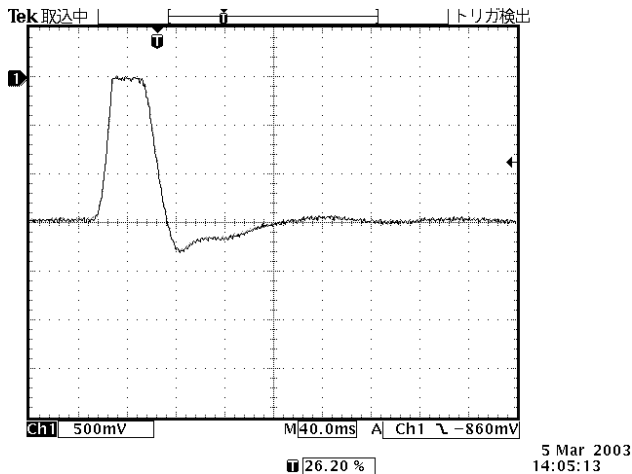


図 7. 改造前の電圧制御用電子管の吸収電圧波形、充電中に吸収電圧を全て放出してしまっている。

荷時は、電子管の吸収電圧が 1.5kV程度になるようにグリッドのバイアス点を定める。この場合出力は 21.5kV程度になる。入力あるいは負荷変動によって、検出点Aの電位が動かないように吸収電圧を調整する。パルス負荷の場合、負荷変動が大きすぎて、電子管による調整範囲を超えてしまったと考えられる。実際、充電中のカソード・アノード間の電圧を測定した結果を図7に示す。充電が開始されると、測定点Aの電位の落ち込みを補償するように電子管は吸収電圧を小さくしてゆくが、遂には放出すべき電圧を全て失ってしまう。こうなってしまうと、この電源は入力変動にも負荷変動にも対応できないだけの整流回路になってしまう。従ってこの時の商用電源電圧

が、そのまま出力に反映するようになってしまうのである。

4. 電源の改造

問題は電源の制御系が、負荷変動に追随しようとして、結局追随しきれず、全く制御を失ってしまうことにある。負荷変動の最大の要因は無論、放電によって PFN の電圧が一気にゼロまで落ち込む現象である。これに、PFN のコンデンサやインダクターの室温変動による容量変化、サイラトロンの変動等が重畳されるのであるが、これらは電源変動に比べて十分小さいと考えられる。そうであれば、電源は必ずしも負荷変動を見る必要が無い。電源変動だけを補償するように働けば良いのである。負荷変動はむしろ見えないようにしたほうが良い。負荷を電源から隠蔽する方法は幾つか考えられたが、ここでは、システムの挙動になるべく影響を与えないように、出力抵抗を大きくする方法を採用した。出力抵抗を 18Ω から 590Ωに増強し、かつ、電圧の検出点を出力抵抗の電源側に移動した。またこの措置による充電電圧の低下を軽減するため、負荷側のコンデンサを増

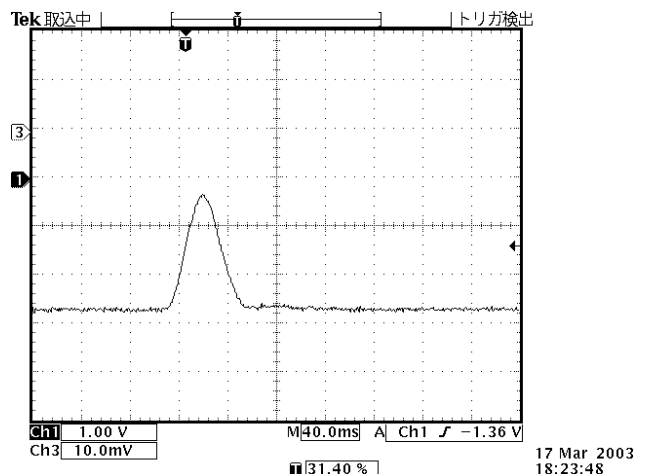


図 8. 改造後の電子管の吸収電圧波形。充電中大きくスウィングするが、制御可能範囲を超えていない。

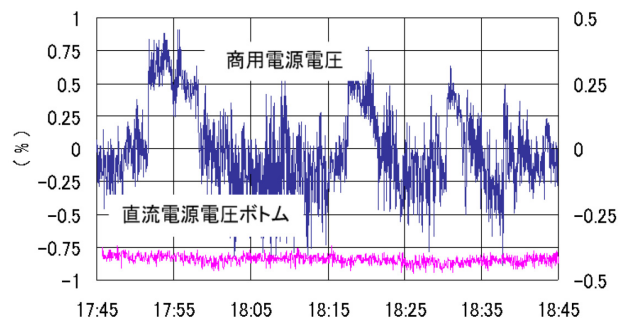


図 9. 改造後、充電中の高圧電源電圧変動（右側目盛）と商用電源電圧の変動（左側目盛）。商用電源電圧の変動はほぼ完全に取除かれ、直流電源本来の安定度を示している。

強した。検出点を出力抵抗の電源側にしたのは、前述のように負荷を隠蔽するためである。改造の結果、図8に示すように、吸収電圧波形の振幅は小さくなり、充電中も調整範囲に収まるようになった。調整できる範囲は±500Vほどあるので、20kVに対して、±2.5%の商用電源変動を補償することができる。改造後、充電時の電圧を測定した結果を図9に示す。このときは、±1%程度、商用電源が変動していたが、充電電圧はほとんど変化していない。これは直流高圧電源本来の安定度を示しているように見える。

5. ビームへの影響

直流高圧電源の改造によって、商用電源変動の影響が取り除かれるようになった結果、定量的な評価は未だ行なっていないが、以前より安定な電子ビームをFELに供給できるようになった。また、夜間の大変動時においても影響なく実験が可能となった。

6. まとめ

長年の懸案であった商用電源変動のパルス出力への回り込みの現象は、今回の一連の研究によって、充電時における高圧直流電源の挙動にその原因があることが判明し、電源の改造によって、解決を見た。

わかってみれば、もっと早い時期に気がついてしめるべき問題ではあった。

参考文献

- [1] 早川建、他、”商用電源変動とビーム不安定性”, Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan. p285
- [2] 早川建、他、”商用電源変動とビーム不安定性 II”, Proceedings of the 28th Linear Accelerator Meeting in Japan. P90

FEL ビームラインの現状と FEL ビームの特性

早川 恭史*^{A)}, 佐藤 勇^{A)}, 早川 建^{A)}, 田中 俊成^{A)}, 桑田 隆生^{A)}, 森 啓^{A)},
野上 杏子^{A)}, 境 武志^{A)}, 石渡 謙一郎^{B)}, 中尾 圭佐^{B)},

^{A)} 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

^{B)} 日本大学理工学研究科量子理工専攻

Abstract

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) では近赤外領域での連続波長可変の自由電子レーザー (FEL) 発振を達成し、波長 $0.8 \mu\text{m} \sim 6 \mu\text{m}$ の FEL ビームを利用研究ユーザへ供給している。ユーザ実験室へ輸送するために楕円鏡と放物面鏡からなるビームエキスパンダーを用いており、到達強度が最大になるのは $2 \mu\text{m} \sim 3 \mu\text{m}$ の波長域である。その強度をマクロパルス当りの最大の熱量で評価すると、およそ $15 \sim 20 \text{ mJ}$ となる。応用研究において効率的な実験を行うには、FEL の原理的な特性を考慮した上で、その実験にとって最適な発振状態を選択することが重要となる。

1. FEL 発振の現状

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) では波長 840 nm から $6.1 \mu\text{m}$ の範囲での自由電子レーザー (FEL) 発振を達成している。表 1 に 2005 年 3 月現在の FEL 発生装置のパラメータを示す。共振器鏡として銅基板銀コートミラーを使用しているため、電子エネルギーとアンジュレータギャップの組み合わせにより連続可変波長の発振を実現している。図 1 は、LEBRA の FEL システムでの発振波長とアンジュレータハーフギャップの関係性を電子ビームエネルギーをパラメータとしてプロットしたものである。

2003 年 11 月よりユーザ利用研究に FEL ビームの供給を開始し現在に至っているが、この間の大きな変化としては以下の 2 つが上げられる。

- アンジュレータダクト交換 (2004 年 1 月実施)
長波長への対応強化のためにアンジュレータ内のダクトをより径の小さなものに交換し、アンジュレータハーフギャップの最小値を 14 mm から 12 mm へ変更した。
- 共振器鏡交換 (2004 年 9 月実施) FEL 発振強度が低下し、共振器ロスの増大が認められたため、共振器鏡の深刻な損傷が確認された。同じパラメータ (曲率半径: 4.0 m , カップリング穴径: $\phi 0.3 \text{ mm}$) の鏡が無かったため、曲率が同じでカップリング穴径が $\phi 0.4 \text{ mm}$ であるものに取り替えた。

以上は共に長波長の発振と共振器からの取り出しに関しては有利な変更であるが、短波長の場合はカップリング穴径が大きくなったために共振器ロスが増加し、強い発振を得るのが以前と比べ難しくなっている。一般に短波長では FEL ゲインが減少し、電子ビーム軌道の変動や共振器長のシフトに敏感である。こういうこともあり、その時の調整にもよるが波長が 1200 nm 以下になると安定な発振を維持するのが困難なのが現状である。

*E-mail: yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp

表 1: FEL 発生装置のパラメータ (2005 年 3 月現在)

電子エネルギー	45 – 100 MeV
電子ビーム電流	< 100 mA
繰り返し	最大 12.5Hz (通常 2Hz)
アンジュレータ周期数	50
アンジュレータ周期長	48 mm
共振器長	6.718 m
共振器鏡曲率半径	4.0 m
カップリング穴	$\phi 0.4 \text{ mm}$
発振波長 (実績)	$840 \text{ nm} - 6.1 \mu\text{m}$

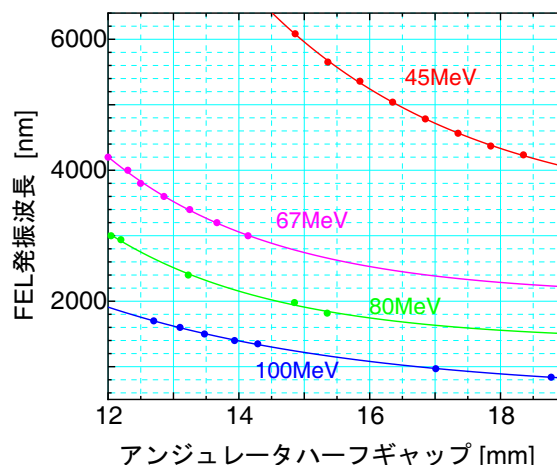


図 1: LEBRA FEL における発振波長

一方、長波長の方は改善はされたが別の問題を抱えている。原理的には低いレベルで発振が飽和しやすいという問題もあるが、波長が $4 \mu\text{m}$ を超えるとカップリング穴からの取り出し効率の低下や回折損失の方が深刻となる。以上の事情により、実際に得られる光強度が最大になるのは現状では $2-3 \mu\text{m}$ の波長領域

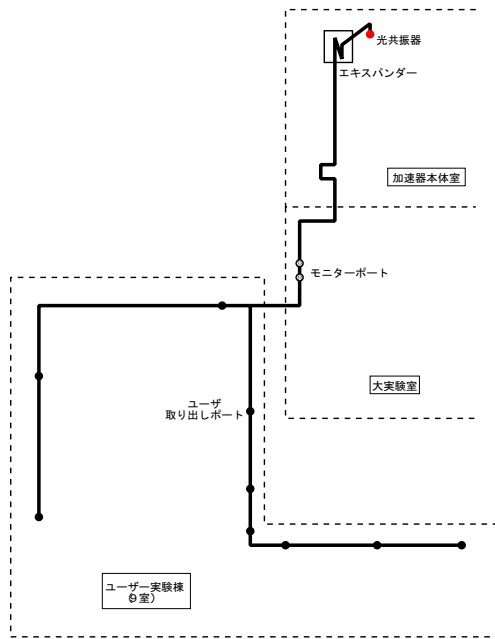


図 2: FEL ビームラインの概略

であり、調整にもよるがマクロパルス当りの熱量として最大で 30 mJ(@モニターポート) が得られている。

2. FEL ビームラインの現状

上流の共振器鏡の穴より取り出された FEL ビームは真空ダクトを通して各実験室まで輸送される。その経路の概略を図 2 に示す。最も遠い実験室までの光路長は 50 m 程になるため、ビームの平行化をする必要がある。そのために楕円面鏡と放物面鏡からなるビームエキスパンダーを導入した。楕円の焦点の一つの位置が上流の共振器鏡のカップリング穴となるように設計されている。鏡を用いているので広い波長範囲に対応できるが、長波長では Fraunhofer 回折による広がりのために損失が生じる。

加速器本体室から隣の建屋にある各実験室への輸送の途中(大実験室)にモニター用のポートを設けている。これは CaF₂ のビームスプリッターと全反射ミラーが切り替え可能な取り出しポートで 2 組設置されている。全反射鏡は FEL 発振の立ち上げ調整時に使用し、ユーザーへの供給時には CaF₂ ビームスプリッターで常時監視できるようになっている。しかしながら、現在のビームスプリッターの配置では FEL の偏光方向が s-成分となってしまうため、片面あたり 7.27%(波長: 3 μm)、2 枚のビームスプリッタートータルで 26% の損失が発生する。また、長波長では輸送中の平行ビーム径が大きくなるため、ビームスプリッター通過時に欠損が生じる。共振器鏡カップリング穴の直径が 0.4 mm の場合の輸送中に生じるロスの状況を図 3 に示す。ここで、回折ロスとはモニターポートのビームスプリッターでの欠損が原因と仮定して計算したものであり、反射ロスは末端の取り出しポートまでの 17 枚のアルミ鏡とモニターポートの 2 枚のビームスプリッターの表面反射によるものである。回折

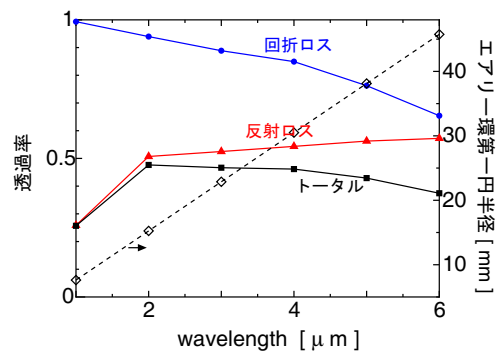


図 3: FEL ビームライン透過率

ロスに関しては、欠損による空間モードの歪みに起因するものが加わり、長波長ではさらに深刻になると思われる。

3. FEL ビームの特性

3.1 FEL のパルス特性

LEBRA の FEL システムはマクロパルス幅 20 μs の S-band リニアックを用いており、しかも間引き運転をしていない。FEL のパルス構造はこれに依存し、発振の状態にもよるが幅 5–10 μs のマクロパルスの中に 2856 MHz のマイクロパルスが存在している(図 4)。マイクロパルスは幅 1 ps 以下と推定されるため、現在所持している測定システムでは直接観測することができない。実際に測定しているのはマクロパルスの挙動である。

FEL の原理的な特性として共振器長 detuning に対する依存性が挙げられる。FEL においては光共振器は遅延回路の役割を果たしており、電子ビームバンチの周波数に合わせて設計されている。ここで電子ビームが媒質として振る舞い光パルスがわずかに遅延するため、共振器長を少し短くしたところで電子から光へのエネルギー変換効率が最大となる。一般的に detuning が十分大きい時はゲインが大きくなる反面、低いレベルで飽和に達してしまい、detuning が小

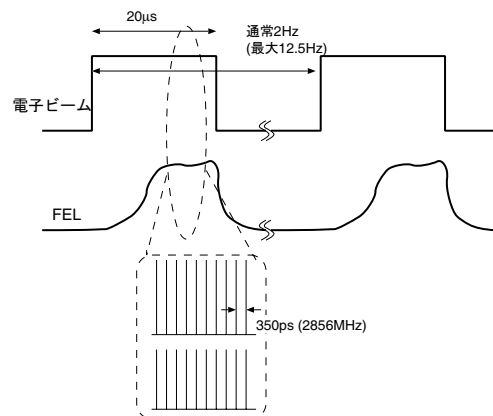


図 4: FEL のパルス構造

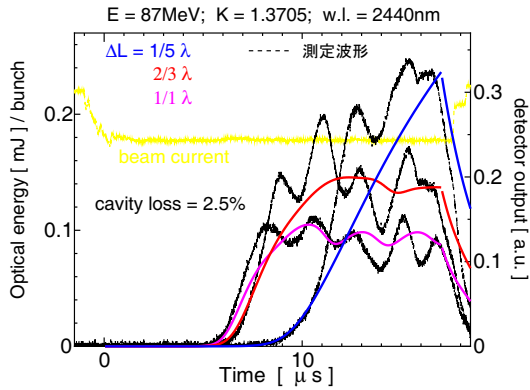


図 5: FEL パルス波形の共振器長 detuning 依存性

さいとアンジュレータ周期数が少なくなるのと等価であり、ゲインが小さく飽和レベルの高い発振となる。図 5 は共振器長を変えたときの FEL 発振波形の変化を示しており、ビームバンチ長を 0.6 ps、共振器ロス を 2.5% と仮定した場合の数値計算シミュレーションと比較している。シミュレーションは自己増幅自発放射 (SASE) 型 FEL で実績のある GENESIS というコードを共振器型に応用して行った。定性的にはほぼ理論通りの振る舞いになっている。

3.2 熱量とピークパワー

LEBRA FEL はマクロパルス中に多数のマイクロパルスを持つ構造となっており、マクロパルスの積分エネルギー (熱量) とマイクロパルスのピークパワーは必ずしも線形な関係ではない。波長 2440nm での共振器長 detuning と得られるマクロパルス当りの熱量の関係を図 6(上) に示す。電子ビームの軌道変動や共振器の振動の影響を受けていると思われるが、測定値とシミュレーションは良く一致している。マイクロパルスの形状については、干渉計による自己相関測定で 1 ps 以下の幅であることが確認されているが、これは長時間の測定での平均であり、現在の測定系では 1 ショット測定はできない。そこで、図 6(下) のシミュレーション結果で議論すると、マクロパルス当りの熱量が最大になるのは detuning が 0.5~1 波長程度になるところであるが、マイクロパルスのピークパワーに関しては 0.2 波長のときの方が大きく、パルス幅も 100 fs 程度と非常に狭い。この場合、共振器内のピークパワーの計算値は 1 GW 近くになっているので、実際に取り出した FEL ビームに関しても数 10 MW のピークパワーを実現している可能性がある。

マクロパルス当りの熱量が同じでも detuning によってはマイクロパルスのピークパワーは 1 桁近く変わり得る。従って、ピークパワーに強く依存するような応用の場合は、マクロパルスの熱量の測定値だけでなく、共振器長 detuning の状態も把握することが重要となる。しかしながら、detuning の小さい状態は共振器長の変動に関して敏感で不安定になりやすく、パルス幅が狭いためスペクトル幅は原理的に広がることを考慮する必要がある。

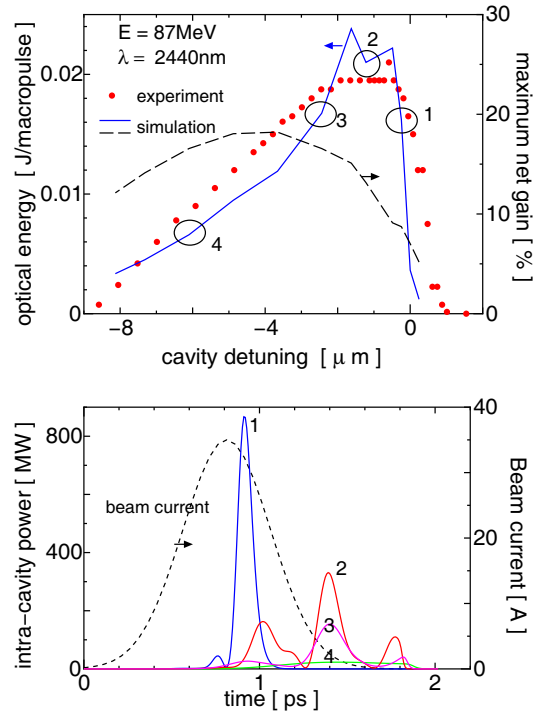


図 6: 共振器長 detuning 曲線

3.3 RF 位相変調による熱量増大

共振器長 detuning に対する依存性を考えると、マクロパルスの最初の段階ではゲインを大きくするために detuning を大きくしておき、飽和に近づくにつれて飽和レベルが高い detuning の小さい状態にシフトさせていけば、獲得できるマクロパルス当りの熱量は大きくなる。図 7(上) は共振器長 detuning を 2 波長か

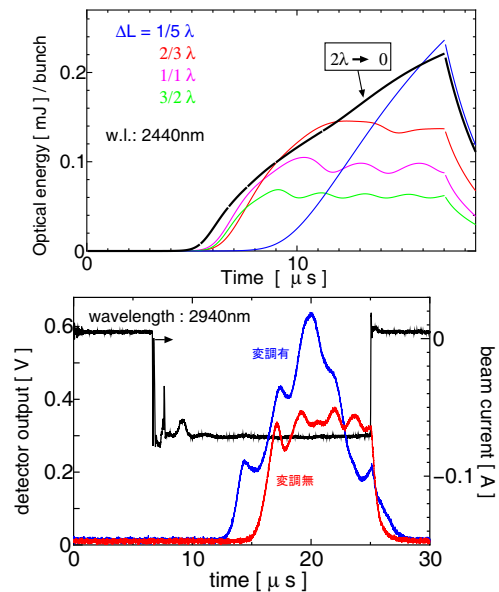


図 7: (上): 共振器長 detuning の変調効果; (下): RF 位相変調の有無での FEL 波形の変化

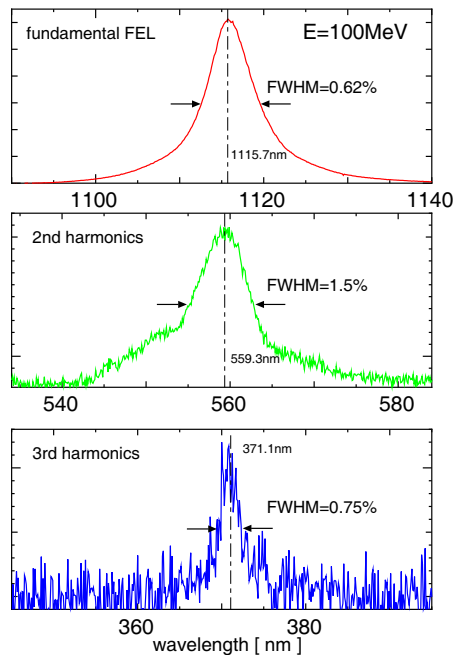


図 8: FEL 基本波と高調波のスペクトル

ら 0 へ徐々にシフトさせた場合を仮定して実行したシミュレーションの結果である。通常の発振に比べ、1.5~2 倍程度の熱量増加が見込まれる。

現状のシステムにおいてマクロパルスの途中で共振器長を精度よくコントロールして変化させるのは困難である。しかしながら、マスターオシレータに制御信号を入力しリニアックを駆動する RF の位相に変調を加えることにより、共振器長を変化させるのと等価な効果を生み出すことができる。実際に波長 2940nm で RF 位相変調を加えたときの結果が図 7(下)である。この時のマクロパルスの熱量はモニターポートのところで 6.3 mJ から 9.8 mJ へ約 1.5 倍増加した。波長が異なるがシミュレーションの予測とほぼ一致する結果が得られたことになる。しかし、RF 位相変調による熱量増大はマイクロパルスのピークパワー向上を意味するものではないので注意が必要である。

3.4 高調波とスペクトル

LEBRA FEL においては、基本波の FEL 発振に伴って高調波の増幅が観測されている。これは HGHG (high gain harmonic generation) と呼ばれる現象で、FEL の分野では近年特に精力的に研究されている。波長 1115 nm で FEL 発振したときに測定された基本波および 2 次、3 次高調波のスペクトルを図 8 に示す。高調波の波長はほぼ正確に基本波の 1/2, 1/3 となっていることから、この現象はマイクロバンチ形成に起因するコヒーレント放射によるものと推定できる。

この基本波と高調波の波長の関係は、FEL 発振の波長モニタリングをするのに非常に便利である。基本波の波長が 1100 nm 以上になると、シリコン CCD の検出効率が低くなってしまいうため 1 ショットでのスペクトル測定が困難になるが、InGaAs アレイ検出器に取

り替えても 3 μm までの波長しかカバーできない。検出器交換に掛かる労力を考慮すると、可視領域の高調波を使って波長モニタリングするのが合理的である。

高調波に関しては、主に 400~500 nm および 800 nm 付近の波長領域で利用実験への供給を既に行っているが、HGHH は 1 パスでの増幅過程であり、しかも共振器からは穴による取り出しのため、電子ビーム軌道や共振器鏡の角度調整によって取り出し強度が大きく変わってしまう。このため、供給は行っているが定量的にはコントロールできていないのが現状である。

また現状では未確認であるが、調整如何では 3 次高調波での FEL 発振の可能性も捨てきれない。高調波の安定供給実現のためにも更なる研究が必要である。

4. まとめ

LEBRA FEL は 840 nm~6.1 μm という広い範囲での FEL 発振を実現しており、強度もマクロパルス当りの熱量で最大 30 mJ を達成している。しかし、短波長や長波長領域では輸送経路でのロスのためにユーザに届くのは数 mJ 程度である。また、FEL の原理的な性質を利用して RF 位相変調による熱量増大などを行っているが、応用研究側でも FEL 特性を考慮した実験手法の確立が求められる。

FEL 発振に伴って増幅された高調波の波長が基本波の 1/整数となっていることが確認され、実際に波長モニターとして利用している。安定性の問題はあっても、利用研究への高調波の供給も開始している。

参考文献

- [1] Y. Hayakawa, et al., Nucl. Instrum. Methods A **483**, (2002) 29.
- [2] Y. Hayakawa, et al., Nucl. Instrum. Methods A **507**, (2003) 404.
- [3] K. Hayakawa et al., Proc. of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, (2004) 649.
- [4] Y. Hayakawa et al., Proc. of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, (2004) 652.

FEL供給ラインの現状とエキシマレーザの重畳

森 啓¹⁾, 早川恭史¹⁾, 佐藤勇¹⁾, 早川 建¹⁾, 田中俊成¹⁾, 桑田隆生¹⁾,
野上杏子¹⁾, 境武志¹⁾, 中尾圭佐²⁾

1) 日本大学量子科学研究所電子線利用施設

2) 日本大学大学院量子科学専攻

1. 緒言

日本大学電子線利用研究施設(LEBRA)では2001年5月の自由電子レーザ(FEL)発振確認以降、発振波長域の拡大・強度の向上と言った線源の改良と共に、利用者実験設備の整備を進めてきた。また2003年に物性や生体実験に利用するため高出力のエキシマレーザを導入したが、実験スペースが狭いと言う問題と、FELとの同時照射の要望が出ていた。そこで2004年になりエキシマレーザをFELに重畳し、各実験室で用いられるようにする作業に着手した。

本稿ではFEL供給ラインの設計と現状及びエキシマレーザの重畳の現状について述べる。

2. FEL供給ライン

LEBRAの施設平面図をFig.1に示す。FEL発振時に於いて加速器本体室には当然立ち入ることは出来ない。また大実験室もFELのラインにはモニターシステムが設置されており、狭いスペースで装置を取り替えながら実験を行うのも多くの共同利用者がいる中では現実的とは言えない。そこでLEBRAでは2001年3月に新実験棟を建設し、2003年7月に新実験棟にFEL伝送用のビームラインを設置した。

新実験棟は9個の実験室を備え、各部屋にFELの取り出しポートを設置し、それを中心に各実験グループで装置を組み立てられるようにしている。各

実験グループは組み立てた実験装置に必要なに応じて取り出しポートからFELのビームを照射すれば良いことになる。なお、FELの伝送はピットの下に設置したΦ100mmの真空ダクトで行っている。

取り出しポートの一例をFig.2に示す。ビームラインに対し45度で取り出し用のミラーを待避・挿入できるようにになっている。ミラーの挿入を行うと、ビームは上に跳ね上げられ、床から90cmのところミラーにより水平に曲げられて取り出し用の窓から取り出せるようになっている。窓の前には安全のため鉄製のシャッターを設置し、ポートには各実験室や制御室との間で信号を交換するために3個の端子が設置されている。

FEL伝送ラインの光学素子としてはミラーと窓が上げられる。ミラーはFELの発振予定波長域(300nmから5μm)において高い反射率を有し、かつ平行度を高く取れるようにガラス表面にアルミコーティングしたものをを用いている。窓材は2種類有り、初期は250nmから4μmの波長域で透過率がフラットで高く、かつ強度があるサファイヤを用いていた。しかし5μm以上や300nm以下の波長域でも実験できるように、150nmから8μmの領域で90%以上の高い透過率を有するCaF₂を目的に応じて一部実験室に導入している。FELキャビティから各実験室までのミラー枚数及び取り出し窓の材質をTable.1に示す。

アライメントは加速器本体室に半導体レーザ設置し、ハーフミラーを介してキャビティに挿入しカップリングホールから取り出している。このレーザ光を基準に各素子を調整している。利用者実験の際は

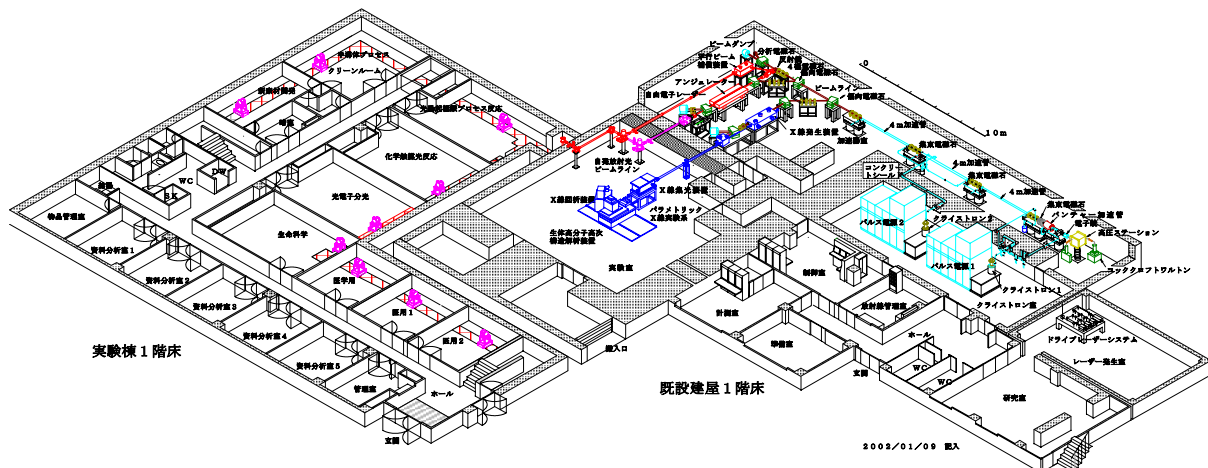


Fig.1 LEBRA平面図

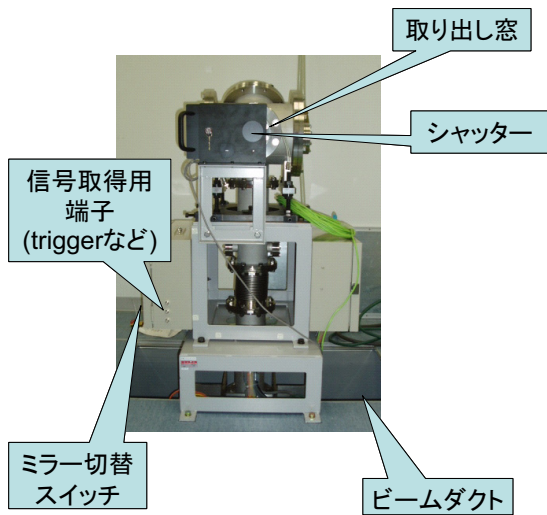


Fig.2 取り出しポート

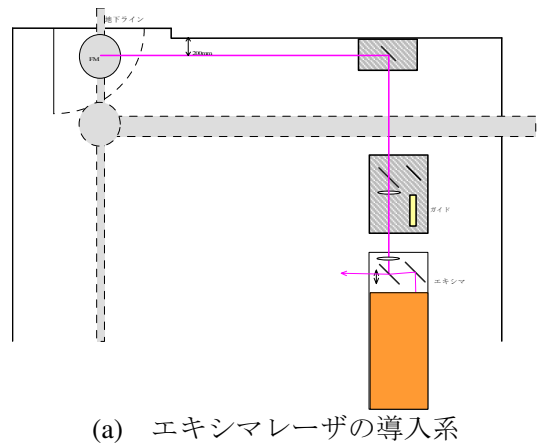
Table.1 各実験室までのミラー枚数と窓材

実験室名	Alミラー枚数	窓材
半導体プロセス実験室	16	サファイヤ
新素材開発実験室	16	CaF ₂
光励起極限プロセス反応実験室	15	CaF ₂
化学触媒光反応実験室	16	サファイヤ
光電子分光実験室	16	CaF ₂
生命化学実験室	16	CaF ₂
医学用実験室	17	サファイヤ
医用実験室 I	17	サファイヤ
医用実験室 II	17	サファイヤ

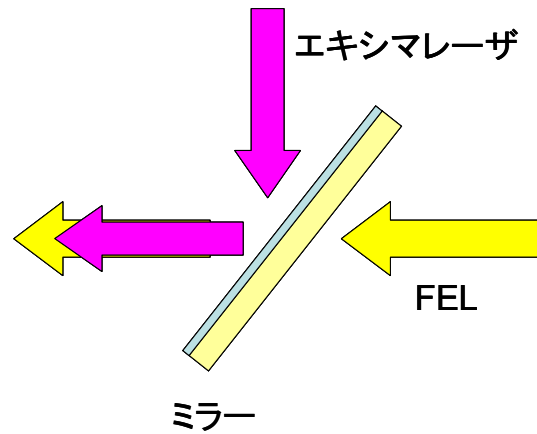
アライメントレーザが運転時立ち入れない本体室にあると問題が起きたときに対応できないため、大実験室に別のアライメントレーザ(アルゴンイオンレーザ)を設置し、前記の半導体レーザと軸をあわせることで一般に利用している。

3. エキシマレーザの重畳

エキシマレーザとしてはラムダフィジックス製 ComPex201 (ArF : 400mJ/pulse、KrF : 600mJ/pulse) を導入した。場所は管理区域では排気の問題があるため、FEL供給ラインの最上流にあたる、光励起極限プロセス反応実験室に設置している。このエキシマレーザを長距離伝送し、FELと重畳するラインの設計をFig. 3(a)に示す。ビームの広がりや極力抑えるためにケプラー型のエクスパンダーを設置し(下流のレンズを平行移動して波長の変化に対応できるようにしている)、ガイドレーザの重畳系を挟み、ミラーで方向を変えて、最終的にFELのビームラインに上から照射している。FELとの重畳用ミラーの模式図をFig. 3(b)に示す。特徴として、FEL



(a) エキシマレーザの導入系



(b) エキシマ・FEL重畳ミラー



(c) エクスパンダー前置光学系

Fig.3 エキシマレーザの重畳光学系

の波長域(300nmから5μm)は全透過、エキシマの波長(193nm、246nm)は全反射というスペックが要求される。そこでCaF₂ミラーに多層膜コートを行うことでこのスペックを満たすミラーを作成した。なお、エキシマの光学系に於いてミラーは紫外線用のアルミミラー、FELラインへの窓は無水合成石英を用いた。エクスパンダーの前置光学系のミラーの1枚を待避できるようにし、エキシマレーザのみを使いたい利用者の要望に応えられるようにしてある(Fig. 3(c))。

以上の光学系を調整した後、実際にエキシマレーザをFELのラインに重畳させ、光電子分光実験室の取り出しポートから取り出したときのエキスパンダーからの距離に対するエキシマレーザのパワー特性をFig. 4に示す。波長の長いKrFの方がミラーの反射率も高く、ビーム発散も少ないのでArFよりも効率よく伝送出来ていることが分かる。また双方とも、エキスパンダー直後からビーム広がり減衰すると共に、ミラーの毎に減衰している。しかし導入ポートの先で取り出すまでの間の真空ダクトの中で急激に出力が減衰しており今後検討を要する。エキシマレーザの伝送損失が大きい理由としては現在、単一モードでないためエキスパンダーでの平行化に限界があること、紫外線用アルミミラーの損失がそれなりに有ること(特にArFにおいて)、FELのビームがダクト中心を通っておらずそれに重畳させたエキシマレーザ光の一部がミラーの枠などに蹴られていることなどが考えられる。なお取り出せたエキシマレーザの出力はArFで5.5mJ、KrFで15mJであった。

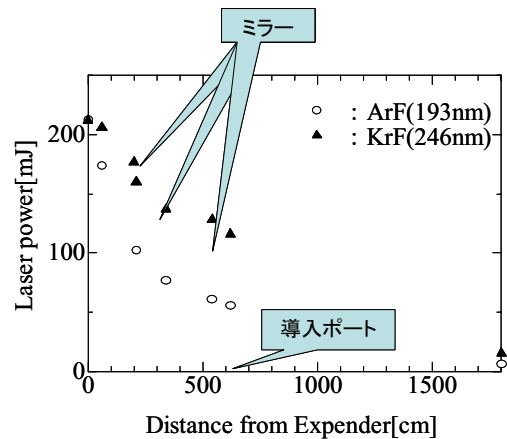
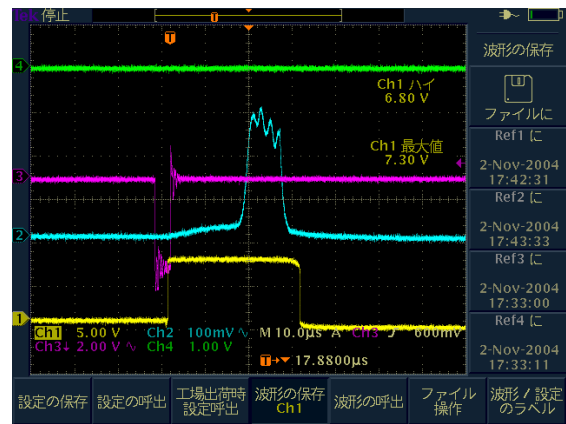


Fig.4 エキスパンダーからの距離に対するエキシマレーザのパワー特性

Fig. 5はFELとエキシマレーザの同期試験の結果である。クライストロンのトリガーで直接エキシマレーザを発振させた場合(Fig. 5(a))はエキシマレーザの発振開始から約 $17\mu\text{s}$ 後にFELが発振した。なおエキシマレーザのパルス幅は $30\mu\text{s}$ でありFELの発振後は同時照射になっている。Fig. 5(b)はトリガーを遅延回路により $17\mu\text{s}$ 遅らせてエキシマレーザに加えた発振させた場合であり、FELの発振開始と、エキシマレーザの発振開始のタイミングの同期が取れていることが分かる。なお、ジッターに関してはエキシマレーザにおいては 100ns 単位での変化は見られなかった。

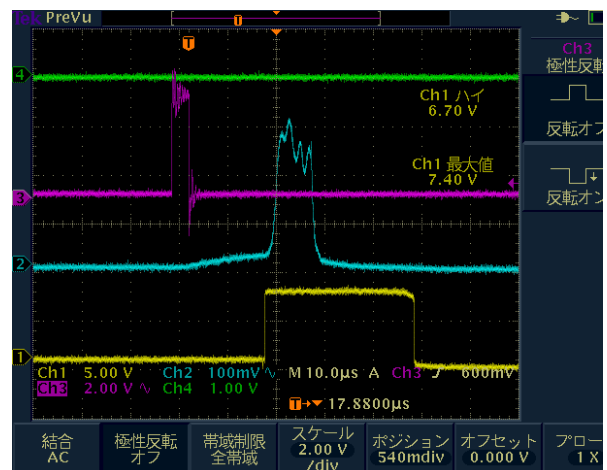


(a) 遅延回路を挟まない場合

4. 成果と問題点

成果としては

- 9個の実験室でミラーの挿入を行うだけでFELビームを自由に取り出せることが出来た。
 - エキシマレーザをFELのラインに重畳できた。
 - エキシマレーザとFELの同期を自由に調整できるようになった。
- と言ったことが上げられる。一方問題点や今後の課題としては、
- FEL取り出しポートに於いて、ミラーの挿入機構のストッパーがゆるみ取り出しポートから取り出すビームの位置がずれることがある。
 - 多数のミラーやモニターポート、ダクトの狭いところなどの影響で伝送損失が大きい。
 - 取り出しポートから取り出されるエキシマレーザの出力が小さい。
 - エキシマレーザ照射時の自動表示装置の整備。などがあげられる。



(b) $17\mu\text{s}$ エキシマレーザを遅延させた場合

Fig.5 FELとエキシマレーザの同期試験
マゼンタ：トリガー
黄色：エキシマレーザ出力
シアン：FEL出力

レーザー照射骨芽細胞の遺伝子プロファイリングと Ingenuity Pathway 解析

多田 充裕^{1,3}, 安孫子 宜光^{2,3}

¹ 日本大学松戸歯学部 口腔診断学講座

² 日本大学松戸歯学部 生化学教室

³ 日本大学松戸歯学部 口腔科学研究所

緒言

低出力レーザーは、創傷治癒促進、疼痛緩和、局所血流量の改善などの効果が知られており、慢性関節リウマチを中心とした関節炎の治療などに用いられている。口腔領域においても、象牙質知覚過敏症、口腔内手術後の治癒促進などのほか、顎関節症の理学療法として疼痛緩和に用いられている。また、一方では低出力レーザーの効果を心理的なプラセボ効果が大きいとする考えや、低出力レーザーは臨床応用が試行錯誤的に実施されて効果のあった事象だけが誇張されているという懐疑的な意見もある。さらに低出力レーザーに対しての生物学的効果は単なる温度上昇効果によるものであろうとする意見や副作用に対する十分な検討が行われていないという指摘も依然として存在する。低出力レーザー照射装置の開発が進展しているなか、低出力レーザーの生物学的効果のメカニズムに対する解明は遅れているといわざるを得ない。このような背景から低出力レーザーを用いた治療をさらに推進、発展させるためには、低出力レーザーの生物学的効果を実証科学的に解明していく必要があると思われる。

マイクロアレイは、包括的な遺伝子発現のモニタリング、ゲノムの変異・多型性の検出などを行う、生物、医学、物質生産分野で注目されている技術の一つである。このマイクロアレイは製造方法から Stanford 方式と Affymetrix 方式の2種類に分類される。後者は GeneChip と呼ばれており、一度に数万もの遺伝子の動きを見られる強力なツールであり、遺伝子レベルでの病態、細胞の分化メカニズム、遺伝子多型のハイスループットで高精度の解析を可能にする。他生物におけるゲノム解析のドラフトが公表された現在、ようやく遺伝子発現解析と関連解析が現実的に可能になったと考えられる。

本研究では、正常ヒト骨芽細胞に低出力レーザーを照射して全 RNA を抽出し、Gene Chip による低出力レーザー照射応答遺伝子のトランスクリプトーム解析を行い、さらに Ingenuity Pathway 解析を行って、低出力レーザーの生物学的効果の作用機序を試みた。

材料および方法

1. 細胞培養

骨芽細胞としてヒト正常組織から分離した正常ヒト骨芽細胞 (Clonetics 社) を用いた。10% Fetal Bovine Serum、Gentamicin/Amphotericin-B 100 µg/ml、Ascorbic Acid 100 µg/ml、Hydrocortisone 100 µg/ml、β-Glycerophosphate 100 µg/ml を含む Osteoblast Growth Medium (Clonetics 社) を用い 37 °C、5 %CO₂、95 %air の条件下でインキュベーター内で培養を行った。

2. レーザー照射装置および照射条件

低出力レーザー照射装置は Ga-Al-As 半導体レーザー照射装置（松下電器産業社：ZH-M143DJR）を用いた。本実験では出力 8 W で総照射エネルギー密度 1.40 J/cm^2 となるよう 20 msec、duty 10% のパルス照射を 10 分間行った。細胞培養プレートから 300 mm の距離より垂直方向に照射し、直径 130 mm、面積 133 cm^2 の均一な照射野を得ることができるようにした。培養細胞が $5,000 \text{ cells/cm}^2$ になるように培養用 dish（直径 100 mm）に播種し、播種 1 日後よりレーザー照射を行った。

3. 全 RNA の抽出および精製

照射後 3、6、24 時間および 3、6、12、18、24 日の 8 point について全 RNA の抽出を行った。全 RNA の抽出は、RNeasy Fibrous Tissue Mini Kit（QIAGEN 社）に Fast PREP system を併用したプロトコールに従って行った。分離後、RNA の濃度は吸光光度計（Amersham Biosciences 社）にて、RNA の純度は Bioanalyzer（Agilent Technologies 社）にて確認した。分離した全 RNA は oligo [dT]₃₀ プライマーを用いて逆転写し、cDNA を合成し、二本鎖にしたのち in vitro transcription 法により、ビオチン標識 cRNA プローブを作製した。

4. Genechip 解析

10 μg の標識 cRNA をハイブリダイゼーションミクスチャーに混合し、GeneChip 上で 42°C、16 時間ハイブリダイゼーションを行った。洗浄および蛍光標識されたストレプトアビジンで染色した後、蛍光スキャナーにて各遺伝子のシグナル強度を測定した。発現解析は Genespring 遺伝子発現解析ソフト（Agilent Technologies 社）にて行った。Global normalization を行った後、不良データを除去したものを解析対象とした。

5. Ingenuity Pathway 解析

Gene chip 解析によって得られた遺伝子データについて、シグナル伝達系統合データベース Ingenuity Pathway Analysis システムを用いて Ingenuity Pathway 解析を行なった。

結果

低出力レーザー照射によって遺伝子発現が変動する遺伝子群を解析した結果、細胞分裂、シグナル伝達関連遺伝子、成長因子、成長因子受容体、イオンチャネル関連因子および Ca 調節因子などの遺伝子の発現が変動していた。さらに 3、12、18 日の 3point の経時的变化について GeneTree 解析を行った結果、骨代謝に関与する遺伝子である β -catenin に変動が認められた。(Fig.1)

経時的な発現パターンの類似性を確認するために 3、6、12、18、24 日の 5point を対象に K-means 解析にて 5 種類のパターンに分類した。そのなかで、低出力レーザー照射にて遺伝子の変動が経時的に増加する群を調べたところ 58 の遺伝子が検索され、そのうちの一つに骨代謝に関与する β -catenin があげられた。(Fig.2 および 3)。また、シグナル伝達系統合データベース Ingenuity Pathway 解析によってレーザー照射は、骨芽細胞の増殖、機能発現に関与する Wnt / β -catenin シ

グナル伝達系に影響していた。(Fig. 4)

考察および今後の展望

これまで培養ヒト骨芽細胞における低出力レーザー照射の効果に関しては骨芽細胞の増殖、分化の促進、オステオグリシン遺伝子の増加、アルカリフォスファターゼ活性の促進、コラーゲン産生の促進に関与すると報告されている。低出力レーザー照射は骨芽細胞だけでなく線維芽細胞、歯髄細胞、歯根膜細胞などにも細胞増殖、抑制、サイトカインの変動など様々な効果があることが報告されているが、いまだ遺伝子レベルでの解析は十分に行われていない。

ゲノム科学を基盤とする研究技術が進化したことにより、ゲノム情報をすべて解読するゲノムプロジェクトの進展とその応用によって先進的な研究が行われている。得られた遺伝子の塩基配列情報をゲノムデータベースと照合することで、その生命現象に関与する遺伝子発現を未知遺伝子も含めて同定することが可能である。

マイクロアレイ解析法の一つにスキャッタープロットを用いた解析がある。この解析は無刺激サンプルと刺激サンプルなど1対1の比較解析によく用いられているが、複数の群や時間依存的な反応をマイクロアレイにより解析する際にはこれらの方法のみで候補遺伝子を絞り込むのは困難である。そのためマイクロアレイの解析には統計的手法としてクラスタリングという手法が用いられている。クラスタリング解析には階層クラスター解析と非階層クラスター解析がある。前者は発現パターンの類似した遺伝子を集めて系統樹を作成することができる方法であり、後者は遺伝子の発現パターンの類似した遺伝子を集めて群にしていくという方法である。今回はそれぞれ Gene Tree 解析および k-means 解析という手法を用いることにより、発現に変動が認められた遺伝子を絞り込むことができた。そのうちの一つに骨代謝に関与する β -catenin があげられた。この β -catenin はカドヘリンを介した細胞培養や細胞骨格形成に重要な役割を果たすと同時に wnt シグナル系の構成因子である。wnt シグナリングは骨形成、骨代謝に重要な役割を演じていることが分かっており、低出力レーザー照射によりこの遺伝子に変動が見られたことは低出力レーザー照射が骨形成、骨代謝に遺伝子レベルで影響を及ぼしていることが示された。歯科領域への低出力レーザーの積極的な応用を更に推進し、発展させるためには実証科学的な方法で作用メカニズムを解明する基礎的研究が必要であると考えられる。

今後の研究の課題として、骨芽細胞に低出力レーザーを照射し、GeneChip 解析の結果、遺伝子発現に変動のみられた β -catenin のような骨代謝に関与する遺伝子について realtime-PCR 法やノーザンブロット法を行い、mRNA レベルが上昇しているかを確認し、これらの遺伝子の転写の促進が、どのように骨芽細胞の増殖、分化に関与するかを検討し、低出力レーザーの生物学的効果を解明するため研究を進めていく予定である。

謝辞

稿を終えるにあたり、本研究におけるレーザー装置の使用にご協力を賜りました、松下電器産業株式会社、金田 明様に深謝致します。

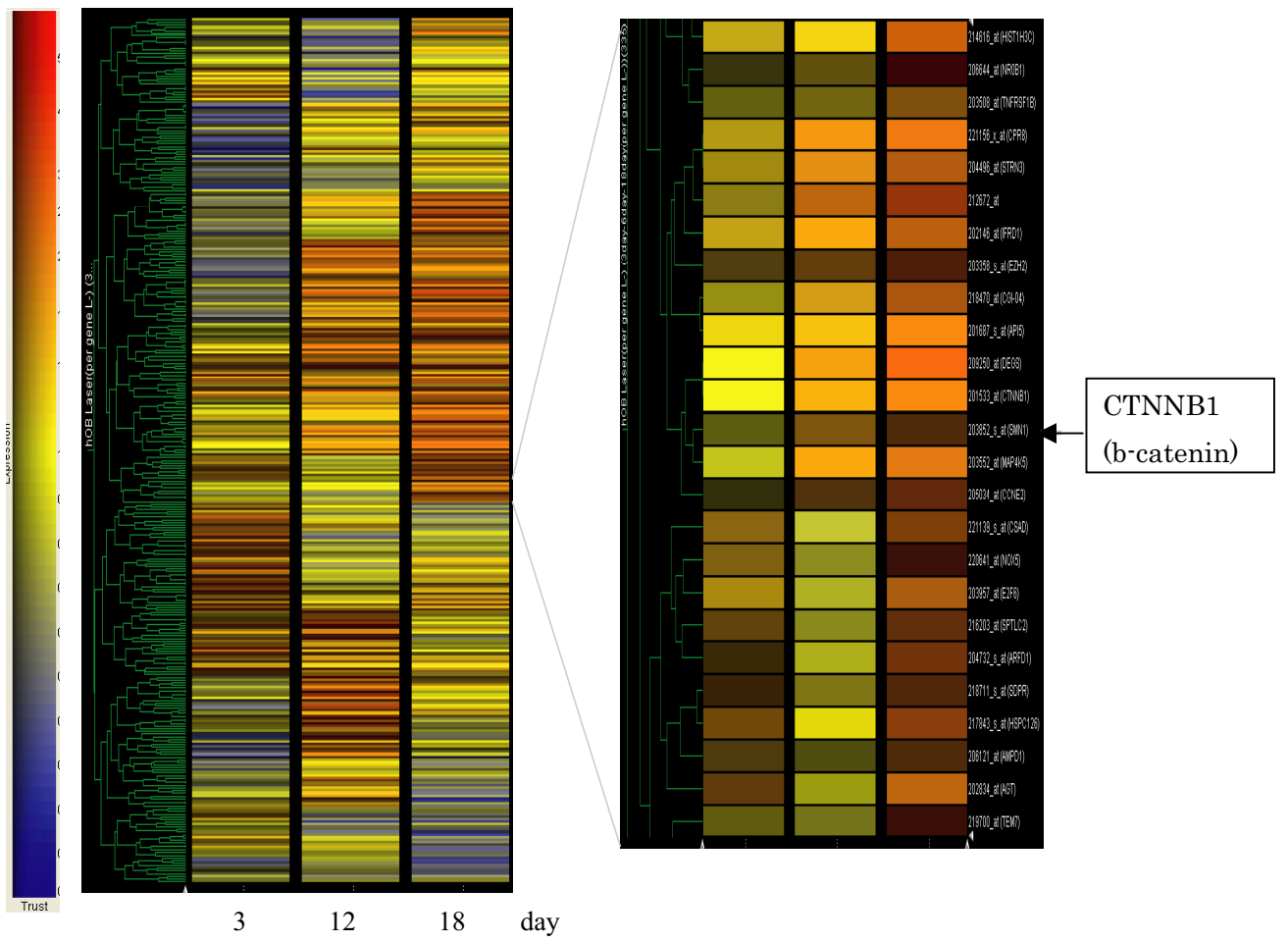


Fig.1 Gene Tree 解析

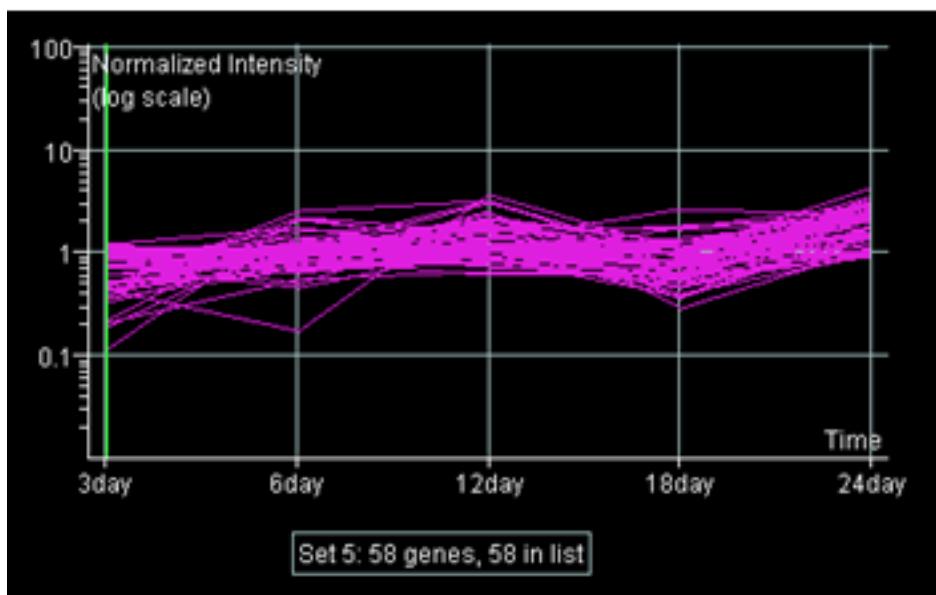


Fig.2 K-means 解析

biglycan	inhibin, beta C
lamin B receptor	nucleoporin 62kDa
ataxin 2 related protein	three prime repair exonuclease 2
24kDaephrin-B1 (regulator G-protein signalling)	ATP-binding cassette, sub-family C member 3
peptidyl-prolyl cis/trans isomerase	FGF receptor 2
stathmin-like 2	solute carrier family 1 member 2
catenin, beta interacting protein 1	centromere protein F, 350/400ka (mitosin)
TNF receptor superfamily, member 1B	pregnancy specific beta-1-glycoprotein 6
vascular endothelial growth factor B	nuclear receptor subfamily 4, group A, member 1
fucosyltransferase 8	retinoblastoma-like 2 (p130)
apolipoprotein B mRNA editing enzyme	1,4- galactosyltransferase,
Na-dependent inorganic phosphate	GNAS complex locus
flap structure-specific endonuclease 1	cytochrome P450, subfamily
GTP cyclohydrolase I serine/threonine kinase 18	thyroid stimulating hormone, beta
ADP-ribosylation factor-like 4	Homer, neuronal immediate early gene, 2
chemokine (C-C motif) receptor 1	integral inner nuclear membrane protein
retinoblastoma binding protein 6	solute carrier family 21 member 11
pleiomorphic adenoma gene 1	dual adaptor of phosphotyrosine and
crystallin, mu	3-phosphoinositides
BTG family, member 3	ceroid-lipofuscinosis, neuronal 8
RAN binding protein 8	highly similar to Zinc finger protein 267
sine oculis homeobox homolog 1	C-type lectin, superfamily member 9
zinc finger protein 74 (Cos52)	cholinergic receptor, nicotinic, alpha polypeptide 10
cytochrome c oxidase subunit	N-acetylgalactosaminyltransferase 4 (GalNAc-T4)
TNF superfamily, member 9	chromosome 1 open reading frame 33
neurotrophic tyrosine kinase, receptor type 2	likely ortholog of mouse tubulin, delta 1
integrin-binding sialoprotein (bone sialoprotein II)	Rac GTPase activating protein 1
toll-like receptor 6	
cholinergic receptor, nicotinic, alpha polypeptide 6	

Fig.3 低出力レーザー照射によって経時的に遺伝子発現の増加が認められた 58 遺伝子

Ingenuity Pathway Analysis

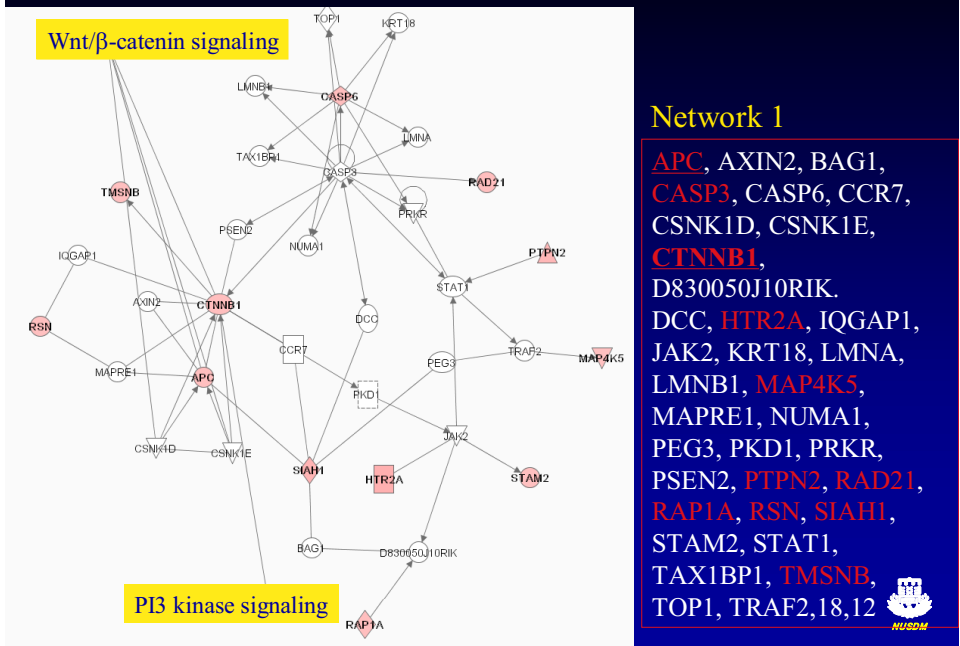


Fig.4 Ingenuity Pathway 解析

自由電子レーザーによる新しい尿路結石治療への試み

吉川哲夫、松井 強、吉田利夫、滝本至得、岡田清己、佐藤 勇 *

日本大学医学部泌尿器科学講座

* 日本大学量子科学研究所電子線利用施設

(背景および目的)

2002年12月に尿路結石症診療ガイドラインが刊行され、治療標準化の試みが達成されつつある。現在、尿路結石症の積極的治療として、低侵襲であるESWL(体外衝撃波結石破碎術)およびEndourology(尿路内視鏡下手術)が一般的に行われており、ガイドラインでも推奨され、その成績は良好である。過去に行われていた開腹手術はガイドラインでは例外的方法として扱われている。

症例数の蓄積に従って、最近ESWLおよびEndourologyにおける治療上の問題点が指摘されるようになった。それらを列記してみる。1)破砕片が荒く不均一になり、治療後の結石自排が困難な状況を生じ、しばしば再治療を余儀なくされること。2)衝撃波による尿路上皮細胞障害が生じ、治療後の結石再発を惹起している可能性のあること。3)尿路内視鏡操作および碎石操作にて尿路損傷を来す可能性があること。

今回、日本大学電子線利用施設において自由電子レーザーを用いた研究が可能になり、理論的に特異的な波長のレーザー光を照射することにより物質固有の現象が誘起される可能性のあることから、尿路結石破碎に利用し、ESWL、Endourologyの問題点を克服する治療法の開発に結びつけることができるかを検討した。

(対象および方法)

実験1:赤外分光分析法によりあらかじめ結石分析の結果が蔞酸カルシウム一水化物(COM)単独結石と判明している患者から提供された尿路結石を用い、照射条件を波長5.75 μm 、10 W/cm^2 、5~10分の照射条件で検体にFELを直接照射、形態変化を肉眼的および顕微鏡的に観察し、照射効果を判定した。

実験2:実験1と同じ検体を用い、その1~2 mgを150~300 mgのKBr粉末と混入してKBr錠剤を作成する。波長は赤外分光分析における蔞酸カルシウムの吸収帯である6.13 μm と2.82 μm の2波長を選択し、実験1と同じ条件でFELを直接照射した錠剤に対し、さらに赤外分光分析を行い、照射前と赤外スペクトルの吸収帯パターンを比較した。

(結果)

実験1:照射前後で肉眼的および顕微鏡的に形態的变化を惹起できなかった(Fig 1)。

実験2:1,630 cm^{-1} (6.13 μm)および3,550 cm^{-1} (2.82 μm)において赤外スペクトル吸収帯パターンの変化を認めた(Fig 2)。

(考察)

FEL照射により、実験1では形態的变化を惹起できなかったが、実験2では赤外スペクトル吸収帯パターンの変化すなわちCOM結石における物質固有の現象が誘起された。このことは結石の分子構造に基づく結石粉碎の可能性を示唆し、衝撃波による碎石に比べかなり細かい碎石すなわち照射により、結石が微細粉末ないしは液状化すると予想される。

臨床的応用を考えると、(背景および目的)の項目で指摘した1)~3)の問題点を克服し、現

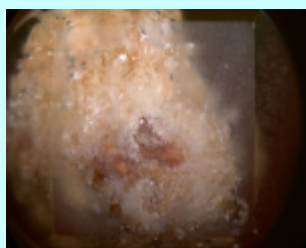
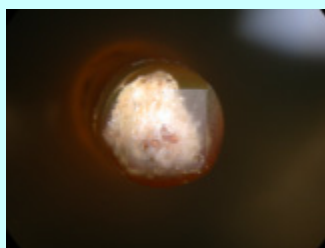
状の治療より低侵襲に尿路結石治療が可能になると考える。ただし現段階では、次に示す 1)~3)の理由により、未だ臨床応用はへのハードルは高い。1)レーザー発振装置が大規模であり、利用可能施設は限定されていること 2)ファイバーへの導光が困難で、Endourology 手術に応用できないこと 3)波長閾によりパワーが不安定になること

当面の解決すべき項目を 1)~3)に示す。1)赤外スペクトル吸収帯を変化させる条件の確立 2)結石の形態的变化を惹起 3)生体への影響を検討

(まとめ)

尿路結石(COM 結石)に対する FEL 照射効果を検討した。FEL 尿路結石患者から提供照射による形態的变化は惹起できなかったが、赤外スペクトル吸収帯パターンの変化を確認した。今後、問題点を解決することにより、低侵襲で新しい尿路結石治療の可能性が示唆された。

結果(実験1)



☆照射前後で肉眼的変化なし。 → 形態的变化を認めない。
☆照射前後で顕微鏡的变化なし。 →

★固体の特性解析(特に赤外分光分析)を試みる。

★レーザー照射後赤外吸収スペクトルが変化する。

5.75 μm → エステル結合解離

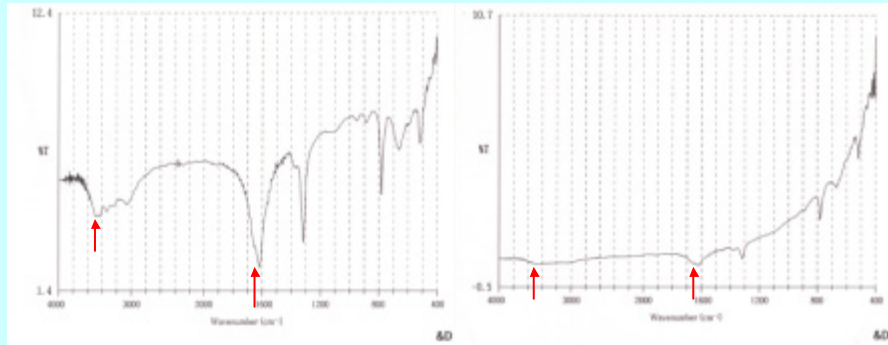
9.40 μm → リン酸基伸縮振動励起

(Fig 1)

結果(実験2)

照射前

照射後



1,630 cm^{-1} および3,550 cm^{-1} において赤外スペクトルの吸収帯パターンの変化を認めた。

(Fig 2)

[O1-7]

酸化物の紫外レーザー光に誘起された価数変化・欠陥生成

藤代史¹, 望月章介²

1. 日本大学大学院総合基礎科学研究科 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)
2. 日本大学文理学部 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)

我々は、酸化ユーロピウム Eu_2O_3 について紫外レーザー光に誘起された価数変化($\text{Eu}^{3+} \rightarrow \text{Eu}^{2+}$)や酸素欠陥構造の生成・消滅を伴う逆行可能なフォトメモリ現象の発見に引き続いて、その他酸化物についても研究を進めて、 Sm_2O_3 , $\gamma\text{Al}_2\text{O}_3$, $\text{Eu}_2\text{O}_3\text{-gAl}_2\text{O}_3$, silica glass, anatase TiO_2 , AgI-anatase composites, AgI-ZnO composites, AgI-ZrO₂ composites, LaAlO_3 , SrTiO_3 についても同様な紫外レーザー光に誘起されたフォトメモリ現象を発見した。

この講演ではこれらについての以下に掲げる論文の内容を要約して講演した。

S. Mochizuki, F. Fujishiro and S. Minami

"Photoluminescence and reversible photo-induced spectral change of SrTiO_3 "

Journal of Physics: Condensed Matter 17 (2005) 923-948.

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Photoluminescence studies on AgI-ZrO₂ composites"

Journal of Luminescence 112 (2005) 71-74.

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Photoluminescence studies on AgI-ZrO₂ composites"

Journal of Luminescence 112 (2005) 71-74.

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Structural- and optical studies on mesoscopic defect structure in highly conductive AgI-ZnO composites"

Physica B 340-342 (2003) 216-220.

S. Mochizuki and H. Araki

"Reversible photoinduced spectral transition in $\text{Eu}_2\text{O}_3\text{-}\gamma\text{Al}_2\text{O}_3$ composites at room temperature"

Physica B 340-342 (2003) 913-917.

S. Mochizuki

"Intense white-luminescence of Sm_2O_3 irradiated with ultraviolet laser light under vacuum"

Physica B 340-342 (2003) 944-948.

S. Mochizuki, T. Shimizu and F. Fujishiro

"Photoluminescence study on defects in pristine anatase and anatase-based composites"
Physica B 340-342 (2003) 956-959.

S. Mochizuki and H. Araki

"UV-laser-light-produced defects and reversible blue-white photoluminescence change in silica"
Physica B 340-342 (2003) 969-973.

S. Mochizuki and F. Fujishiro

"Structural, electrical and optical studies on AgI-anatase composites"
Journal of Physics: Condensed Matter 15 (2003) 5057-5072.

S. Mochizuki, T. Nakanishi, Y. Suzuki and K. Ishi

"Reversible photoinduced spectral change in Eu_2O_3 at room temperature"
Applied Physics Letters 79 (2001) 3785-3787.

S. Mochizuki, Y. Suzuki, T. Nakanishi and K. Ishi

"Valence-change and defect-induced white luminescence of Eu_2O_3 "
Physica B 308-310 (2001) 1046-1049

フラーレンポリマーの創製

山本寛¹、岩田展幸¹、石川貴之¹、橋本亮二¹

1 日本大学理工学部電子情報工学科(〒274-8501 船橋市習志野台 7-24-1)

1. 序論

1985 年に Kroto と Smalley によって C_{60} が発見され、1990 年にレーザー蒸発クラスター分子線による多量合成法が発見された。それに伴って C_{60} に関する研究が世界中で活発になった。そして、 C_{60} を用いた合成物質の研究も盛んに行われ、その合成方法、構造、特性などが議論されてきた。その一端を担うのが、 C_{60} ポリマーの研究である。1、2 次元で合成される C_{60} ポリマーについては、すでに数多く報告された。例えば、 C_{60} ダイマー^[1]、紫外線照射によって合成される 2 次元 C_{60} ポリマー^[2]、高温高压下で合成される 2 次元 C_{60} ポリマー^[3-5]などである。そして、ごく最近になって様々な条件下での 3 次元 C_{60} ポリマーの合成について研究^[6-8]が行われている。それは、超高压下で合成されるものと超高压高温で合成されるものがほとんどである。これらの方法によって合成される 3 次元 C_{60} ポリマーについては、条件によって様々な状態をとることが報告されているが、それぞれが目的としている物質が得られていないのが現状である。

一方、吉田らによって、グラファイトからではあるが、ボロンによりホールをドーピングすることで層間を共有結合させブラックダイヤモンドを製造したという報告がある^[9]。グラファイトがダイヤモンドになるというこの報告は、本研究において、超材料を合成する有力な手がかりとなる。

本研究の目的は、ハロゲンを用いて C_{60} にホールをドーピングした状態でレーザーを照射するという新しい方法を用いることによって超硬質、超軽量、超柔軟という驚異的な特性を持つ 3 次元 C_{60} ポリマーを構想し、その特性を分子軌道計算と実験の両面から明らかにするところにある。

2. C_{60} のポリマー化

C_{60} 分子の π 電子による二重結合の一部が切れ、隣接する C_{60} 分子（モノマー）間に架橋（共有結合）が生じた状態 $(-C_{60}-)_n$ を C_{60} ポリマーという。図 1 に 1、2 次元で合成される C_{60} ポリマーの結晶モデルを示す。 C_{60} 自体のポリマー化という概念は、Rao ら^[10]によって光照射した C_{60} 薄膜に対して提唱されたが、それ以外にも高温高压処理や電荷移動（アルカリ金属のインターカレーション）や電子線照射などでもポリマー化することが報告されている。 C_{60} ポリマーの特徴としては、 sp^3 結合の出現、分子間距離の短縮化、対称性の低下、分子内 C=C 伸縮振動のソフト化、有機溶媒に不溶などがあげられる。 C_{60} ポリマーは準安定状態であり、加熱するともとのモノマーに戻るといった特徴もある。

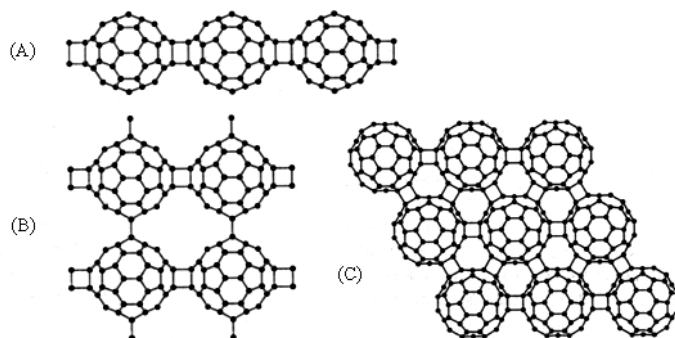


図1 C_{60} ポリマーの 1 次元、2 次元のモデル

固体 C_{60} 薄膜に光を照射すると隣接する C_{60} 分子が共有結合でつながったポリマーになる。これはレーザー脱離質量分析で 60 の整数倍のピーク $(-C_{60}^-)_n$ が $n=20$ まで観測されることにより確認された。IR およびラマンスペクトルには C_{60} 分子の対称性の低下により、それまで縮退していた分子振動による多くの新しいピークが出現した。また、基本的な格子構造は変化しないが、X 線回折のピークが約 20% 広くなり、 C_{60} 分子間の距離が約 0.1 Å 短くなる。

その反応機構として光環化付加反応 (2+2) が提唱された。隣接する C_{60} 分子の (C=C) 二重結合が平行でかつ 4.2 Å より近い距離にあるときに光強度約 50 mW/mm² 以上の光が当たると、2+2 環化付加反応によって隣接分子をつなぐ 4 員環が形成される。 C_{60} の吸収端 (~1.7 eV) より長波長の光ではこの反応は起こらない。光ポリマー化は C_{60} が自由に回転している 260 K より高い温度でのみ進行する。固体 C_{60} が酸素と結合していると光誘起ポリマー化は起こりにくい。いったんポリマーになっても、~200 °C に加熱すると元の分子に戻る。

高温高压処理を施した C_{60} はまったく新しい凝集相を形成する。岩佐ら^[11]は酸素を遮断した雰囲気中で結晶を高温高压 (300~800 °C , ~5 GPa) で 1 時間処理した後、常温常圧に戻した試料を X 線回折、IR 吸収、ラマン分光により分析した。その結果、熱処理温度が 300~400 °C の範囲では格子定数の縮まった fcc (F) 相が、500~800 °C では菱面体 (R) 相が得られることが明らかになった。彼らは高温高压処理によって生まれた C_{60} の新しい凝集相について、 C_{60} 分子間に化学結合があることは示唆しているが、ポリマーという言葉は使っていない。700 °C - 4 GPa (82 % R , 18 % T) と 600 °C - 3 GPa (65 % R , 35 % T) では 2 次元的な菱面体 (R) 相と正方晶 (T) の混合物が、また 300 °C - 8 GPa では 1 次元的な斜方晶 (O) が得られた。さらに低温低压 (300 °C - 1 GPa) で C_{60} 単結晶を斜方晶のポリマーにすることができる^[2,8]。700 °C - 8.5 GPa では 80 % の 2 次元-R 相と共存して面間の結合により c 軸が短くなった 3 次元ポリマー相が現れる。^[12]

一方、固体 C_{60} にアルカリ金属やアルカリ土類金属をインターカレートすると種々の組成比のインターカレーション化合物 (A_xC_{60}) ができる。その中で 1:1 の化合物 A_1C_{60} ($A=K, Rb, Cs$) は 400 K 以上では fcc の NaCl 構造をとる。これを室温まで冷却すると fcc の (110) 方向に C_{60} 分子の重合が起こり、体心斜方晶 (orthorhombic ; $a=9.12 \text{ \AA}$, $b=10.10 \text{ \AA}$, $c=14.26 \text{ \AA}$) の 1 次元的ポリマー構造をとる。このことは、粉末 X 線回折により示された。^[13]

3. 3 次元 C_{60} ポリマー

C_{60} の炭素原子に焦点を移した拡大図 (図 2) を見ると、1 つの炭素原子は二重結合を含む sp^2 的な結合になっている。そこへ外部エネルギーを与えることで、その二重結合を単結合にし、ハロゲン元素によるホールドープの効果で sp^2 的結合よりエネルギー的に安定状態となっている sp^3 的結合へ変移させる。そして、お互いに結合させあい 2 + 2 架橋反応させることで、 C_{60} 分子同士を共有結合させる。ここで、反応した炭素の結合は sp^3 的結合、つまりダイヤモンド的結合になっている。こうしてできた図 3.2 のような C_{60} 分子が 2 つだけ結合している状態を C_{60} ダイマーと呼ぶ。このような結合を多分子系に発展させ、分子スケールで fcc (hcp) 構造をとるとき、我々の望む 3 次元 C_{60} ポリマーとなる。

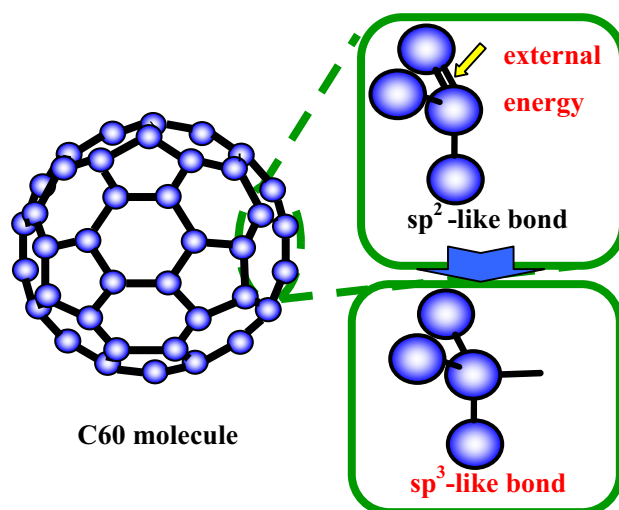


図3 C₆₀ 分子における炭素結合とポリマー化反応の結合変化モデル

先に述べた外部エネルギーとしてレーザー照射による光エネルギーが有用である。ここで、C₆₀ 分子の二重結合を単結合に変化させるのに必要なエネルギーを持つ光の波長を、ベンゼン環の炭素結合のエネルギーをもとに見積もる。ベンゼン環を構成する C=C 結合のエネルギーは 146 [kcal/mol]、C-C 結合のエネルギーは 83 [kcal/mol] であり、結合単体でのエネルギーに換算すると、結合を打ち切るのに必要な光の波長は約 450 nm 以下と見積もられる。この値は、ベンゼン環の炭素結合由来なので厳密に言うと正確な値ではない。だが、ベンゼン環と C₆₀ の炭素結合は大変よく似通っているのでこの値は有用であると考え。また、波長 200 ~ 450 nm の波長の光は、C₆₀ の光吸収スペクトルより吸収されることが確認出来る。光強度については、強力な紫外線を用いてポリマー化を検討した前例がないので未知であるが、マクロスケールで合成するには、ある程度の光子密度が必要となるので、一定値以上の強度が必要であると考え。

ハロゲン元素ドーピングについては、C₆₀ にホールをドーピングするためであり、これにより C₆₀ ポリマー合成時の sp³ 的結合を C₆₀ モノマーの sp² 的結合よりエネルギー的に安定化させることを目的としている。ホールドーピングは、エネルギーが低下することを除けば、C₆₀ に高圧をかけたときと同等の効果が得られる。

圧力については、上記のホールドーピングの効果を考えると超高圧は必要ではないと考える。ただ、あまりにも C₆₀ 分子同士が離れすぎていると結合しないことが容易に推測されるので、最低でも試料がバルク状になる程度の圧力は必要であろう。

真空については、3次元 C₆₀ ポリマー合成の際に、C₆₀ 分子が他の原子や分子と結合するのを避けるために、最低でも ~10⁻⁵ Torr 以下の真空度が必要であると考え。

C₆₀ 分子の性質とその結合の性質上、3次元 C₆₀ ポリマーに期待される性質は、次のようであると予想している。

1. 超硬質（ダイヤモンド級）
2. 超軽量（炭素以上）
3. 超柔軟（グラファイト級）

C₆₀ 分子は結合のすべてが共有結合からなることから非常に硬い分子である。3次元 C₆₀ ポリマーも、その硬い C₆₀ 分子がダイヤモンド的結合によって結びつけられているので非常に硬いことが予想できる。また、C₆₀ 分子は構成元素が炭素だけであり、その構造を見てもわかるとおりグラファイトやダイヤモンドなどの他の炭素集合体よりも低密度である。C₆₀ 分子の集合体である 3次元 C₆₀ ポリマーは、C₆₀ 分子間にできる空間

も相まって、他の炭素集合体より非常に軽い。一方、マクロスケールで評価すると C_{60} を稠密構造において、各 C_{60} は接点だけで結合されており、その結合は多少の歪みを許すため、柔軟性に富むと考えられる。これらの理由から、できた物質はスーパーダイヤモンドと呼ぶにふさわしい性質を持っていると言える。

4. 試料の作製

3次元 C_{60} ポリマー合成のために C_{60} に真空中で高圧をかけレーザーを照射できる装置を用いて実験を行った。図3に装置全体の概略を示し、重要な部分について説明する。

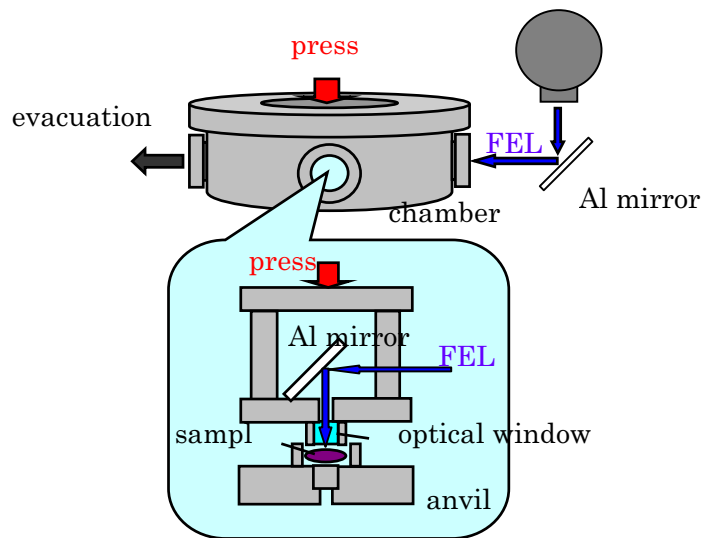


図3 本研究に用いた C_{60} ポリマー合成実験装置の概略

3次元 C_{60} ポリマーの合成には C_{60} 粉末に真空中で高圧のかけることができ、さらにレーザーを照射することのできるような小型のアンビルが必要となる。そこで、図に示すようなアンビルを構築、作製して実験を行った。これにより側面からのレーザー照射ではなくアンビル上部に取り付けたミラーとアンビル内部に取り付けたウィンドウによって圧力面に広範囲のレーザー照射が可能となった。このアンビルから高さ約 1 mm、直径 8 φ の円盤状の試料を得ることができる。

FEL は、高速の自由電子がその進行方向を強磁場によって曲げられるときに発生するシンクロトロン放射光（SOR）に、レーザーの持つコヒーレンスとハイパワーを付加したものであると考えられる。日本大学理工学部電子線利用研究施設（LEBRA）の FEL の場合、従来型のレーザーと異なり、特定の利得媒質を用いず、125 MeV 電子線形加速器を用いてできた高エネルギー電子ビームを、周期磁場発生装置（アンジュレータ）で蛇行させることにより SOR を発生し、共振器を用いて増幅する。従来型レーザーと違い自由電子を用いているので利得媒質固有のエネルギー準位がなく、また、アンジュレータの磁場を調節することで理論的には波長を広範囲に選択できる。

本実験で用いた FEL は発振から試料まで 18 枚の Al ミラーを介しておりレーザー強度は発振時の約 23 % まで低下してしまうが、基本波で 5~7.5 mJ/pulse の高い強度を持ち、波長は 1 ~ 5 μm まで選択することができる。

まず、アンビル内に C_{60} 粉末（99.95 %純度）とハロゲン元素としてヨウ素 I_2 （99.999 %純度）の混合物（mol 比 1 : 1）を適量詰め、チャンバーに設置する。そして、チャンバー内を RP で低真空に排気して、TMP で高真空に排気する。そして、プレス機によって圧力をかけ、 ~ 200 °C で 20 時間以上アニール

した後、FEL を照射して試料を作製した (c)。また、比較対照として、C₆₀ 粉末に真空中で圧力をかけレーザーを照射した試料 (b) と、C₆₀ 粉末に真空中で圧力のみかけた試料 (a) を作製した。尚、一連の作業は C₆₀ の光酸化反応を極力防止するために暗室で行った。表 6.1 に各試料作製時の条件の詳細を示す。

表 6.1 作製条件

	(a)	(b)	(c)
Materials	C ₆₀	C ₆₀	C ₆₀ :I ₂ =1:1 (wt. ratio)
Wavelength of FEL	—	450 nm *	450 nm *
Intensity of FEL	—	~10 μJ / pulse **	~10 μJ / pulse **
FEL frequency	—	2Hz	2 Hz
FEL irradiation time	—	3 h	3 h
Pressuer	60 MPa	470 MPa	470 MPa
The degree of vacuum	~10 ⁻⁷ Torr	~10 ⁻⁷ Torr	~10 ⁻⁷ Torr

* fundamental : 1350 nm

** About 6 mJ / pulse @ 1350 nm

5. 試料の評価

作製した (a) ~ (c) の各試料を顕微 Raman 分光装置を用いて分光測定をした。 $A_g(2)$ 振動モードだけ波数の変化を確認することができた。 $A_g(2)$ 振動モードの波数付近 ($1400 \sim 1500 \text{ cm}^{-1}$) の測定結果を詳細に分析した。

$A_g(2)$ 振動モードのピーク値は、試料 (a) で 1462.9 cm^{-1} 、試料 (b) で 1459.7 cm^{-1} 、試料 (c) で 1455.4 cm^{-1} をそれぞれ示しており、FEL 照射やヨウ素を混入した試料 (b)、(c) のピーク値は、 C_{60} に圧力のみかけた試料 (a) のピーク値と比較するとマイナス側にシフトした。

C_{60} の $A_g(2)$ 振動モードは “pentagonal pinch” を示し、分子軌道計算でも示されたように、 C_{60} の五員環の中心に向かうように各炭素原子が振動するモードである。 C_{60} の $A_g(2)$ 振動モードは実験値で 1469 cm^{-1} にピークをもっており、高温高压処理により C_{60} がダイマー化すると 1459 cm^{-1} にシフトすると報告されている^[11]。これは、 C_{60} の分子間に共有結合が出現することで対称性が低下し、結合部分周辺の格子振動が減衰、または、他の振動モードに変移したことに起因していると考えられる。

高压印加 FEL 照射した試料 (b) は $A_g(2)$ 振動モードを示すピークがマイナス側にシフトしておりポリマー化していることが示唆される。さらに、ヨウ素を混入した試料 (c) では、 C_{60} の状態ではエネルギー的に不安定になりポリマー化が促進され、 $A_g(2)$ 振動モードを示すピークがよりマイナス側にシフトしたと考える。

分子軌道計算の結果と実験結果の C_{60} の $A_g(2)$ 振動モードの値を比較すると、 1604.79 cm^{-1} と 1562.9 cm^{-1} となっており、実験結果のほうがマイナス側に 41.89 cm^{-1} ずれた値になった。分子軌道計算は純粋に存在する分子を対象に様々な特性を導き出すソフトであるが、実際の分子は他の分子や温度などの外部の影響を多く受けた環境で測定されておりこの差が生じたのだと考えた。ポリマー化した分子についても同様のことが言える。

分子軌道計算において、 C_{60} の $A_g(2)$ 振動モードと各種 C_{60} ポリマーの $A_g(2)$ 由来の振動モードを比較すると、 C_{60} ダイマーで -9.09 cm^{-1} 、6-6 C_{60} ダイマーで -13.84 cm^{-1} 、 C_{60} トリマーで -16.17 cm^{-1} シフトしている。実験結果をみると、 C_{60} - I_2 混合物に FEL 照射した試料で -7.5 cm^{-1} となっており、ある程度はポリマー化していると考えられることができる。

作製した (a) ~ (c) の各試料を XRD を用いて構造解析を行った。FEL 照射により各面において回折角の増加を確認することができる。また、 C_{60} - I_2 混合試料では (111)、(222) 面をはじめ、各ピーク強度の著しい減少とピーク強度比の変化を確認した。

回折角の増加は面間隔の縮小を意味しており、 C_{60} の分子間結合が共有結合に変化したことに起因していると考えた。また、ヨウ素を混入したことで X 線照射面に対する C_{60} の量が減りピーク強度が著しく減少したと考えた。ピーク強度比の変化については、 C_{60} がポリマー化し、本来の fcc 構造が歪んだことで (111)、(222) のピークが減衰したと考えた。本研究で 3 次元 C_{60} ポリマーの理想型が形成されたときは C_{60} の各面の面間隔が狭くなりピークがプラス側に変移するが、ピーク強度比は変わらないはずである。しかし、実際の実験ではポリマー化の制御はできず面間隔にばらつきが生じピーク強度比やピーク幅に変化が生じることが予想できる。

6. 結論

本研究では、ハロゲン元素を用いて C_{60} にホールをドープした状態で FEL を照射するという新しい方法を用いることによって超硬質、超軽量、超柔軟という驚異的な特性を持つ 3 次元 C_{60} ポリマーを構想し、その特性を分子軌道計算と実験の両面から明らかにすることを目標とした。

PC 上で WinMOPAC3.0 を用いて C_{60} 及び各種 C_{60} ポリマーをモデリングし、それらの基準振動解析を行い、

評価した。 C_{60} を真空・高圧下で、FEL を照射し、得られた試料を XRD と顕微ラマン分光装置を用いて分析し、評価及び計算結果との比較をした。

XRD 測定において、 C_{60} - I_2 混合物への FEL 照射により面間隔の縮小、結晶性の低下を確認した。Raman 分光測定において、FEL 照射前後でピーク値が 3.2 cm^{-1} シフトすることを確認した。また、 C_{60} - I_2 混合物に FEL を照射した試料では、 7.5 cm^{-1} のシフトを確認した。

以上の結果より、本研究の目的である 3 次元バルクとしてのポリマー合成を確認することはできなかったが、 C_{60} - I_2 混合物に FEL 照射することで C_{60} の物性は変化し、 C_{60} のポリマー化の明確な兆候を確認することができた。

謝辞

FEL の使用において、御協力頂いた日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設に感謝致します。また、Raman 分光測定において、御協力頂いた日本大学理工学部電気工学科放電レーザー研究室の皆さまに感謝致します。

参考文献

- [1] G. B. Adams, J. B. Page, O. F. Sankey, and M. O' Keefe, *Phys. Rev. B*, 50, 17471-17479 (1994)
- [2] J. Onoe and K. Takeuchi, *Phys. Rev. B*, 54, 6167-6171 (1996)
- [3] V. A. Davydov, V. Agafonov, R. Ceolin, and H. Szwarc, *JSSC*, 141, 164-167 (1998)
- [4] X. Chen, S. Yamanaka, K. Sako, Y. Inoue, and M. Yasukawa, *Chem. Phys. Lett*, 356, 291-297 (2002)
- [5] X. Chen and S. Yamanaka, *Chem. Phys. Lett*, 360, 501-508 (2002)
- [6] E. Burgos, E. Halac, R. Whht, H. Bonadeo, E. Artacho, and P. Ordejon, *Phys. Rev. Lett*, 85, 2328-2331 (2000)
- [7] S. Okada, S. Saito, and A. Oshiyama, *Phys. Rev. Lett*, 83, 1986-1989 (1999)
- [8] L. A. Chernozatonskii, N. R. Serebryanaya, and B. N. Mavrin, *Chem. Phys. Lett*, 316, 199-204 (2000)
- [9] H. Nakayama and H. Katayama - Yoshida, *J. Phy. Condens. Matter*, 15, R1077 (2003)
- [10] A. M. Rao, et al., *Science*, 259, 955 (1993)
- [11] Y. Iwasa, et al., *Science*, 264, 1570 (1994)
- [12] A. M. Rao, P. C. Eklund, J. L. Hodeau, L. Marques, and M. Nunez-Regueiro, *Phys. Rev. B*, 55, 4766 (1997)
- [13] O. Chauvet, et al., *Nature*, 370, 636 (1994)

自由電子レーザーアブレーション法による環境半導体成膜

鈴木 薫 (日大理工)

1. まえがき

環境半導体とはクラーク数（地殻中での元素の存在比率）の高い元素や植物や動物が生産する元素などを用いることで、環境に低負荷でリサイクル率が高く、人体に対して毒性を持たない特性を有する半導体を目指したものである。地球環境に優しく、資源の豊富な材料で作製された半導体の要求に対応できる環境半導体として、一般にはクラーク数の高い鉄(Fe)とシリコン(Si)を用いて熱電変換素子や太陽電池としての利用やデバイスに応用することで良好な特性が得られると期待されている。その他に、我々は植物や動物が生産する有機物質を構成する C, H や、植物の光合成反応や光触媒作用なども環境半導体と拡張して検討し、ダイヤモンドや酸化チタンの光触媒作用を利用した太陽電池などを考案した。従来の成膜方法としては以下のように大別され、(1)Physical Vapor Deposition : PVD 法（蒸着、スパッタ、レーザーアブレーションなど）、(2)Chemical Vapor Deposition : CVD 法（容量性、誘導性、表面波、ヘリコン波、ECR など）など多くの検討がなされている。これらの中で、広バンドギャップ半導体の成膜を目指し、分子振動に共鳴する自由電子レーザーと電子励起を行うエキシマレーザーの2フォトンプロセスによるアブレーション法を適用することを検討した。

2. 実験装置及び方法

図 1 にダイヤモンド状炭素 (Diamond like carbon : DLC) や酸化チタン及びオキシサルファイド ((LaO)CuS) の成膜装置の概略図を示す。チャンバー内は、常に排気され成膜時には気圧 $\sim 10\text{mTorr}$ としている。周波数 13.56MHz の高周波電源(ENI 社製 ACG-5)を使用し、誘導結合型放電によりプラズマを発生させ、放電管を通じ基板に導入している。ターゲットは、DLC が P_2O_5 1% 混合グラファイト粉末と冷却固体化した $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{P}(\text{OCH}_3)$ 溶液を使用し、酸化チタンがアナターゼ型 TiO_2 (石原産業製、ST-01) のバルクを、(LaO)CuS は原材料である $\text{La}_2\text{O}_3, \text{La}_2\text{S}_3, \text{Cu}_2\text{S}$ を化学量論比に

従い固相反応法により混合し石英管で 10^{-2}Torr まで排気し真空封入した後 900°C で 40 時間電気炉を用いて熱処理を施し結晶化させた (LaO)CuS バルクを 45 度の角度でレーザー光を照射した。成膜基板は、DLC がシリコン(Si)ウエハー $20\text{mm} \times 20\text{mm}$ (p 型 $\rho = 10\ \Omega \cdot \text{cm}$, $d = 625\ \mu\text{m}$) の 100 面を使用し、成膜基板はフッ化アンモニウム水溶液(10%希釈)で 5 分間酸化膜除去を行った後、ターゲットに対向させて設置する。酸化チタンでは ITO ガラス (甲子光学工業社製、 $10\ \Omega / \text{cm}^2$)、石英ガラス (フルウチ化学株式会社製) を、(LaO)CuS では MgO(100)基板を用いて成膜を行った。放電電力 100W にて水素プラズマ発生させ、基板表面の酸化膜を除去した後、ArF エキシマレーザー (Lambda 社製、COMPex201, $\lambda = 193\text{nm}$, フルエンス $20\text{J}/\text{cm}^2$, パルス幅 20nsec, 繰り返し周波数 10Hz)、FEL レーザ(日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設, $\lambda = 2.4\ \mu$)を照射し、発生した粒子群を成膜基板上に堆積・成膜する。物性評価は、組成比をエネルギー分散型 X 線分析 (Kevex Sigma 社製、EDS Ver. 3.2:Energy Dispersive X-ray:EDX)、膜構造を X 線回折分析 (理学電機社製、RINT-2100:X-ray diffraction:XRD)、表面形状を電界放射型走査電子顕微鏡(日立製作所 S4500)で行った。吸光光度計(島津

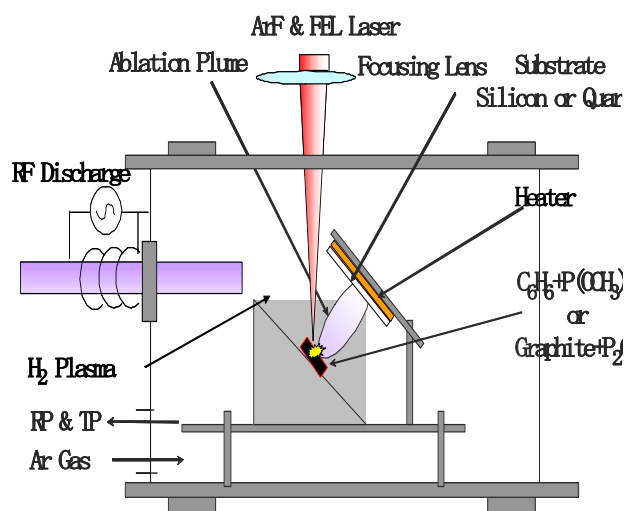


図 1 レーザーアブレーション装置の概略

製作所社製, UV-3150)による透過率、顕微ラマン(Raman, RENYSHOW, Ramanscope System-1000)による定性分析、擬似太陽光源のキセノンランプ(溝尻光学工業所社製 2kW)と微小電流計(ADVANTEST 社製 R8340)を使用して電圧-電流特性測定を行った。PL測定はHe-Cd レーザ(金門製作製 IK5251R-C)を光源とし、発光を分光光度計(島津製作所 UV-3150)で測定した。

3. 実験結果と検討

3. 1 n型 DLC/p 型 Si 太陽電池

図2に、 C_6H_6 と $C_6H_6+P(OCH_3)$ それぞれの吸光光度計による透過率測定の結果を示す。双方の溶液ともに1600nm-1800nmにかけてC-H結合に起因する吸収、また300nm以下においても光の吸収が確認された。このことから、紫外側の200nm以下の吸収を利用し、ArF使用したアブレーションが可能となり、また、C-H結合の分子振動に起因する吸収帯域では、FEL レーザを使用して波長を変化させることにより効果的にアブレーションが行えると予想できる。実際にFEL レーザ波長をC-H結合の吸収帯域である $2.4\mu m$ に選択してグラファイト粉末と冷却固体化した $C_6H_6+P(OCH_3)$ に照射した。粉末ターゲット使用時には基板表面に膜が形成されたが、溶液ターゲット使用時にはターゲット表面にアブレートされた痕が確認されたが、成膜基板の上に膜の形成は確認できなかった。図3(a)は粉末ターゲットをFELで、図3(b)は C_6H_6 、図3(c)は $C_6H_6+P(OCH_3)$

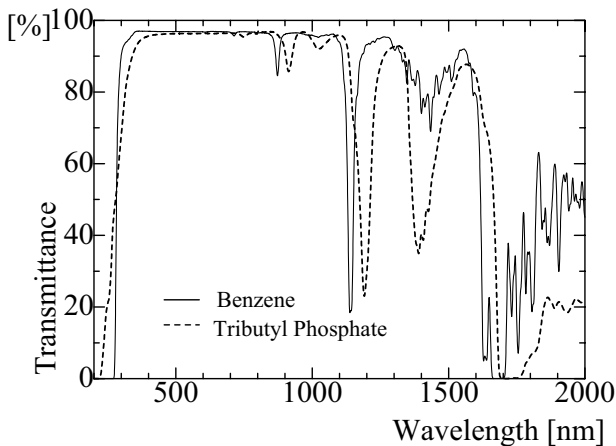
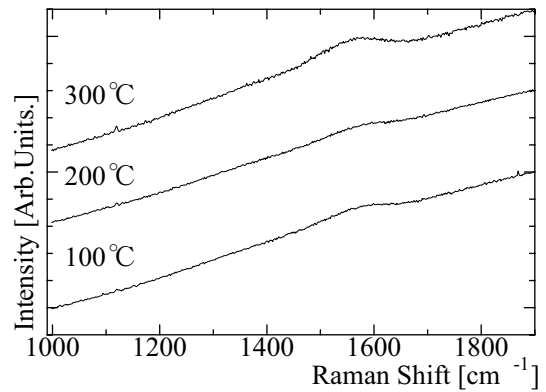
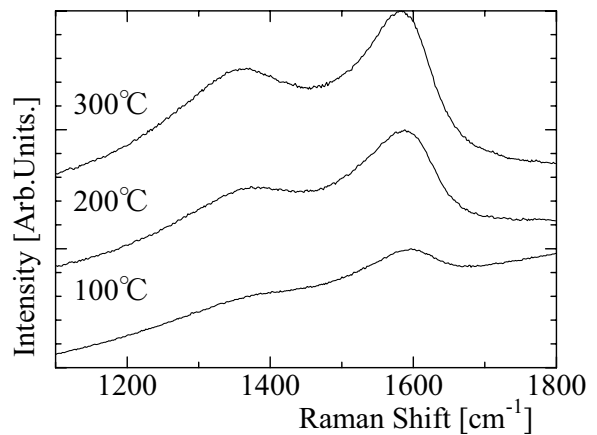


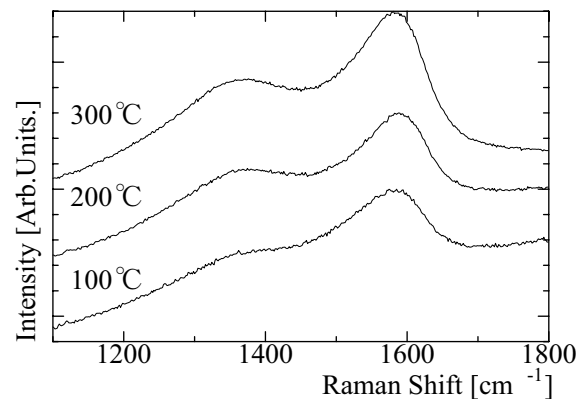
図2 吸光光度計による透過率測定



(a) グラファイト粉末 (FEL: $\lambda = 2.4\mu m$)



(b) C_6H_6 (ArF)



(c) $C_6H_6+P(OCH_3)$ (ArF)

図3 顕微ラマンスペクトル

をArFでそれぞれ基板温度を変化させてアブレーションし成膜したDLC膜の顕微ラマンスペクトルである。(a)のFELで作製した膜は膜厚100nmであり、 $1580cm^{-1}$ にgraphitic (-G) bandが確認された。(b)(c)では $1580cm^{-1}$ にgraphitic (-G) band、 $1360cm^{-1}$ にdisordered (-D) bandが確認され、G/D強度比は基板温度を上昇させると低下することが確認された。また、 C_6H_6 を使用したDLC膜ではG-bandがケミカルシフトする事が確認された。図4は $C_6H_6+P(OCH_3)$ ターゲットをArFで基板温度

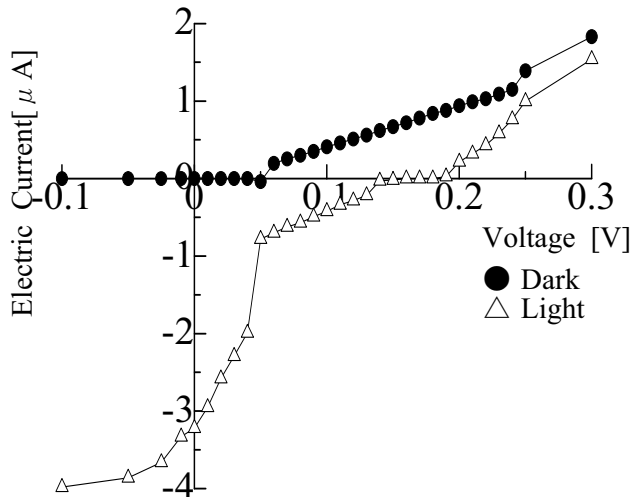


図4 電圧-電流特性

200°Cで成膜した試料の電圧-電流特性である。短絡電流 $3.22 \mu\text{A}$ 開放電圧 0.17V 発電効率 $8 \times 10^{-5}\%$ の出力が確認され、n型 DLC/p型 Si 太陽電池ができた。

3. 2 色素増感型酸化チタン太陽電池

基板温度を変化させたときのXRD結果を図5に示す。100、200°Cで成膜した薄膜でアナターゼ型 TiO_2 に特徴的な結晶面のピークは確認でき、温度上昇に伴いXRDピークの強度が大きくなり結晶成長していることが分かる。しかし300、400°Cで成膜した薄膜でこのピークは確認できずアモルファスな膜質を示すブロードな特性となった。

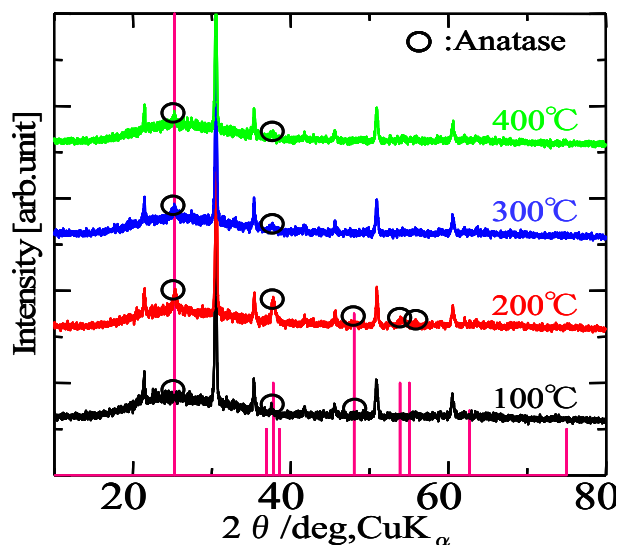


図5 X線回析による定性分析

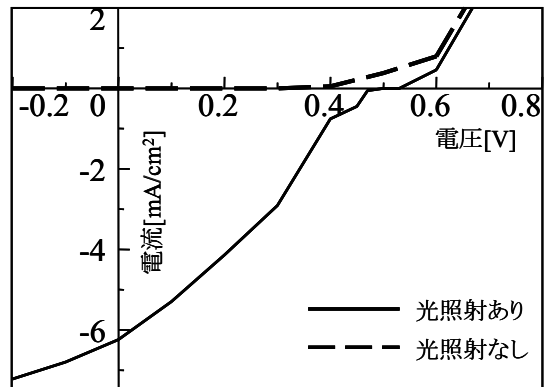


図6 電圧-電流特性

表1 最大電圧-電流特性

基板温度 [°C]	短絡電流 [A/cm²]	開放電圧 [V]	効率 [%]
100	2.50×10^{-3}	0.56	2.38×10^{-1}
200	6.24×10^{-3}	0.53	5.10×10^{-1}
300	2.53×10^{-3}	0.36	9.07×10^{-2}
400	4.21×10^{-3}	0.39	1.70×10^{-1}

以上の薄膜を用いて TiO_2 色素増感型太陽電池を作製する。ルテニウム(Ru)金属(ソラロニクス社製、Ruthenium 535-bis TBA) 35.6mg をエタノール(関東化学株式会社製、Ethanol(95) $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$) 100ml に入れ超音波洗浄器で攪拌してRu色素溶液を作り、薄膜を60分間浸してRu色素を TiO_2 薄膜に吸着させる。対極には白金(Pt)をスパッタ法で成膜した電極を用いて電解液(ソラロニクス社製、Iodolyte TG-50)を吸収させて太陽電池³⁾とする。電圧-電流特性の結果を図3、表3に示す。光を照射することにより短絡電流値が増加し太陽電池として光電変換していることが確認できる。100°Cから200°Cと温度上昇により出力の向上に伴い光電変換効率が向上していることが確認できる。

3. 3 (LaO)CuS 発光材料

ArFエキシマレーザで作製した薄膜のフォトルミネッセンス(PL)測定結果を図7に示す。すべての成膜条件において380nmのエキシトン発光が確認さ

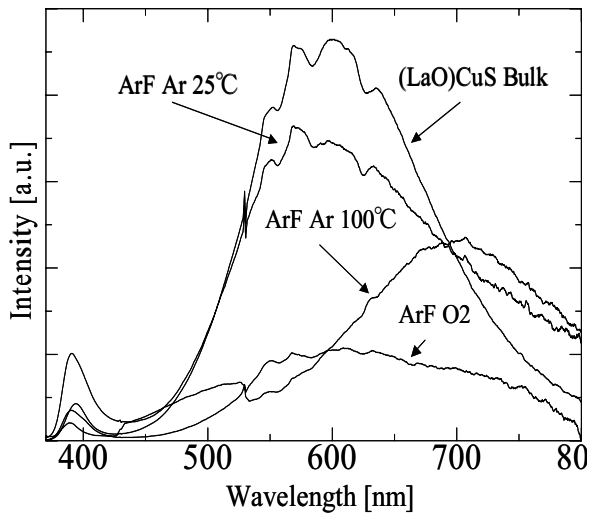


図7 フォトルミネッセンス測定

れた。Ar 雰囲気で作成した薄膜において、基板温度を上昇させていくにつれて 600nm 付近に見られた不純物や欠陥によるブロードのピークが 100°C の場合は、700nm 付近にレッドシフトしたピークとして確認された。

3. 4 PXR による XAFS 観測

広バンドギャップ酸化物半導体において酸化の程度や窒化などによってフォトルミネッセンス特性が変化することが考えられ、酸化や窒化の定量化が重要である。図8はカプトン膜上に CuO 薄膜をエキシマレーザーアブレーション法で成膜した一例である。写真下部の銅箔(厚さ 20 μm)はコントロールとして貼付けた物である。銅箔部分(Cu)の XAFS スペクトルは非常に滑らかな K エッジ特性を示しているが、酸化の程度が大きくなるにつれて、K エッジの立ち上がりと EXAFS 振動に変化が表れている。

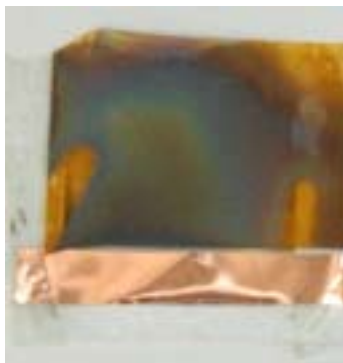


図8 CuO 薄膜の成膜写真

Intensity[a.u]

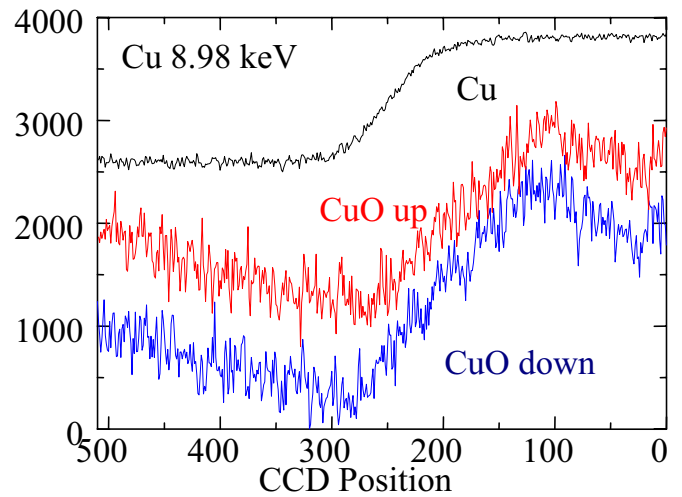


図9 CuO 薄膜の XAFS スペクトル

4. まとめ

FEL を使用したアブレーションではターゲット表面の破壊は確認されたが、成膜基板に膜の形成は確認されなかった。C₆H₆+P(OCH₃)を ArF により基板温度 200°C で成膜したのものでは短絡電流 3.22 μA 開放電圧 0.17V 発電効率 8×10⁻⁵% の出力が得られる n 型 DLC/p 型 Si 太陽電池ができた。酸化チタンでは Ti:O が 1:1.7 の時に開放電圧 0.53V、短絡電流 6.24 mA/cm²、効率 0.51% の TiO₂ 色素増感型太陽電池となった。(LaO)CuS では基板温度の上昇や O₂ 雰囲気での成膜によって PL スペクトルはバルクに比べてレッドシフトし、組成比の制御によって PL 発光の波長は可変となることが明らかとなった。CuO 薄膜の PXR による XAFS 観測の結果、K エッジの立ち上がりと EXAFS 振動に変化が表れた。

参考文献

- 1) Kaoru Suzuki 「Phosphorus doped diamond like carbon films deposited by plasma-assisted free electron and ArF laser ablation method」 Laser and Applications in Science and Engineering 5713C-88, pp.41-46 (2005-1)
- 2) M.ITOH, Y.SUDA, M.A.BRATESCU, Y.SAKAI, K.SUZUKI 「Amorphous carbon nitride film preparation by plasma-assisted pulsed laser deposition method」 Appl. Phys., A79, pp.1575-1578 (2004)
- 3) 鈴木 薫 「レーザーアブレーション法による薄膜生成とその特性」 放電学会誌, Vol.47, pp.11-17, (2004)
- 4) T.Ono/Y.Suda/M.Akazawa/Y.Sakai/K.Suzuki 「Effects of Oxygen and Substrate Temperature on Properties of Amorphous Carbon Films Fabricated by Plasma-Assisted Pulsed Laser Deposition Method」 J.J. Appl.Phys., Vol.41, pp.4651-4654 (2002)

日本大学電子線利用研究施設における X 線回折装置の現状

桑田隆生¹、佐藤勇¹、寒河江登志朗²、宍倉文夫³、石川紘一⁴、
早川建¹、田中俊成¹、早川恭史¹、森啓¹、野上杏子¹、境武志¹

1 日本大学量子科学研究所 (〒274-8501 船橋市習志野台 7-24-1)

2 日本大学松戸歯学部 (〒196-8666 昭島市松原町 3-9-12)

3 日本大学医学部生物学教室 (〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

4 日本大学医学部薬理学教室 (〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

序論

X 線は、物質科学、考古学、地球科学、生命科学、医学などの広範な学問分野での基礎研究や応用研究、また産業利用研究などに利用されている。日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設(LEBRA)では、パラメトリック X 線放射(PXR)を用いた単色 X 線源の研究を進め、その開発に成功した。LEBRA-PXR は、波長可変性、パルス性などの特徴を持ち、それらの特徴を活かすことで新たな X 線利用研究の開拓が期待される。

一方、日本大学 LEBRA では PXR の開発研究を進めると同時に、実験室レベルでの X 線利用研究を実施可能にするために、自動 X 線回折装置(RINT2500：粉末・薄膜・微小部測定用)、湾曲イメージングプレート(IP) X 線回折装置(RINT-RAPID：微小部測定用)、IP X 線回折装置(R-AXIS VI⁺⁺：蛋白質構造解析用)の計 3 台の X 線回折装置を導入し、LEBRA 利用者に開放してきた。本発表では、日本大学 LEBRA に設置された X 線回折装置の利用状況について報告する。

利用状況

(1) 自動 X 線回折装置(粉末・薄膜・微小部測定用)

自動 X 線回折装置は、2001 年 5 月に日本大学 LEBRA・資料分析室 5 に導入され、同年 6 月より本格的な利用実験が開始された。初年度(2001 年度)の利用者のべ人数は 76 人(稼働日数：57 日)であったが、年度を重ねるごとに利用者が増加し、本年度(2004 年度)では 2 月までの利用者が 161 人(稼働日数：134 日)と大幅に増加している(表 1)。2001 年 6 月から 2005 年 2 月までの累計で、本装置の利用者は 512 人(稼働日数：430 日)にのぼる。また、本装置は、日本大学学内では歯学部、松戸歯学部(口腔外科学・第 2 解剖学・放射線学・理工学、などの各講座)、理工学部(航空宇宙工・精密機械工・電気工・電子情報工・物理、などの各学科)、学外では麻布大学、明海大学など、様々な学問分野、研究機関に所属する研究者が利用している。

日本大学 LEBRA に導入された X 線回折装置 3 台のうち、本装置の利用者が最も多い。これは、本装置が粉末、薄膜、微小部測定と様々な解析への使用が可能であり、多くの学問分野の研究に利用できる点に関係していると考えられる。また、本装置利用者を対象にした講習会が、装置導入以降、18 回も開催されていることも、利用者の増加に大きく貢献しているものと考えられる(後述)。

(表 1) 自動 X 線回折装置の利用者数・稼働日数

	利用者数(人)	稼働日数(日)
2001 年度	76	57
2002 年度	117	102
2003 年度	158	137
2004 年度	161	134
累計	512	430

(2) 湾曲 IP X 線回折装置(微小部測定用)

湾曲 IP X 線回折装置は、2001 年 6 月に LEBRA・資料分析室 1 に導入され、利用実験が開始された。2001 年 6 月から本年 2 月までの累計で利用者は 293 人、稼働日数は 428 日になる(表 2)。本装置は、日本大学学内では歯学部、生産工学部、松戸歯学部、理工学部、学外では麻布大学、高知学園短期大学などに所属する研

究者が利用している。

本装置では、利用者の大幅な増加はないものの、装置の稼働日数が増加している。本装置による微小部測定の特徴は、自動 X 線回折装置による測定とは異なり、小角領域と広角領域の 2 次元回折像を同時に得られる点にある。しかし、測定に時間を要するため、本装置によるデータ収集は数日から 1 週間に亘る連続運転によって行われている。この本装置の利用状況が、利用者数ではなく、稼働日数に反映されその増加として現れている。本装置と自動 X 線回折装置は、共に微小部測定が可能であるが、短時間測定には自動 X 線回折装置、長時間測定には本装置を利用する、と言う様に、目的に応じて装置が上手く使い分けられている様子が伺える。

(表 2) 湾曲 IP X 線回折装置の利用者数・稼働日数

	利用者数(人)	稼働日数(日)
2001 年度	70	51
2002 年度	68	62
2003 年度	97	191
2004 年度	58	124
累計	293	428

(3) IP X 線回折装置(蛋白質構造解析用)

IP X 線回折装置は、蛋白質構造解析用ソフトウェア(CNX、QUANTA)と併せて、2001 年 6 月に LEBRA・資料分析室 4 に導入され、利用実験が開始された。本装置自体の利用者は、導入から本年 2 月までの累計で 71 人に過ぎない。しかし、同時に導入された構造解析用ソフトウェアの利用者数はのべ 312 人にのぼり、本装置と構造解析用ソフトウェアの利用者合計は 383 人になる(表 3)。本装置は、日本大学医学部と理工学部にも所属する研究者が利用している。

本装置と解析ソフトウェアの利用状況は、蛋白質の X 線結晶解析法による研究過程を反映していると考えられる。同解析法では、蛋白質の結晶を作製することが最も困難な作業であり、X 線回折実験に利用可能な良質な結晶の作製に数ヶ月を要することも多い。また、良質な結晶が得られた場合、X 線回折実験(=X 線回折装置の利用)による回折データの収集は 1~2 日間で終了し、得られた回折データに基づく構造解析(=構造解析ソフトウェアの利用)に 10 日~数ヶ月を要する。そのため、X 線回折装置と構造解析ソフトウェアとの間で、利用者数と稼働日数に極端な差が生じ、また年度毎の利用状況に差が生じているものと考えられる。

(表 3) IP X 線回折装置及び構造解析ソフトウェアの利用者数・稼働日数

	利用者数(人)	稼働日数(日)
2001 年度	36	36
2002 年度	169	167
2003 年度	143	143
2004 年度	35	33
累計	383	379

* 値は装置及びソフトウェアの合計

利用研究・教育への貢献

当該研究施設(LEBRA)には、学内外の医学、歯学、生物学、理工学など、様々な分野に属する研究者が訪れており、施設内の装置を利用する研究者、特に新規利用者に対する支援は欠かせない。3 台の X 線回折装置の導入以降、それらの装置を利用する研究者を対象とした講習会が総計で 28 回開催されている。また、データ処理に必要な解析ソフトウェアの新規導入や通信系の改善、さらに、解析試料作製に必要な機器が LEBRA 内の各研究室に逐次設備されてきた。これらが、施設建設から 4 年という短期間で、3 台の回折装置の利用者だけで、のべ 1,188 人に達した大きな要因と考えられる。

LEBRA 内の X 線回折装置は、各利用者の研究活動に貢献し、同装置を用いて得られた研究業績は既に、投稿論文 15 報、学会発表 23 件、学会賞受賞 1 件に達している。公表予定の業績を加えれば、その数はさらに増加するものと考えられる。LEBRA を利用する研究者の多くは、学部や研究科に所属する学部生及び院生であり、その研究、教育にも貢献している。LEBRA 内の X 線回折装置の利用者の中から、これまでに博士 3 名、修士 3 名、学士 8 名が学位を授与されている。また、施設内の X 線回折装置は学生実習などの教育活動

にも利用されている。

結論

日本大学 LEBRA では、実験室レベルでの X 線利用研究を進めるため、計 3 台の X 線回折装置を導入した。導入以来、各装置の特徴を活かした利用が進められ、LEBRA を利用する研究者の増加に大きく寄与した。X 線回折装置の利用者は、医学、歯学、生物学、理工学と様々な研究分野に亘り、同装置は利用者の研究の発展や学生の教育に貢献してきた。

今後、各装置の利用がさらに進むこと、また、各装置を用いて得られた技術や知識が PXRD 利用研究を実施する上で活用されることが期待される。

ヘモグロビンの構造研究と日本大学生体高分子研究グループ

宍倉文夫¹, 石川紘一², 奥 忠武³, 杉田博昭⁴, 高木 尚⁵, 後藤寿夫⁶

¹ 日本大学医学部生物学教室 (〒178-8610 東京都板橋区大谷口上町30-1)

² 日本大学医学部薬理学教室 (〒178-8610 東京都板橋区大谷口上町30-1)

³ 日本大学生物資源学部農芸化学科 (〒252-8510 神奈川県藤沢市亀井野1866))

⁴ 筑波大学生物科学系 (〒305-8572 つくば市天王台1-1-1)

⁵ 東北大学大学院生命科学研究所 (〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉)

⁶ 徳島大学総合科学部生命科学教室 (〒770-0814 徳島市南常三島町1-1)

はじめに

2001年、ヒトの全遺伝子情報が解読され、タンパク質の遺伝子情報は約3万1000個と見積もられた(1,2)。細胞の最も基本的な機能に関わる遺伝子はもっと少ない。実際、ヒトゲノム中にある1,278種のタンパク質ファミリーのうち、脊椎動物に特異的と思われるものは、わずか94種にすぎない(3)。ヒトの遺伝子解析の射程が尽きた(言い過ぎかも知れないが)昨今、文部科学省は平成14(2002)年度に「タンパク質3000プロジェクト」を開始した。「タンパク質3000プロジェクト」とは、主要と思われるタンパク質の基本構造に関わる構造が1万種類程度しかないと推定し、そのうちの3000種(約1/3)以上の基本構造及びその機能を日本が解析するというもので、日本の研究ポテンシャルを結集し、そこに国家資源を戦略的に投入して取込むことにより、世界に先駆けて成果を実現し、適切な権利化・技術移転を図ることを目的とした文字どおりの国家的プロジェクトである(4)。

日本大学原子力研究所は平成12年度の文部科学省学術フロンティア推進事業に選定された。5年間の潤沢な安定した研究資源が投入され、「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究(小島勝衛 研究代表)」をメインテーマに、「生体高分子 X 線結晶構造研究グループ(Nihon University Structural Research Group:NUSRG)」という一つの共同研究体を組織した。平成12年から平成16年に亘る事業期間内に、生体高分子 X 線結晶構造解析実験室の立ち上げと研究技術の共有化を目指した。その後、平成14年に当該研究所は日本大学量子科学研究所に改称され、日本大学の学際的な研究体制を支援する中核的な研究所に、またNUSRGも生命科学分野の新領域の開発を目指す人材の教育と訓練をおこなう教場として活動している。

本稿では、文部科学省学術フロンティア推進事業の支援を得て、生体高分子の X 線結晶構造解析が日本大学で可能になった経緯と NUSRG の展望を述べる。

なぜ X 線結晶解析か

生体を構成する物質は、私たちのからだの構成成分がそうであるように、3次元の空間と時間軸のなかで相互作用(おもに、結合と解離)を展開している。タンパク質と他のタンパク質、核酸、脂質二重膜、多糖類、小分子のリガンドなどが織り成す物質間相互作用にこそ生命化学反応の問題の所在がある。生命化学反応を解きあかすには、生体物質の立体構造の知識が必須である。どのような形をしているものなのか。どのように相互作用をしているのか。立体構造を知るために、同時代の科学技術の中で、X線結晶回折に基づく生体物質の立体構造の決定法が最も実り豊かで優れている。溶液状態の生体物質を結晶にすると、「溶液中で生理機能を果たしている生体物質そのものとは形が異なっている」という積極的な証拠はない。むしろ、生理機能を担っている物質のそのものと同じ構造と考えられ、結晶状態における生体物質の立体構造に生命化学

反応の根幹を問いかけることができると考えられている。従って、生体物質の立体構造を明らかにするには、X線回折法を用いて結晶構造を解析し、溶液中で生理機能を果たしている生体物質の動態を知る物質的な手がかりを得ることになる。

生体高分子X線結晶構造解析実験室の立ち上げ(5)

学術フロンティア推進事業の支援を受けて新しい建屋が完成したのは、平成13(2001)年3月であった。その年、NUSRGは大型実験機器の選定と搬入をおこない、同年6月に実験を行えるまで態勢が整った。同じ頃、桑田隆生博士(筑波大学生物科学研究科修了者)を研究支援者に採用した。もう一つ、NUSRGの研究を実施する上で、最も大切な研究材料の選定が残されていた。私達の実験技術の習熟度はもちろん、学内の研究者仲間や社会にもたらすインパクトなどさまざまな因子を考慮すると、このプロジェクトの成否はタンパク質の選択にあった。この頃、宍倉(NUSRG世話人)は、現存している2種類のゾウガメ(アルダブラゾウガメとガラパゴスゾウガメ)のヘモグロビンの一次構造の解析を遺伝子レベルとアミノ酸レベルで進め、2種類のヘモグロビンのグロビン鎖の一次構造を明らかにしていた(6)。タンパク質の一次構造が既知であることは、立体構造を解明するときの強力な手がかりになる。ガラパゴスゾウガメは、ダーウインの「種の起源」で有名なゾウガメとして種の多様性や種分化に興味を抱く科学者を始め、一般社会にも知られた有名な動物である。しかも、ヒトのヘモグロビンの場合、医学的にはもちろん生物科学的にも極めて重要なタンパク質分子として夥しい数の研究がおこなわれ、豊かな情報が蓄積されている(7)。この情報が使える。こうして、失敗が許されないプロジェクトの新規タンパク質として、爬虫類ゾウガメのヘモグロビンが研究材料に選定された。平成13年夏の終わりの私たち(NUSRG)は、この分野の知識は皆無に等しかったが、ともかく表-1の研究者構成で実験が始められた(5年間のプロジェクトのため、表-1には当初メンバー以外の研究者も含まれている)。

表-1 NUSRG メンバー

宍倉文夫 (日大・医：世話人)	鈴木知彦 (高知大・理)
奥 忠武 (日大・生物資源)	佐保哲郎 (麻布大・環境保健)
杉田博昭 (筑波大・生物科学)	
高木 尚 (東北大・院理)	桑田隆生 (日大・量科研)
後藤寿夫 (徳島大・総合科学)	長谷川智一 (リガク・X線研究所)
石川紘一 (日大・医：総括)	佐藤 勇 (日大・量科研)

KEK物質構造科学研究所 若槻 壮市教授並びリガクX線研究所 山野昭人博士には、NUSRGの立ち上げに際し御支援をいただいた。

表-2 X線結晶構造解析の
手順

- 1 タンパク質の精製
- 2 結晶化
- 3 X線回折と回折像の収集
- 4 構造の精密化
- 5 論文の発表

NUSRGの研究目標：結晶作製から構造解析まで

タンパク質のX線結晶構造解析実験は、表-2のような連続したプロセスを経過する。5年間で構造解析実験が可能な実験室。この目標を達成することは、NUSRGで次の3つのステップを可能にすることだ。

ステップ-1：標準タンパク質(リゾチーム)の結晶を作製して、教科書的な構造モデルを提示できる(導入したX線回折装置類の検証と操作技術の習得)。

ステップ-2：新規タンパク質(ゾウガメのヘモグロビン)の結晶を作製して、構造モデルを決定できる。

ステップ-3：ゾウガメのヘモグロビン結晶構造のモデルを公表できる(論文の発表)。

学術フロンティア推進事業は5年間という限られた期間である。とにかく5年間の終わりには、NUSRGで構造解析ができるようになってきていることだ。表-2でもっとも複雑なプロセスは、タンパク質を精製すること。その次に、そのタンパク質の結晶化だ。一次構造が既知であることは初心者には都合が良い。しかし、タンパク質を精製して一次構造を決めている余裕はない。NUSRGでタンパク質の構造解析ができるかできないかは、設備した機器類の操作ができ、構造解析ソフトを操り、精密化したリゾチームの構造モデルが確かなものであるかを確かめることが前提となる。機器類や操作が不確かでは、新規タンパク質の解析どころの話でない。NUSRGは第1歩として、リゾチームの結晶化からその構造モデルの構築までを実施した。導入した機器類が確かなものであり、私たちの解析技術も確かなものにしたかった。新しい機器を使いこなすためには、必要不可欠な作業だった。このために参加した(NUSRGや他所での)講習会は、表-3を参照。こうして限られた年度内に目的を達成するため、精製タンパク質の一次構造の解析やタンパク質の性質の分析などごく当たり前の生化学的研究は度外視して、日本大学量子科学研究所で結晶構造のモデルを構築できるかどうかという最も明確にしたい実験とその技術の修得を目指した。5年間の計画の進み具合とその間の特記する出来事については表-4を参照。また、この目的の達成に関わったNUSRGの組織・構成研究者などについては表-1に示した通りである。とくに、高エネルギー加速器研究機構(KEK)の若槻壮市教授並びリガクX線研究所の山野昭人博士にはNUSRGを立ち上げるとき格別の御支援を頂いた。

表-3 講習会一覧(技術習得者から開催者へ)

講習内容	日時	場所(参加者)
結晶構造解析について(全般的知識)	平成12年10月23日	KEK若槻研究室・実験室見学(宍倉)
X線回折装置(R-Axis 4++)の試運転 操作法の講習及びCNX操作法の習熟	平成13年6月20日	X線結晶構造解析実験室 (桑田/芝軒/寒河江/宍倉)
DynaPro操作法の講習	平成13年7月4日	X線結晶構造解析実験室 (桑田/芝軒/寒河江/宍倉)
結晶化の技術習得と実験室見学	平成13年7月7日	リガク拜島工場, X線研究所 山野研究室・実験室(桑田/宍倉)
Quantaの操作法の講習-1	平成13年7月18日	X線結晶構造解析実験室 (桑田/芝軒/宍倉)
Quantaの操作法の講習-2	平成14年5月17日	X線結晶構造解析実験室 (桑田/宍倉)
X線結晶構造解析技術講習会(主催) 結晶化の技術	平成16年7月	日本大学医学部生物学教室/宍倉 (森田/間野/木許)
X線回折装置の操作法と構造の精密化	平成16年7月17, 18日	X線結晶構造解析実験室/桑田 (森田/間野/木許)

表-4 X線結晶構造解析グループの年間報告(平成12年~平成16年)

区分	期間	特記事項
第1期	平成12年4月~平成13年8月	研究棟の建設, 竣工式(平成13年3月) 実験室の配置設計, 機器類と備品の搬入
第2期	平成13年9月~平成14年5月	機器類の検証及び講習会, リゾチームの立体構造の完成(平成14年5月)
第3期	平成15年8月終了	ゾウガメのヘモグロビン立体構造モデルの完成 Protein and Peptide Lettersに掲載(8月号)
第4期	平成15年11月~平成16年3月	学内・学外共同研究の開始 高木 尚教授(東北大学): アカムシHbの構造解析(終了) 鈴木知彦教授(高知大学): シロウリガイHbの構造解析(継続中)
第5期	平成15年9月~現在	X線結晶構造解析実験室の施設利用研究の開始 佐俣哲郎教授(麻布大学) 沼田 治教授(筑波大学)
第6期	平成16年7月	X線結晶構造解析技術の講習会開催(3日間) パラメトリックX線(光源部)利用研究の開始 学内・学外共同研究(随時)

最初の成果：その意義

表 - 4 に 5 年間に亘る実験の概要を示した。その中で、コンピュータ画面にリゾチームのリボン構造を提示することができた平成 14 年 5 月 17 日以降、不安材料のほとんどが解消した。機器類はこれで十分であり、操作も解析技術も私たちでなんとかなるとの感触を得て、ステップ -1 を終了した。ステップ -2 と 3 は **Protein and Peptide Letters** に短報を掲載することができたことで終わった(8)。因に、この短報に掲載したゾウガメの結晶写真は、平成 16 年度版の Hampton Research 社のカタログ (**Crystallization Research Tools. Vol. 14, Number 1, 2004**) を飾った。こうして「日本大学で結晶構造解析ができる」というスローガンは、平成 15 年 8 月に完了した。予定よりも早い成果であった。この間、リガク X 線研究所の長谷川智一博士にはゾウガメのヘモグロビンの構造モデルを完成するまでご指導を仰いだ（現在も、引き続き御指導をいただいている）。こうして、精製したサンプルがあれば結晶化を試み、結晶ができれば、構造モデルの構築まで実験できるという一連の研究支援体制が整った。この成果の意義は大きい。第 1 に X 線結晶構造解析技術を日本大学の学内研究者ならび学外の共同研究者に還元できる。第 2 にタンパク質の構造研究が私たちのような小実験室でも手軽に行える技術になった。第 3 に安定な潤沢な資金を投資して研究体制を整備し、技術の共有という目的の達成にはどうしたら良いかなどのノウハウが得られた。実際、大規模の実験室を擁する施設に構造解析をお願いせずには研究が進まないような研究もあるが、生命科学を研究する普通の小規模の研究室がタンパク質の立体構造を解析する技術を他の生化学の技術と同じように装備できることを示せた。これはこの分野の研究者グループを増加させ、21 世紀に始まった国家的プロジェクトを底辺で支える潜在的な力になるものと思う。

X 線結晶構造研究：展開

平成 15(2003)年の暮れ、東北大学の高木 尚教授からアカムシ（節足動物ユスリカの幼虫、釣りの餌に使われている）から精製した 2 種類のヘモグロビンの提供を受けた。アカムシ・ヘモグロビンの結晶化は、日本大学医学部の宍倉の実験室（医学部で X 線結晶構造解析技術の一部をおこなえるようにすること）と NUSRG の実験室で前後して進め、2~3 ヶ月で構造モデルを決定した（9、投稿準備中）。東北大学高木 尚教授との共同研究で得た成果は、次の通りである。まず、アカムシのヘモグロビンの立体構造が解明されたことはもちろん、第 1 に NUSRG で他大学の研究者と X 線結晶構造解析に関わる共同研究を展開できた。第 2 に結晶化から構造解析まで、当該実験室で実施可能であることを再確認した。第 3 にこの技術のうち結晶化までを NUSRG 以外の研究室でおこなえる。従って、結晶化を他所で進め、X 線回折実験とコンピュータによる構造の精密化（今後このコンピュータによる構造の精密化自体も共同研究者の研究室で可能にしたい！）だけを NUSRG の実験室で行うことが可能になったことなどである。当該施設の NUSRG 実験室は、このように精製サンプル、あるいは、結晶化した結晶そのものの提供を受けて、回折像を収集する共同利用実験施設として機能することも考えられる。しかし、この方策は、研究と教育の場としての大学の付属施設の将来像を重ると、物足りない。

X 線結晶構造研究は NUSRG が達成目標にした結晶化から構造構築までで終わりでない。大学の学部教育や大学院教育あるいはポストクの教育・訓練施設として機能を果たすために、生体高分子の精製や生理機能の解析、生体高分子の性状の解明や遺伝子構造およびアミノ酸配列の決定など結晶化以前の数多くの基本的手技をトレーニングできる施設であることが必要である。タンパク質化学的性状がほぼ明らかにされてはじめて立体構造のステップになるのが多くのタンパク質研究の歩むプロセスである。この度の日本大学学術フロンティアの目標はまず「結晶化から構造解析までできる」ことをスローガンに事業年度内に構造解析がで

きることを照準として進めてきたが、次の目標として NUSRG が大学院や学部教育の一翼を担うために、タンパク質構造化学の裾野を視野に入れた研究体制を整えていく必要がある。それは、一般の生化学実験室または分子生物学実験室が普通に整備している実験室装置を備えることである。今の NUSRG の実験室がある電子線利用研究施設では困難なことでない。X 線回折実験に必要な機器類は生化学・分子生物学的研究に併用できるものばかりであり、2, 3 の大型機器を除いて研究と教育に必要な多くの機器はすでに今回の学術フロンティアで整備されている。

同時代の世界の動き、とくに平成 12(2000)年～平成 14(2002)年まで

日本大学における NUSRG の展望を述べる前に、20 世紀末から 21 世紀にかけての世界の動きを俯瞰しておきたい。幸いに、X 線結晶構造解析における日本の取りかかりは早かった。諸外国の一步先を行き、同学の研究者から期待されている。なかでも、表 - 5 に示されているように、理化学研究所の取り組みは、諸外国に先んじて 1997 年に Structural Genomics Pilot Project が始まった。その後、2000 年に第 1 回 International Structural Genomics Meeting (Hinxtion) がイギリスで開催された。2000 年は日本大学量子科学研究所が学術フロンティア推進事業に選定され、新しい建屋の建設に取りかかった年である。日本大学学術フロンティア推進事業の中の一つのグループとして Structural Genomics Project に関わる NUSRG を創設した年にあたる。表 - 5 の年表によると、文部科学省は、産学官の研究機関によって国家的・社会的課題に対応した研究開発プロジェクトに重点的に取り組む「新世紀重点研究創生 (RR2002)」の一環として、2002 年 (平成 14 年)、理化学研究所の研究プロジェクトを支柱に「タンパク質 3000 プロジェクト」を事業化した。NUSRG は X 線結晶構造解析技術を日本大学並びに共同研究者の共有の技術にできるかどうかの目標へ向けて集中していたときに重なっている。

表-5 International Structural Genomics Organization

Year	Brief history of the international structural genomics projects
1995	Proposal of structural genomics project in Japan
1997	Start of structural genomics pilot project at Riken Institute
1998	Start of the New Jersey Initiative in Structural Genomics and Bioinformatics
2000	Structure-Based Function Genomics meeting at Avalon in USA
2000	日本大学量子科学研究所 学術フロンティア推進事業開始 (NUSRG 立ち上げ)
2000	First International Structural Genomics Meeting (Hinxtion, USA)
2001	Second International Structural Genomics Meeting (Airlie House, USA)
2002	文部科学省 National Project タンパク質 3000 プロジェクト開始
2002	ISGO International Conference on Structural Genomics (Berlin, Germany)

英文項目は文部科学省ホームページより抜粋

講習会：受ける側から主催する側へ

UNSRG に導入した X 線回折装置と解析プログラムソフトは、表 - 3 に示すように機器を購入した業者主催の数回の講習会を経て、操作に慣れた。それでも、操作をこなすにはまだ程遠かった。操作方法の習熟に費やした桑田博士の努力と貢献は多大なものであった。その後、平成 16 年夏に、日本大学医学部の宍倉の実験室で結晶化の実習を行い、さらに UNSRG の実験室で X 線回折像の収集実習並びに精密化の操作と構造モデルの構築までの実習を開催することができた。こうして、UNSRG は X 線結晶構造解析の講習を受ける側から講習を主催する側へと飛躍し、大学院生の教育や PDF の訓練に生かせる道筋が整い、そのためのノウハウを蓄積した。

日本大学の新しい大学院 (NUARISH) に期待 : NUSRG の一つの展望

平成 17 年 3 月 21 日, 日本大学大学院総合科学研究科 (Nihon University Advanced Research Institute for the Sciences and Humanities: NUARISH) の第 1 期生 (4 月入学) 入学者選抜試験がおこなわれた。NUARISH には 3 専攻が設置されている。そのうち, 2 つは自然科学系の生命科学専攻と環境科学専攻である。NUARISH の理念は, 「学際的な新領域に対応できる人材の育成」とある。生命科学における学際分野の教育に求められているのは, 化学的知力を基盤に現代科学のあらゆる技術に対応できるトレーニングを積んだ人材の育成である。諸外国では, Advanced Interdisciplinary Study Course として Chemical Biology Graduate Program が開設され, その中心的なコースに X 線結晶構造解析の技術訓練が組み込まれている(10)。日本大学の新しい大学院教育の「学際的な新領域に対応できる人材の育成」に NUSRG の将来像を重ねて期待している。時代は, DNA を軸足として, 生体物質相互間情報伝達の生物化学反応の分析と統合を物質の立体構造からアプローチするときになっている。

おわりに

全くの無から出発した日本大学の X 線結晶構造解析プロジェクトは, 5 年間と限られた年度内に論文を公表できるまでになった。安定した潤沢な資金があり優秀な研究支援者がいれば, 確かに, 今日では多くのことをなすことができる。結晶ができる保証がどこにもない科学にもかかわらず, NUSRG は好条件に恵まれて当初念頭に描いた成果よりも素晴らしい成果をあげることができた。これは研究材料に恵まれたことと千載一遇のチャンスを生かすように周囲の協力者の支援が大であったことによる。この小実験室と X 線結晶構造解析技術を梃子に日本大学の目指す「幅広い視野に立ち時代の変化に対応できる高度な研究者を養成する」教場の一つとして, 日本大学の研究拠点の基盤を形成するアクティブな実験室を目指したい。これが国民の貴重な資源の投資に見合うと強く希望したい。

謝辞: このプロジェクト研究に多数の方々御協力を頂いたことを深謝します。中でも, 世界的に貴重なアルダブラゾウガメとガラパゴスゾウガメの血液を提供していただいた大坂市天王寺動植物公園と東京都恩賜上野動物園の関係者の方々に謝意を表します。

文献

- 1 International Human Genome Sequencing Consortium. (2001). The human genome. *Nature* **409**, 860 – 921.
- 2 J. C. Venter, et al. (2001). The sequence of the human genome. *Science* **291**, 1304 – 1351.
- 3 D. Baltimore (2001). Our genome unveiled. *Nature* **409**, 814 – 816.
- 4 佐伯浩治. (2005). 「タンパク質 3000 プロジェクト」とは. 3000 種類の構造と機能の解明を目指す. 特集 進む「タンパク質 3000 プロジェクト」*Sci. Technol. J.* **14**, 20 – 21.
- 5 宍倉文夫 (2002). 生体高分子立体構造解析実験室の立ち上げ. *日大医誌*. **61**, 179.
- 6 宍倉文夫 (2002). 爬虫類のヘモグロビン: ゾウガメ (*Geochelone gigantea* と *Geochelone nigra*) グロビンの分子進化. *日大医誌*. **61**, 179. 263 – 267.
- 7 G. Fermi, M. F. Perutz, B. Shaanan and R. Fourme (1984). The crystal structure of human deoxyhaemoglobin at 1.74 Å resolution. *J. Mol. Biol.* **175**, 159 – 174.
- 8 T. Kuwada, T. Hasegawa, I. Satoh, K. Ishikawa and F. Shishikura (2003). Crystallization and preliminary x-ray

diffraction study of hemoglobin D from the Aldabra giant tortoise, *Geochelone gigantea*. Prot. Pept. Lett. **10**, 422 – 425.

- 9 T. Kuwada, T. Hasegawa, S. Sato, I. Sato, K. Ishikawa, T. Takagi and F. Shishikura (2004) *Tokunagayusurika akamusi* (Diptera) hemoglobin: Crystallographic analyses of Hb V and Hb VII at 1.65 Å and 1.50 Å resolution, respectively. Zoological Science **21**, 1327.
- 10 <http://www.chembio.umich.edu/>(Michigan University); <http://www.med.cornell.edu/tpcb/> (Cornell University); <http://www.gsas.harvard.edu/programs/degree/chembio.html> (Harvard University)

アカムシユスリカ・ヘモグロビン(TA-V, TA-VII)の構造解析

桑田隆生¹、長谷川智一²、佐藤秀³、高木尚³、佐藤勇¹、石川紘一⁴、宍倉文夫⁵

1 日本大学量子科学研究所 (〒274-8501 船橋市習志野台 7-24-1)

2 リガク X 線研究所 (〒196-8666 昭島市松原町 3-9-12)

3 東北大学大学院生命科学研究科 (〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉)

4 日本大学医学部薬理学教室 (〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

5 日本大学医学部生物学教室 (〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

序論

ヘムへのリガンドの結合解離によってヘモグロビン(Hb)分子が構造変化を起こすことは、広く知られている現象である。Hb 分子内でヘムは *E helix* と *F helix* との間にはさまれるように位置し、周辺のアミノ酸残基との間の水素結合によって保持されている。*E helix* に存在する近位ヒスチジン(His)はヘムに結合するリガンドとの間で水素結合を形成するため、一方、*F helix* に存在する遠位 His はヘムとの間で水素結合を形成するため、それぞれリガンド結合を認識する上で重要な役割を果たしている。

双翅目昆虫アカムシユスリカ(*Tokunagayusurika akamusi*)の4令幼虫は、日本の湖沼に広く生息し、その体液中に Hb 分子が単量体あるいは二量体を形成して存在している。アカムシユスリカ Hb は、イオン交換クロマトグラフィーによって少なくとも 11 種類の異なる Hb 分子に分離され、それらは吸収スペクトルの波形から Normal (N)型と Low (L)型に大別されることが明らかになっている(Fukuda et al., 1993)。この2つに大別された Hb 分子のうち、L 型 Hb の近位 His はイソロイシン(Ile)に置換しているため、リガンドの結合解離に伴う Hb の構造変化に何らかの影響があると可能性が考えられる。アカムシユスリカ Hb の立体構造の解析は、アミノ酸置換に伴う蛋白質の機能変化を知る上で、重要な知見を与えてくれるものと期待できる。

そこで本研究では X 線結晶構造解析により、アカムシユスリカ L 型 Hb である TA-V と、N 型 Hb である TA-VII の立体構造を解明することを目的とした。さらに両者の立体構造の比較から、近位 His が置換した L 型 Hb(TA-V)における、ヘム結合部位(*E helix* 及び *F helix*)の構造的な特徴を解明することを試みた。

アカムシ Hb の X 線結晶構造解析

精製した2種類のアカムシ Hb (TA-V, TA-VII) サンプルを用いて、ハンギングドロップ蒸気拡散法(20°C)により結晶化を試みた。TA-V では、結晶化条件の最適化の結果、25% PEG3350、200mM 硫酸、100mM 酢酸 Na (pH 4.6)を結晶化剤とした条件下で、単結晶の作製に成功した。TA-VII では、双晶として成長する傾向が強かったため、微小結晶を核とした seeding を行い、単結晶を得ることに成功した(結晶化剤: 25~30% PEG3350、100~200mM MgCl₂、100mM Tris-HCl (pH 8.5))。

得られた結晶を用いて、TA-V では 1.64 Å 分解能、TA-VII では 1.50 Å 分解能の、良質な回折データを収集することに成功した。TA-V の結晶は空間群 *P2₁2₁2* に属し、格子定数は $a = 65.14 \text{ \AA}$ 、 $b = 74.85 \text{ \AA}$ 、 $c = 33.42 \text{ \AA}$ 、非対称単位内に Hb 単量体 1 分子を含んでいた。TA-VII の結晶は空間群 *C222₁* に属し、格子定数 $a = 42.01 \text{ \AA}$ 、 $b = 69.11 \text{ \AA}$ 、 $c = 99.65 \text{ \AA}$ 、非対称単位内に Hb 単量体 1 分子を含んでいた。

TA-V および TA-VII の構造解析では、それぞれヘムの鉄イオンの異常分散を利用した単波長異常分散法により初期位相を決定し、構造精密化を行なった。TA-V の精密化モデルは、非対称単位内のグロビン鎖全 152 アミノ酸残基、ヘム、水分子 226 個を含み、結晶学的 *R* 値(*R*_{free})は 19.4(21.4)%となった。TA-VII の精密化モデルは、非対称単位内のグロビン鎖全 150 アミノ酸残基、ヘム、水分子 251 個を含み、結晶学的 *R* 値(*R*_{free})

は 19.7(21.9)%となった。

アカムシユスリカ Hb の立体構造

一般的にヘモグロビンやミオグロビンなどのヘム蛋白質は、8つのヘリックス構造(*A-H helix*)と各ヘリックス構造をつなぐコーナー領域からなる「グロビンフォールド」と呼ばれる立体構造を持つことが明らかになっている。本研究で解析したアカムシユスリカ TA-VII の立体構造は、既知の双翅目昆虫 *Chironomous thummi thummi* の Hb 分子の立体構造(Steigemann and Weber, 1979)や他の多くの Hb 分子同様、典型的なグロビンフォールドであることが確認できた。しかし、アカムシユスリカ TA-V は、一般的なグロビンフォールドとは異なる立体構造を持つことが明らかとなった。

アカムシユスリカ TA-V は、一般的な *A-H helix* に加え、C 末端に短いヘリックス構造の存在が明らかとなった。この C 末端のヘリックス付近に存在するシステイン(Cys)残基は、隣接する *H helix* に存在する Cys 残基との間でジスルフィド結合を形成している。本研究以前にも、二枚貝 *Scapharca inaequalvis* において N 末端にヘリックス構造が加わった Hb 分子の存在が明らかになっているが(Royer, 1994)、C 末端にヘリックス構造が加わった Hb は本研究で解析した TA-V が初の知見である。

アカムシユスリカ Hb のヘム結合領域

アカムシユスリカ Hb の電子密度を確認すると、TA-V、TA-VII 共に、ヘムに結合するリガンドの電子密度が存在する。電子密度の形状、結晶化条件などから、解析したアカムシユスリカ Hb はヘムに水分子が結合した aquomet Hb と考えられる。解析を行った TA-V と TA-VII が、共にリガンド結合型 Hb であることは、両者の構造、特にヘム結合部位の構造を比較する上で重要である。アカムシユスリカの 2 種類の Hb 分子の立体構造の比較から、共にリガンド結合型 Hb でありながら、ヘム結合部位(*E helix* 及び *F helix*)に構造的な違いがあることが確認できた。

TA-V と TA-VII の *E helix* の比較から、1) TA-VII の *E helix* 上のアミノ酸残基(近位 His)がリガンド分子との間で水素結合を形成しているのに対し、TA-V にはそうした水素結合が存在しないこと、また、2) TA-V の *E helix* は *EF corner* 方向へ移動していること、が明らかになった。TA-V の *E helix* で確認できたこれら二つの構造的な特徴は、脱酸素型 Hb (deoxy Hb)の *E helix* に見られる特徴に一致する。また、*F helix* 上の遠位 His を比較すると、His 側鎖(イミダゾール基)の傾きを示す値 $F8[C\delta-N3]-[C\varepsilon-N1]$ が、TA-VII では 0.16 \AA と一般的なリガンド結合型 Hb の値($0.0 \sim 0.15 \text{ \AA}$)であるのに対し、TA-V では 0.49 \AA と deoxy Hb の値($0.29 \sim 0.6 \text{ \AA}$)に一致することが明らかになった。リガンド結合型 TA-V において、ヘム結合部位を形成する *E helix* と *F helix* に、deoxy Hb に見られる構造的な特徴が確認されたことは、TA-V の近位 His が Ile へ置換している点から考えると興味深い。

近位 His はヘムに結合したリガンドとの間に水素結合を形成し *E helix*、さらには *F helix* に構造変化を引き起こす。この構造変化の機構は、Hb 分子のリガンド結合に伴う構造変化を導く上で重要である。しかし、近位 His が Ile に置換した TA-V では、リガンドとグロビン分子との間に水素結合は形成されず、さらにヘム結合部位(*E helix* と *F helix*)の構造はリガンド結合型 Hb でありながら deoxy Hb に近い構造であることが明らかとなった。このことから、近位 His の置換によって、TA-V ではリガンド結合の認識とリガンド結合に伴う構造変化の機構が失われている可能性が推測できる。

結論

本研究では、アカムシユスリカ 4 令幼虫に存在する 2 種類の Hb(TA-V、TA-VII)の X 線結晶構造解析から、

その立体構造を決定した。その結果、TA-VIIは8つのヘリックス構造からなる典型的なHb分子の構造を持っているのに対し、TA-Vには8つのヘリックス構造に加えC末端に短いヘリックス構造が存在することが明らかとなった。さらにTA-Vでは、近位Hisの置換によってリガンド結合に伴う構造変化の機構が失われている可能性が示された。

今後、一酸化炭素結合型TA-Vやdeoxy型TA-Vの構造解析から、近位HisのIleへの置換がTA-Vの生理機能の発現にどのような影響を与えているのか、より詳細に知ることができるものと期待される。

引用文献

Fukuda, M., Takagi, T. & Shikama, K. (1993). Polymorphic hemoglobin from a midge larva (*Tokunagayusurika akamusi*) can be divided into two different types. *Biochim. Biophys. Acta* **1157**, 185-191.

Royer, W. E. Jr. (1994). High-resolution crystallographic analysis of a co-operative dimeric hemoglobin. *J. Mol. Biol.* **235**, 657-681.

Steigemann W. & Weber E. (1979). Structure of erythrocyruorin in different ligand states refined at 1.4 Å resolution. *J. Mol. Biol.* **127**, 309-338.

In-situ 法による Cu シース MgB₂ 超伝導線材の作製と特性評価

谷口 優 (学部)

日本大学理工学部超伝導研究室

〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台 1-8-14

Tel : 03-3259-0902 / FAX : 03-3293-8269

1. はじめに

近年、超伝導物質の応用が盛んである。中でも臨界温度 (T_C) 以下で抵抗がゼロという特徴を利用した超伝導ケーブルや超伝導マグネットといった線材応用への期待が高まっている。現在では Nb₃Sn や NbTi などが超伝導マグネットとして実用化され、リニアモーターカーや MRI、SQUID などに使用されている。

2001 年に青山学院大学でその超伝導性が確認された MgB₂ は 39 K の T_C を示す。これは金属系超伝導体の中で最も高く、これまでの液体 He を用いての運用が成されていた Nb₃Sn や NbTi に代わり、冷凍機冷却下での使用が期待される超伝導線材としてその応用が期待されている。

また MgB₂ 超伝導線材の作製法としては、シースと呼ばれる金属チューブに粉末を充填して作製する PIT 法が主流である。中でも In-situ 法は、Mg と B をシースに充填し、それを圧延して熱処理を加え、超伝導線材を得るという方法である。この方法で作製すると MgB₂ 粒間の接触が良いため、比較的高い臨界電流密度 (J_C) をもつ試料が得られる。またシースには、コアとよばれる超伝導領域が超伝導性を失った際の電流や熱を逃がす役割があり、電気・熱伝導度が高い Cu が理想的である。

2. 目的

本研究の目的は Cu シース MgB₂ 超伝導線材を In-situ 法で作製し、臨界電流密度 (J_C) とコア内部の組成を調査する事である。

3. 試料作製

試料作製工程は以下の通りである。Mg と B を化学量論比で 1 : 2 となるように秤量し、Ar 雰囲気中で 40 分間混合した後、荷重を加え、圧粉成型体を得る。この圧粉成型体を ϕ 8.0 mm の Cu チューブに充填し、 ϕ 2.5 mm まで圧延加工を行った。これを Ar 雰囲気中で 600 °C、650 °C、700 °C で 1 時間の熱処理を行ったものを試料とした。

4. 実験及び結果

試料評価として 4 T の外部磁場中の J_C 測定を行った。 J_C の定義は 1 cm の端子間に 1 μ V 発生した時の電流値を線材断面積で割ったものとした。その結果を図 1 に示す。この図で 600 °C の熱処理を行った試料の J_C は他の二つの試料に比べて低い。

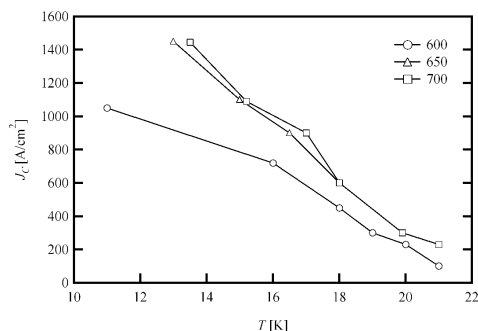


図 1 $J_C - T$ 特性

また、作製した試料のコア内の含有物を同定するため X 線回折測定を行った。測定には微小部 X 線回折測定装置を使用し、300 μm のコリメーターを用いた。作製した試料の微小部 X 線回折測定の結果を図 2 に示す。

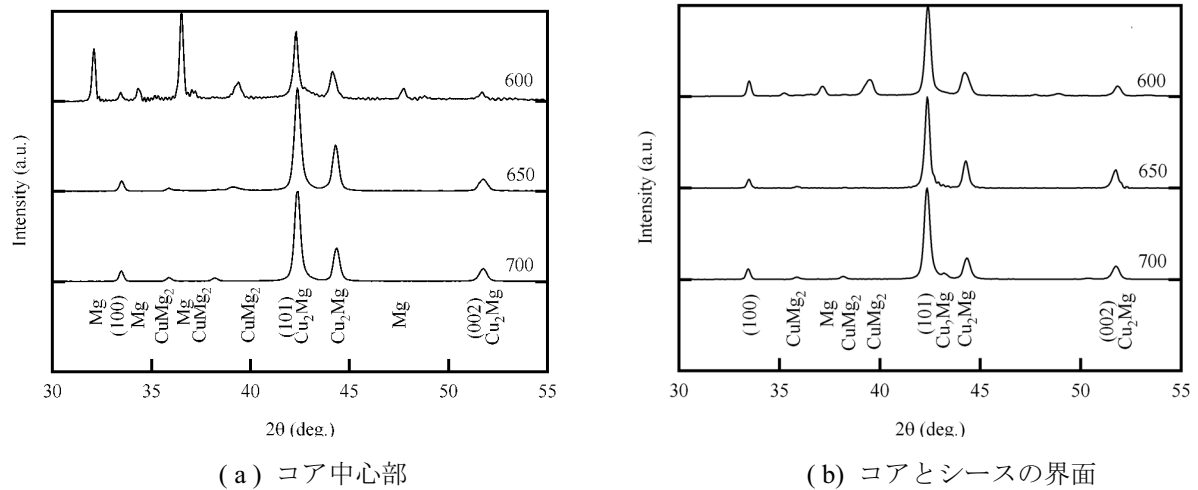


図 2 X 線回折パターン

この図で縦軸は最大ピーク強度で規格化した。これより、650 °C 及び 700 °C の熱処理を行った試料では、コア中心部及びコアとシースの界面のそれぞれで大きな違いはない。しかし、600 °C の熱処理を行った試料は他の二つの試料と比べコアの中心部に Mg が多く残留している。

5. 考察

600 °C の熱処理を行った試料はコア中心部に未反応の Mg が残留しているため、他の二つの試料に比べ、 MgB_2 の生成量が少ない事が推測される。

そのため、600 °C で熱処理した試料は他の二つの試料に比べて超伝導電流路が少ないため、臨界電流密度が低いと考えられる。

陽極酸化法を用いた酸化亜鉛薄膜の作製と物性評価

青池 将之 (学部)

日本大学理工学部物性実験研究室

〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台 1-8-14

Tel : 03-3259-0902 / FAX : 03-3293-8269

1. 研究背景

ZnO は、 $E_g=3.35$ eV の II-VI 族化合物 n 型半導体であり、室温で強いエキシトン発光を持つことから、紫外線レーザーの可能性が見込まれている。また、可視領域で透明であるという特徴をもっていることから、透明トランジスタへの応用が試みられている。しかし、ZnO 薄膜作製には RF スパッタや MBE などの超真空層が必要とされ、その後の生産性を考えると高品質の ZnO 薄膜を大量生産する上で膨大なランニングコストがかかると思われる。

2. 目的

真空層を用いず、比較的成本のかからない陽極酸化法により ZnO の作製を目指す。

3. 試料作製

3-1 陽極酸化法 (Anodic Oxidation)

陽極酸化は、電解質溶液中に電極を浸し、陽極の金属に酸化膜を作製する方法である (Fig.1)。本研究対象の Zn の他にも Al、Ti などで行われている [1]。

3-2 陽極酸化亜鉛 (Anodized Zinc)

純度 99.5 % の Zn Sheet を原材料に用い、エタノールで超音波洗浄後、陽極に取り付ける。陰極には Pt Sheet を用いて、電解質溶液中で定電流を印加することにより Zn Sheet 表面に酸化皮膜を生成する。今回作製した試料の条件を Fig.1 に示す。

3-3 フロー アニール処理 (Flow Anneal)

陽極酸化法により、作製した陽極酸化亜鉛に酸素流量 150 cc/min の雰囲気中で 300 °C、6 h の焼成処理を施した。以降、Zn Sheet に陽極酸化処理のみを施したものを as grown、陽極酸化処理後に O₂ フローアニール処理を施したものを annealed と定義する。

4. 測定と評価

4-1 XRD (X-ray Diffraction)

as grown と annealed の薄膜 X 線回折測定の結果を Fig.2 に示す。得られた薄膜が非常に薄いため入射角を 1° に固定し、X 線強度を得ることができるように測定した。as grown にはシュウ酸亜鉛二水和物と基板の亜鉛のピークが確認でき、annealed には閃亜鉛型六方晶 ZnO とシュウ酸亜鉛無水和物が生成されていることが確認できた。

よって、陽極酸化処理だけでは、六方晶 ZnO を生成できず、O₂ フローアニールを施すことによって六方晶 ZnO を生成することができた。

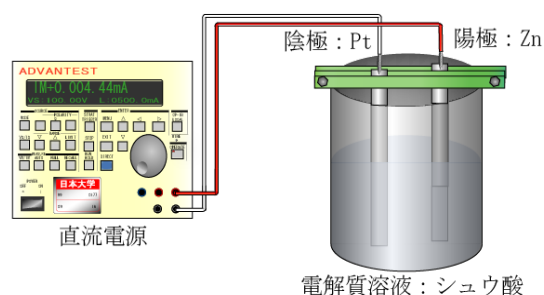


Fig.1 Anodization machine

Table.1 Anodization Conditions

電解質溶液	: H ₂ C ₂ O ₄ +2H ₂ O [0.4 mol/l]
酸化時間	: 1 h
印加電流	: 10 mA/cm ²
溶液温度	: 3 °C

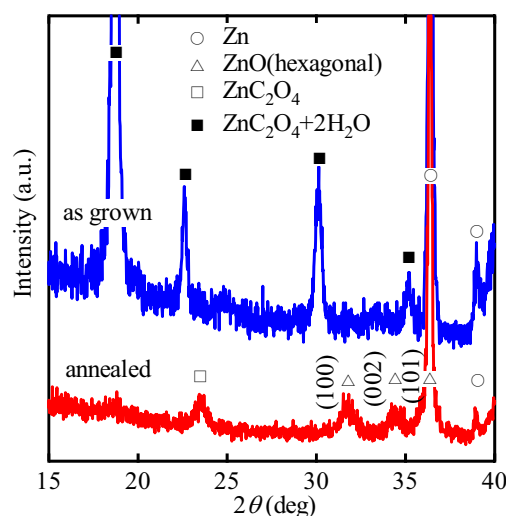


Fig.2 XRD spectra of as grown and annealed samples

4-2 PL 測定 (Photo Luminescence measurement)

励起光源に He - Cd レーザーの 325 nm ラインを用いて室温における PL 測定を行った。Fig.3 に (a) as grown と (b) annealed の PL スペクトルを示す。550 nm 付近を中心とした可視光領域の構造 λ_1 と 380 nm 付近を中心とした紫外領域のシャープな構造 λ_2 の 2 つのピークが検出された。また、O₂ フローアニール後に λ_1 の減少と λ_2 の増大が確認できる。

4-3 拡散反射率測定 (Diffuse Reflectance measurement)

反射率が急激に変化する領域とほぼ一定になる領域に引いた外挿線の交点をバンドギャップとして見積もった。これより as grown は、 $E_g=3.49$ eV、annealed は、 $E_g=3.35$ eV となっており、ZnO のバンドギャップである $E_g=3.35$ eV と同値を得ていることが確認できる(Fig.4)。また Fig.3 の λ_2 の発光は、ZnO のエキシトン発光であると考えられる。

4-4 低温 PL 測定 (Low Temperature Photo Luminescence measurement)

Fig.5 に annealed の低温($T=4.2$ K)と室温($T=300$ K)の PL スペクトルを示す。ここで Fig.5 の室温の発光強度は任意に拡大してある。 λ_2 の発光強度で規格化した λ_1 の拡大図を Fig.5 のうち図に示した。このときに λ_1 の発光強度が、約 0.03 から 0.003 へと減少していることがわかる。これは低温にしたことで熱励起による影響が抑えられ、遷移確率が減少したためだと考えられる。

5. 結果と考察

以上の結果より、XRD によって as grown に含まれるシュウ酸亜鉛二水和物が O₂ フローアニール処理によって閃亜鉛 ZnO 六方晶とシュウ酸亜鉛無水和物に変化したものと思われる。また、PL 測定において、O₂ フローアニール処理後に λ_1 の発光が大幅に減少していることから、 λ_1 の発光は酸素欠陥による不純物準位の発光と考えられる[2]。

陽極酸化法により作製した酸化亜鉛薄膜に O₂ フローアニール処理を施すことによって、閃亜鉛型 ZnO 六方晶の作製に成功した。

[1] 山本裕三、水木一成、馬場宣良、アルトピア summer (1984) 73.

[2] Xianghua Yu, Hongyan Wang, Applid Surface Science 158 (2000) 335.

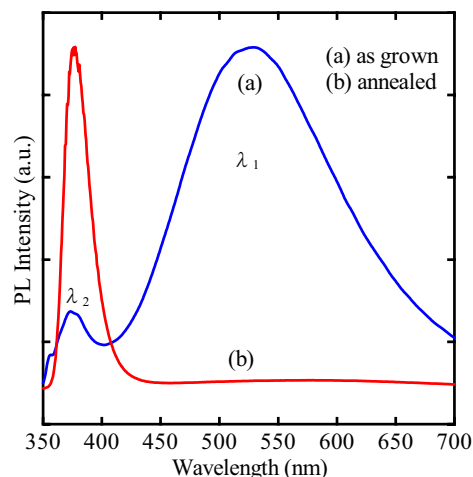


Fig.3 PL spectra of (a) as grown and (b) annealed samples

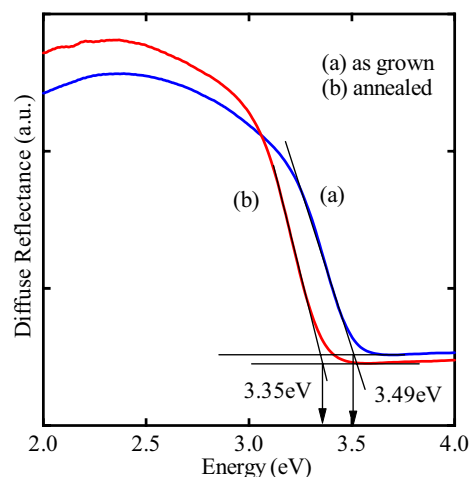


Fig.4 Diffuse Reflectance spectra of (a) as grown and (b) annealed samples

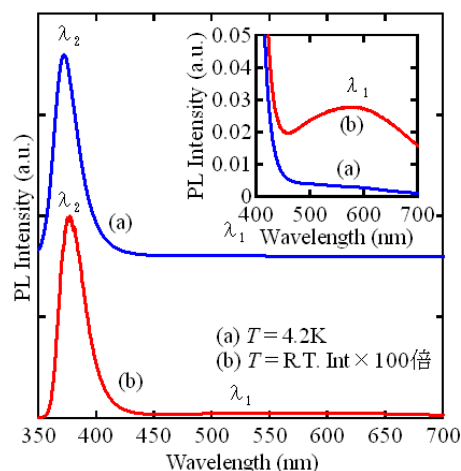


Fig.5 PL spectra of annealed samples

パラメトリック X 線源の実用化と線源としての現状

早川 恭史* A), 佐藤 勇 A), 早川 建 A), 田中 俊成 A), 桑田 隆生 A), 森 啓 A),
野上 杏子 A), 境 武志 A), 石渡 謙一郎 B), 中尾 圭佐 B),

A) 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

B) 日本大学理工学研究科量子理工専攻

Abstract

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) では 125 MeV 電子線形加速器をベースとしたパラメトリック X 線源 (PXR) の開発を進め、2004 年 4 月に first light を達成した。この新しい X 線源は 2 つのシリコン単結晶で構成されており、連続波長可変な単色 X 線を発生させることが可能である。現在までに 7~20 keV の範囲で X 線の発生に成功している。実際に観測された X 線のプロファイルは比較的均一になっておりイメージングに適していることがわかった。PXR に特徴的なエネルギー分布を種々の物質の K 吸収端まわりの撮像によって確認することができ、また屈折によるエッジ強調も観測された。これらは PXR がコヒーレンシーに優れていることを示しており、この特性を生かした応用研究が期待される。

1. FIRST LIGHT 達成までの経緯

1.1 パラメトリック X 線発生装置

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) では 125 MeV 電子線形加速器 (リニアック) をベースとした波長可変単色 X 線源を実現するために、X 線放射の素過程としてパラメトリック X 線放射 (PXR) と呼ばれる現象を選択し、その線源実用化を進めてきた。PXR とは図 1 のように X 線 Bragg 回折の入射 X 線を相対論的な荷電粒子に取り替えても Bragg 角に依存した単色 X 線が散乱される現象で、コヒーレンシーに優れた特性を持つ。PXR の基礎研究は様々な機関で主として数 10 MeV 以上の電子ビームを用いてなされてきたが、これまで波長可変 X 線源として実用化した例はなかった。

PXR においては入射電子ビームに対する結晶面の角度を変化させることにより、X 線の波長を制御することが可能であるが、その反面 X 線の放出方向も変わってしまうという問題がある。これを解決するために LEBRA では 2 結晶型のシステムを採用し、開発を進めた。このシステムの概略図を図 2 に示す。装置は真空チェンバー内に設置された 2 台のゴニオス

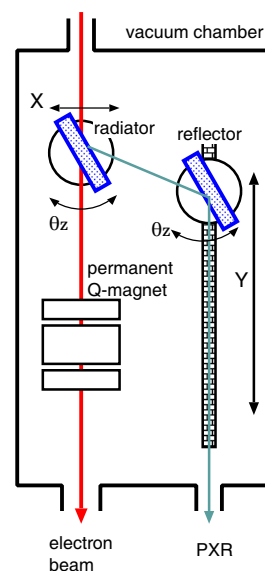


図 2: 2 結晶システムの概略図

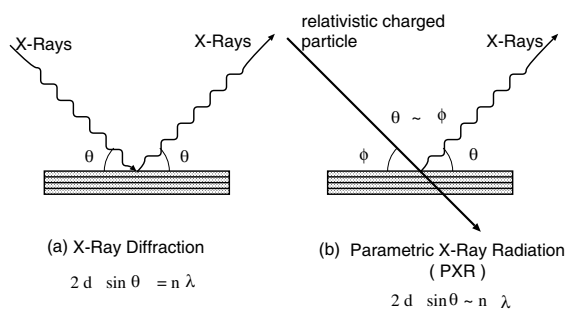


図 1: X 線 Bragg 回折と PXR の比較

*E-mail: yahayak@lebra.nihon-u.ac.jp

テージで構成されており、それぞれシリコン完全結晶がマウントされている。1 番目の結晶はターゲットであり、X 線の放射源として振る舞う。一方、2 番目の結晶は X 線に対して反射板の役割を果たし、並進移動することにより波長の変化に追従することが可能である。これによって固定されたポートから X 線を取り出すことが可能となる。また、ターゲット結晶の下流には電子ビームの発散によるビームロスを抑制するために四極永久磁石が設置されている。この他、2 結晶型の利点として X 線ビームラインが電子ビームラインから分離することによるバックグラウンド放射線の低減が挙げられる。LEBRA のシステムの場合、電子ビームラインから 20 cm 離れて X 線ビームラインが設置され、厚さ 2 m の遮蔽壁 (普通コンクリート 1 m+重コンクリート 1 m) を通して実験室まで運

表 1: LEBRA PXR 発生装置の仕様 (Si(111) 面使用)

電子エネルギー	100 MeV
電子ビーム電流	100 mA
マクロパルス幅	20 μ s
繰り返し	2.5 Hz
平均ビーム電流	5 μ A
結晶の Bragg 角範囲	5.5° ~ 30°
X 線エネルギー範囲	4 ~ 20 keV

ばれる。

表 1 は Si(111) 面を用いた場合の LEBRA PXR 発生装置の仕様である。ここで、ビーム電流は 2005 年 3 月時点で使用許可を得ている値である。X 線ポートでは厚さ 125 μ m のカプトン窓を通して大気中に取り出すため低エネルギー側では吸収によるロスが問題とはなるが、4 ~ 20 keV の範囲をカバーしている。

1.2 開発と障害

2 結晶型 PXR 発生装置は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」のスタートと共に 2000 年 4 月より開始され、装置本体と専用ビームラインの製作と設置は 2001 年 3 月までに完了した。PXR 専用のビームラインは世界でも初である。しかしながら、自由電子レーザーにかかわる放射線施設の使用許可と施設検査に時間が掛かってしまい、それによって PXR の使用許可申請も大幅に遅れることとなった。

新しいビームラインの試験運転は 2003 年末に開始され、2004 年 3 月付けで施設検査合格となった。試験運転中、偏向セクションでの四極電磁石の配線ミスの修正やターゲット結晶破壊が生じたための交換作業が行われた。後者の結晶破壊は深刻な問題ではあるが、幸いこれ以降は発生していない。バンチ圧縮効果やビーム集光系の調整など複数の要因が重なって発生したアクシデントであると思われるが、より高輝度化を目指すには解明すべき事象である。

1.3 First light

2004 年 4 月より本格的に PXR の実験を開始したが、試行錯誤の末シンプルな電離箱を検出器として 2 番目の結晶角度をスキャンングすることによって PXR の発生を確認することができた。その結果が図 3 のマークで表されており、X 線のエネルギーで 10 keV の条件であった。図中の実線はシミュレーション計算の結果であり、それとほぼ同じ幅を持つ角度分布であったので、電離箱のシグナルは PXR によるものと結論された。

2. PXR ビームの特性と現状

2.1 エネルギー範囲

現状では結晶として Si(111) 面を使用しているため、設計上のエネルギー範囲は 4 keV ~ 20 keV であるが、長波長に関しては窓や空気による吸収の問題と、Bragg

[$\times 10^{-5}$]

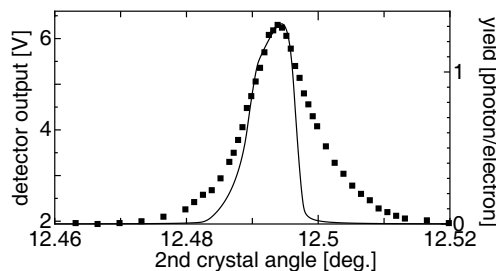


図 3: 第 2 結晶角度に対する X 線強度の依存性

角が大きくなるにつれて結晶表面上での電子ビームスポットサイズが小さくなり結晶の破壊が懸念されることから現在まで 7 keV までしか試みていない。従って、2005 年 3 月までの実績としては 7 keV ~ 20 keV が実際に達成した X 線のエネルギー範囲である。

2.2 X 線プロファイル

理想的な場合の PXR のはドーナツ状の空間分布であり、図 4(左)のように低エネルギーの場合ではそれが認められるが、X 線のエネルギーが高くなるにつれて分布が一様化する。原因としては結晶内での電子ビームの発散の効果や X 線動力学効果などが考えられるが、これについては今後詳しく研究していく必要がある。結果的としては、PXR 発生装置で得られる X 線ビームはイメージングに非常に適したものとなっている。図 4(右)はその一例である。この写真でもわかるように非常に輪郭が鮮明な像を撮ることができている。PXR は他の相対論的粒子による放射現象と同様に $1/\gamma$ (γ : ローレンツ因子) の広がりを持つが、ターゲット結晶での電子ビームスポットが点光源的に振る舞うため、エッジのにじみが非常に少ない像となる。10 keV 程度の領域の単色線源であるため、高エネルギー成分の散乱による影響がほとんど無いことも明瞭さの要因の一つであると考えられる。

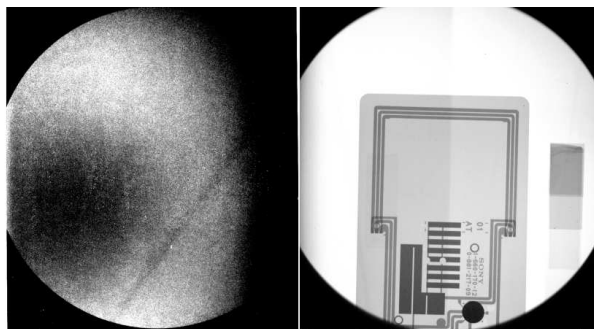


図 4: 左) 9 keV での X 線プロファイル (ポラロイド); 右) 13.5 keV での IC カードの撮像 (イメージングプレート)

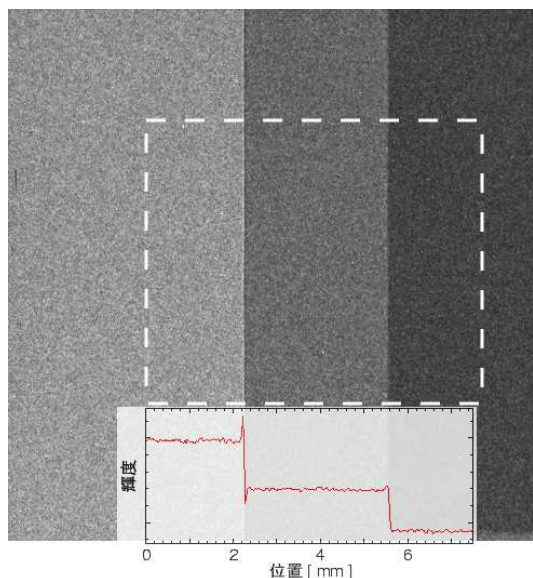


図 5: アクリル透過で受ける屈折によるエッジ強調

2.3 エッジ強調効果

PXR は原理的にコヒーレンシーに優れた線源であるため、波面が揃い高い干渉性を持つことが期待できる。その 1 つの例が屈折によるエッジ強調効果である。図 5 は厚さ 2 mm, 4 mm のアクリル板を透過した PXR を 120 mm 後方において X 線 CCD で観測した像である。アクリルを透過した X 線は屈折を受けるため、ある程度距離が離れたところで素通しの X 線と干渉して境界に特徴的な波形が生じ、エッジが強調された感じになる。この効果によって吸収差が少ないサンプルのイメージングにおいて輪郭が明朗な像の取得が可能となるので、生体組織の撮像などへの応用が期待できる。

2.4 エネルギー分布

PXR は水平方向にエネルギーが線形に変化していくという極めて特徴的なエネルギー分布を持つ。この性質は 2 結晶型にした場合も維持されており、むしろ 2 番目の結晶が分光素子として機能しエネルギー分解能を向上させている。図 6 は X 線エネルギー 13.5 keV で理論的に予想される PXR のエネルギー分布と、実際にポラロイドで撮像したイメージの明度をエネルギーの関数としてプロットしたものである。乳剤に使われている AgBr の Br-K 吸収端が見えており、(a)~(c) ではそれぞれ PXR の中心エネルギーが異なっているが、吸収端より高エネルギー側には同様な波形が見られる。これは X 線吸収微細構造 (XAFS) がイメージングによって直接観測されたと思われる。XAFS 測定への応用は PXR の特徴を生かしており、イメージングで効率のよい測定が可能となれば利用研究側にも大きな飛躍をもたらすと思われる。そのためにも、測定手法の確立やエネルギー分解能の向上が求められる。

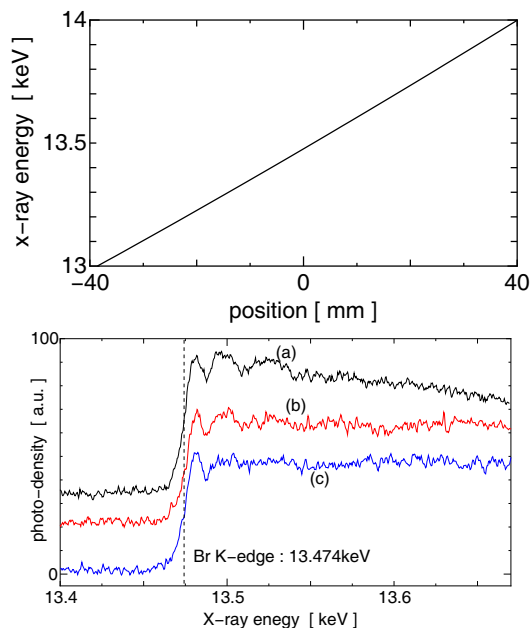


図 6: 左): PXR ビームの X 線取り出しポートでのエネルギー分布; 右) ポラロイドフィルムの乳剤に含まれる Br の K 吸収端まわりの挙動

2.5 パルス特性

LEBRA のリニアックはパルス駆動であるため、当然 PXR もパルス線源となる。現在はビーム電流の規制値が $5 \mu\text{A}$ であるので、通常はビーム電流 100 mA、マクロパルス幅 20 μs 、繰り返し 2 Hz で運転している。マクロパルスの duty ファクターは 1/25000 であり、これが積分強度を制約している。測定の S/N 比を考えると、マクロパルスでゲートを掛けて測定することができる検出器が望まれるが、現状ではまだ導入できていない。

また、マクロパルス中には 350 ps 間隔 (2856 MHz) のマイクロパルスがあるが、加速器の RF との同期が可能となればピコ秒からナノ秒領域の時分割測定が可能となる可能性がある。

3. 問題点および課題

3.1 結晶の加熱

PXR においては放射現であるターゲット結晶は直接電子ビームで照射されるため、それによる加熱が問題になる。ターゲット結晶のホルダーは銅製で水で冷却だれてはいるが、実際に図 7 にあるように結晶の熱膨張の影響が観測されている。X 線エネルギーが 13.5 keV (Bragg 角: 8.4°) の場合であるが、照射開始直後に最大強度になるように第 2 結晶の角度を合わせておくと直に X 線の強度が落ちてしまう。数 10 秒かかって熱平衡に近づいていくが、その間に第 2 結晶の角度も 0.01° くらいシフトしてしまう。長時間安定な照射を行うには、結晶の熱膨張を予測し第 2 結晶角度で補正する必要がある。

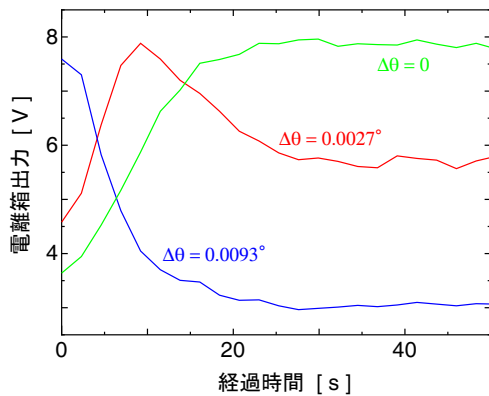


図 7: ターゲット結晶の熱膨張による変化の様子

3.2 X線集光系の調整

PXRは積分強度では弱い線源であり、しかも $1/\gamma$ 程度の指向性であるため線源から距離が離れると単位面積あたりのX線強度が弱くなってしまいます。しかしながら、PXRではターゲット結晶上のビームスポットが点線源的に振る舞うため、集光する効果が比較的大きいと考えられる。そこでX線集光のためにRh膜による全反射楕円鏡を用いたKirkpatrick-Baez(K-B)光学系を導入した。アライメントの難しさなどから光学系の調整はまだ不十分で、図8に示された像程度の集光しかまだ達成できていない。この光学系の設計上の倍率は1/5であるので、電子ビームの調整がまだ不十分でターゲット上のビームスポットサイズがまだ大きい可能性がある。また、垂直方向に関しては偏光方向が π 偏光となるため反射条件が厳しくなるのが原因かもしれない。しかしエネルギー分布を考慮すると垂直方向の集光は単色性に悪影響を及ぼさないので、この方向の集光を改善することが今後の課題となる。

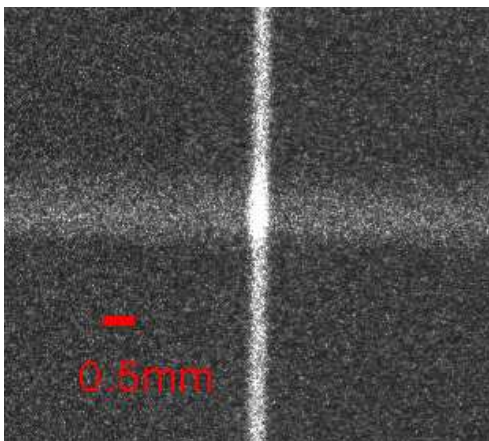


図 8: K-B 光学系による X 線集光の様子

4. まとめ

100 MeV クラスのリニアックと PXR の組み合わせによる単色 X 線源の開発に成功した。Si 完全結晶を用いた 2 結晶システムにより、PXR の特徴であるコヒーレンシーを保ったまま連続波長可変が可能となった。得られる X 線ビームは比較的一様な空間分布を持っており、イメージング向きの線源となっている。また屈折によるエッジ強調が観測されたことは、この線源がコヒーレンシーに優れていることを示している。

PXR の原理的な特性として水平方向に関して線形にシフトしていくエネルギー分布が挙げられるが、これを利用して様々な元素の吸収端の観測に成功している。AgBr の Br K-吸収端の高エネルギー側に XAFS 振動と思われる像が得られており、イメージングによる新しい XAFS 測定法の可能性が示唆される。

X 線集光やパルスに対応した検出器の導入などにまだ課題を残すが、PXR の特徴を生かすことにより先端的な利用研究が可能となる。

参考文献

- [1] Y. Hayakawa, et al., Nucl. Instrum. Methods B **227**, (2005) 32.
- [2] K. Hayakawa et al., Proc. of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, (2001) 110.
- [3] Y. Hayakawa et al., Proc. of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, (2004) 60.

LEBRA-PXR の波長可変 X 線による恐竜の卵化石中の Sr 同定
Identification of Sr Ion in the Titanosaurs Fossil Egg-Shell by Means of the Wavelength
Tunable LEBRA-PXR

寒河江登志朗¹、早川 恭史²、田中 俊成²、早川 建²、森 啓²、桑田 隆生²、野上
杏子²、境 武志²、佐藤 勇²

Toshiro SAKAE¹, Yasushi HAYAKAWA², Toshinari TANAKA², Ken HAYAKAWA²,
Akira MORI², Takao KUWADA², Kyoko NOGAMI², Takeshi SAKAI², Isamu SATO²

¹日本大学松戸歯学部第 2 解剖学講座、²日本大学量子科学研究所電子線利用研究
施設

¹Nihon University School of Dentistry at Matsudo, ²LEBRA at Quantum Science
Institute, Nihon University

はじめに

それぞれの元素は X 線の吸収に関して波長が長くなるほど吸収が大きくなる性質を
持っているが、その吸収の程度は元素に固有であり、さらにそれぞれの元素には特定
の X 線波長を境に吸収の程度が極端に変化する“X 線吸収端”という固有の現象を示
すことが知られている。この現象を観察することによって物質中の元素を同定すること
が可能である。

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設、LEBRA、の発生するパラメトリック
X 線、PXR、は波長可変という優れた性能を有している。この波長可変性を利用して、
物質中の元素の吸収端を探し出し、元素の同定が行える。今回この方法を利用して
恐竜化石卵殻としては珍しいケイ酸塩化した卵殻に認められた白色物質について検
索を行ったところ、Sr を含有することが明らかとなった。

材料と方法

用いた恐竜化石卵殻は竜盤類に属する白亜紀(1 億5千万年前~6500万年前)の
Titanosaurs sp.(Argentine 産)である(Fig.1)。卵殻の厚さは約 2mm、外表面にはマメロ
ンと呼ばれるドーム状の突起が多数並んでおり、内表面には通気孔の突起が飛び出
している。内部の構造は通気孔を構成するやや黒褐色を呈する暗調な部分とそれら
の間を充填している淡褐色のやや明調な半透明な部分とに大きく分けられる。一部の
空所、おそらく通気孔、に白色をした粉状ないし微細結晶の集合体が充填している
(Fig.1)。この卵殻を low speed diamond saw, ISOMET, Buhler, USA,を用いて約 1mm
厚さの薄片として X 線透過像撮影に供した。

LEBRA-PXR の発生とその性質は今回の総合研究成果発表会の「パラメトリック X 線

源の実用化と線源としての現状(早川ほか)」を参照。予備実験の結果から問題の白色物質は Sr を含有している可能性が高いことが知られたため、実験は Sr の吸収端である 16.10 KeV (0.7699 Å) を挟む 16.0 KeV (0.775 Å) と 16.2 KeV (0.765 Å) で透過像撮影を行った。

結果および討論

Fig.2 に 16.0 KeV (0.775 Å) と 16.2 KeV (0.765 Å) の LEBRA-PXR で撮影した Titanosaurus egg-shell の X 線透過像を示した。両者を比較すると、矢印の両端に示した部位では、16.0 KeV (0.775 Å) におけるよりも 16.2 KeV (0.765 Å) で撮影した場合のほうが X 線不透過になっていることが認められる。

この X 線波長に依存した不透過性の変化については、異なる薄切試料を使用したり検出器を変えたり実験日を変えたりしても認められたことから、Sr の吸収端を捉えたことは間違いがないと考えられる。

恐竜化石卵殻の組成と構造については多数の報告が存在するが、ケイ酸塩化した卵殻についての報告はほとんど見当たらない。実際にはケイ酸塩化した恐竜化石卵殻は多数産出しているようであるが、実態は明らかでない。このような化石鉱物(生体鉱物)についての詳細な研究が望まれている。

今後の方向として、LEBRA-PXR を利用した XAFS (X-ray Absorption Fine Structure, X 線吸収微細構造) 解析および EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure, 広域 X 線吸収微細構造) 解析への応用研究を準備中である。

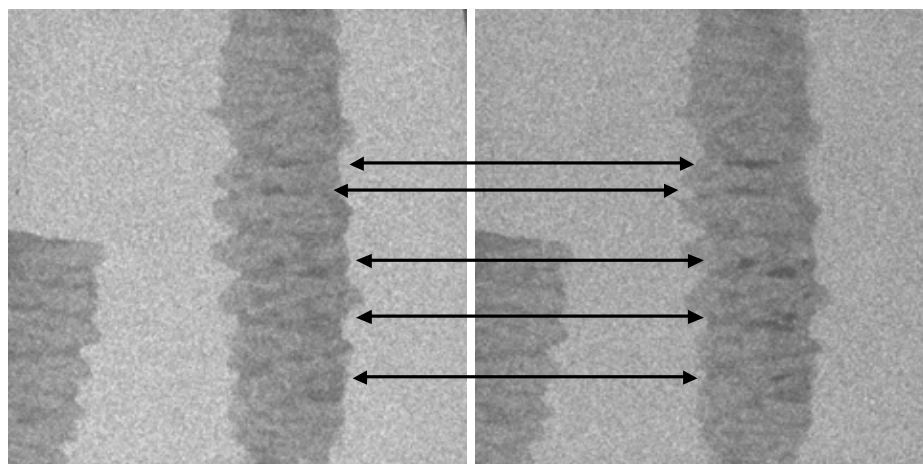


Fig. 2. X-ray transparent images for the Titanosaurus egg-shell.

Left: X-ray energy; 16.0 KeV (0.775 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. Note the left and right ends of the arrows.



Fig. 1. Titanosaurus sp. Egg-shell.

一般講演(ポスター発表)

FEL LINAC に於けるRF系の改良によるビーム安定化

横山 和枝¹, 佐藤 勇², 早川 建², 田中俊成², 早川恭史²

(KEK¹, 日大量科研²)

概要

LEBRAでは、FELを実用化するためにFEL用電子源に用いるリニアックの性能改善を行ってきた^[1]。光利用実験を目的としたFEL開発では、FELを安定に発振させるために電子ビームの安定化は特に重要な課題である。リニアックでは、高周波（radio frequency：以下RFと略す）電場を使って電子を加速するので、電子ビームを不安定にしている最大の要因は、RFの不安定性であると考えられる。したがって、リニアックでは、高品質な加速電子ビームを実現するために加速用のRFが高品質でなければならない。ビームを不安定にするその他の要因としては、電源変動^[2]や電子銃エミッションの不安定性など^[3]があげられるが、本稿ではRF系の改良によるビームエネルギーの安定化について述べる。

1. はじめに

1.1 LEBRA FEL 用 LINAC

LEBRAのように、短波長領域でのFELを目差す場合、長パルスの加速RFが必要となる。SバンドRF電子リニアックで20 μ sのパルス幅を持ち、電子ビームのエネルギーも高い研究施設は世界でも数が少ない^[4]。LEBRA LINACの構成を図1に示す。LEBRAでは、2台のクライストロンを独立したRFアンプでドライブしている。クライストロン前段のRFアンプは、Sバンド用のパルス増幅器で、パルス持続時間の間に位相が変動することは避けられない。それぞれのRFアンプで位相変動の大きさが異なるため、ドライブされるクライストロン相互間でも位相変動が生ずる。その結果、バンチしたビームは加速RFの位相変動によって、そのエネルギーが時間的に変動する。トランジスターによるRFの増幅は、手軽であり且つ、性能のよいものを作ることができるため、小さい電力を利用する場合のRF源として使われるのが一般的である。半導体アンプは温度変化に敏感であるため、恒温槽を用いて安定化している施設もある^[5]。しかし、恒温槽内の温度が安定でも、半導体ジャンクションの温度までは安定

化できない。長パルスの場合、特にジャンクション温度の上昇は無視できず、それによるパルス内の位相変動は除去できない。長パルスのRF系では、パルス内の位相変動も補償しなければならない。

RFリニアックは比較的小形で高エネルギーの電子ビームを発生できるという利点がある。さらに、特殊な入射システムを使わず、RFドライブ系にも恒温槽を使わないということは、低コスト化にもつながる。通常のRF電子リニアックをFEL用に実用化することは、今後、光利用実験を目的としたFELの開発に意義のあることである。

1.2 電子ビームのエネルギー変動

エネルギー変動は、運動量アナライザの下流に設置された電流モニターによって電子ビーム電流を測定することで確認された。図2に、LEBRAで電流モニターを用いて測定した電子銃エミッション（CM01）、加速器出口（CM05）、アンジュレーター入口（CM06）及び下流（FC）のビーム電流波形の例を示す。電子銃からは、約20 μ sのパルス幅で約300mAのビームが引き出されている。リニアック出口では、130mAが加速されている。しかし、アンジュレーター入口の電流、つまりアナライザシステムを通過後の電流は70mAで、パルス幅は8~9 μ sである。このとき、アナライザシステムでは、約90MeVのエネルギーにあわせて45°偏向電磁石を励磁し、1%のエネルギー広がり度で加速ビームをFELシステムに供給していた。従って、20 μ sのビームのうち、加速ビームのエネルギー広がりが1%以内にそろっているのは、半分程度しかないことが、このビーム電流波形から予想される。図2の電流波形に対するエネルギースペクトル測定の結果を図3に示す。エネルギースペクトルは、パルス内の1 μ sごとの平均電流から求めた。パルスの先端のピークは85.4MeVであるが、後端では89.3MeVである。パルス内で、約4MeVの中心エネルギーが変化していることがわかった。さらに、FELシステムに供給する電子ビームを不安定にしている主な要因と考えられるRF系の主要なパラメーターの変動測定を行った。

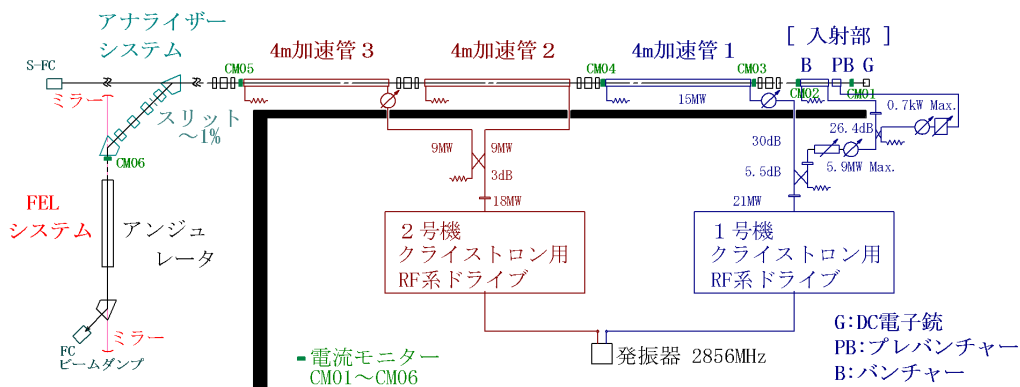


図1. LEBRA FEL LINAC の構成。

その結果、LEBRA のリニアックに於ける RF 出力の位相変動は、クライストロン用 RF ドライブ系に使用している RF アンプ内の半導体温度特性によってパルス内で起こるものと、周辺温度に伴う長時間のゆっくりとしたものがあることがわかった。電子ビームの問題点として、加速管に供給される大電力 RF の位相変動によって、パルス内でバンチ間隔が変動することとエネルギーが変動すること、及び長時間にわたってゆっくりとエネルギーが変動することが明らかになった。バンチ間隔の変動は電子パルスと光パルスの重なりを変えるので、FEL の利得を小さくする。また、パルス内のエネルギー変動は、運動量アナライザを通過できる電子ビームのパルス持続時間を短くする。長時間にわたるゆっくりとしたエネルギー変動は、FEL システムに供給する電流値を不安定にする。RF 出力の位相変動は、パルス内の電子ビームのエネルギー変化を引き起こし、FEL システムに供給する電子ビームを不安定にしていた。そこで、RF 出力のこの二つの変動を抑制するような位相変動補償システムを開発し、RF 系に導入した¹⁶⁾。その結果、電子ビームが安定になり、FEL 実験が容易に行えるようになった。この成果により、加速電子ビームの目標値が達成され、FEL 発振に成功した¹⁸⁾。

FEL 高利得のためには、光共振器のミラー間を往復する光パルスと入射電子ビームのマイクロパルスのタイミングを一致させることが必要不可欠である。図 4 に電子ビームの時間構造を示す。電子銃から $20\mu\text{s}$ のマクロパルスビームが放出され、入射部でマクロバンチしたビームがマイクロパルスとしてアンジュレーターに入射する。電子パルスは蛇行運動中に特定の波長の光と相互作用し、周期的に加速・減速の力を受けて、波長 λ_L の間隔にマイクロバンチ化される。増幅された光パルスが共振器を一往復する周期と電子パルス列の周期とを一致させれば、FEL の発振が立ち上がる。位相変動補償システムの導入後、LEBRA の RF 系に於いては、クライストロン RF 出力の位相変動は、主にドライブ系の 800W 出力 RF アンプの位相変動に因ることがわかった。 800W 出力 RF アンプの出力位相を関数発生器及びフィードバック方式を使用して平坦且つ安定にしてクライストロン入力に用いることによって、クライストロンで生じる位相変動を調べた¹⁹⁾。実際には、RF アンプ出力位相が平坦且つ安定であっても、クライストロンの出力位相には変動が見られた。クライストロン RF 出力変動を低減するために、位相がパルス内フラットトップにおいて 0.5° 以内の部分から $20\mu\text{s}$ 以上取り出せる 400WR アンプ (日本高周波株式会社製) を導入した¹⁰⁾。また、クライストロンの印加電圧の変動は、マイクロ波出力の振幅と位相の変動となる。この位相変動は共振器内での光パルスと電子パルスの空間的重なりを不安定にする要因の一つである。そのため、FEL 用電子ビームには平坦度の良いパルスが得られる PFN が要求される。そこで、これまでの PFN 調整方法を見直し、より平坦度の高い良質な RF パルスにするために、PFN インダクタンスの自動調整システムを導入した¹¹⁾。PFN 調整の結果、電子ビームエネルギーのパルス内変動はさらに改善され、FEL 利得も向上した。

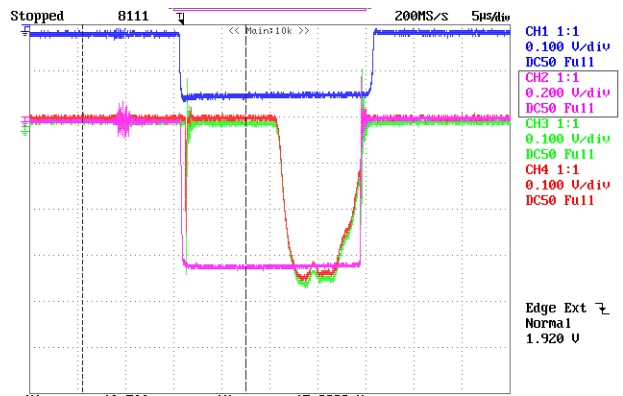


図 2. ビーム電流波形。
CH1 : 電子銃エミッション電流 (300mA , $20\mu\text{s}$)、CH2 : 加速器出口の電流 (130mA , $20\mu\text{s}$)、CH3 : アンジュレーター入口 (FEL システムに供給される電子ビーム電流波形、 70mA , $8\sim 9\mu\text{s}$ のパルス幅しかない。)、CH4 : アンジュレーター下流の電流 (70mA)。

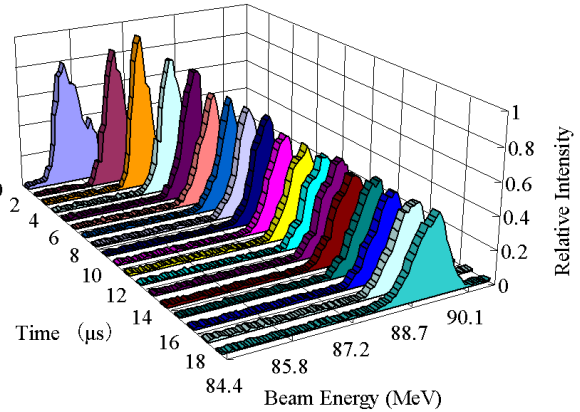


図 3. 電子ビームエネルギースペクトル。

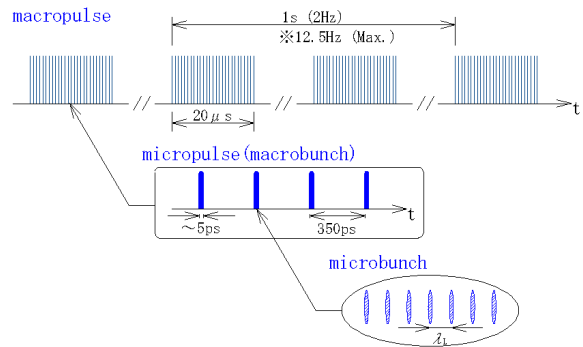


図 4. 電子ビームの時間構造。

2. RF 系の概要

2.1 RF 系の構成

クライストロン 2 号機 RF 系の構成を図 5 に示す。1 号機もほぼ同じ構成である。 2856MHz 発振器は、アジレント E4425B を使用し、(当初は、 2856MHz 発振器は 28.56MHz の安定化発振器の信号でフェイズロックされていた。¹²⁾ 出力は 19.4dBm の CW であり、手動の可変減衰器により適当なレベルまで減衰させた後、高速減衰器で矩形波の減衰制御信号によりパルス化され、次に RF アンプにより増幅される。さらにクライストロンで約 20MW に増幅され電

子加速に使用されている。RF アンプの前段の高速移相減衰回路 (H.S./A) では、位相と振幅を高速に制御する。後段の低速移相器 (L.S.) では、クライストロン 1 号機と 2 号機の RF 出力の位相を相対的に調整する。クライストロンに高電圧を印加するためのパルス変調器は、ラインタイプパルサーである。PFN はキャパシターとコイルの組み合わせよりなり、サイクロンによって放電させることにより、パルスを形成するものである。このパルスを 1:12 のパルストランスによって昇圧して、クライストロンのカソードとアノードの間に印加する。この印加電圧によって、カソードから放出された熱電子が加速され、入力空洞で速度変調を受ける。その後、電子はバンチされて出力空洞に到達し、増幅された RF を放出する。クライストロンの現在の運転条件は、繰り返し 2Hz、パルス幅 20 μ s、パルスモジュレータ入力電圧は 1 号機が 21.0kV、2 号機が 19.0kV で、クライストロンの印加電圧はこれらの 12 倍である。

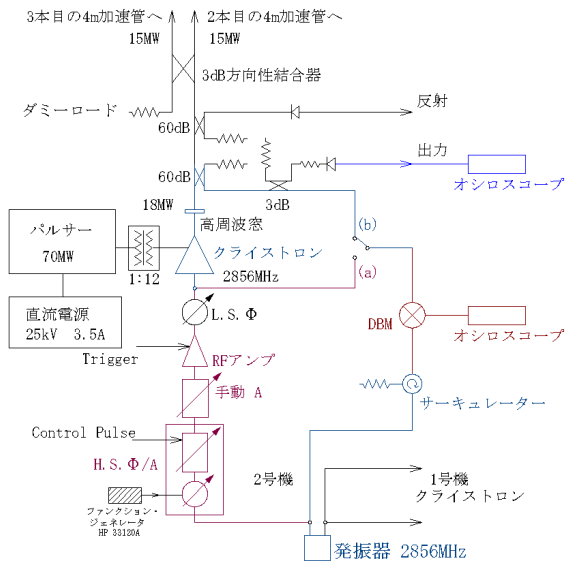


図 5. クライストロン 2 号機 RF 系の構成。

クライストロン出力 RF の全位相変動量 $\Delta\theta_{out}^k$ は、変動が小さい場合には、次のように展開できる。

$$\Delta\theta_{out}^k = \left(\frac{\partial\theta_{out}^k}{\partial V}\right)\Delta V + \left(\frac{\partial\theta_{out}^k}{\partial T}\right)\Delta T + \left(\frac{\partial\theta_{out}^k}{\partial P_{in}}\right)\Delta P_{in} + \left(\frac{\partial\theta_{out}^k}{\partial\theta_{in}}\right)\Delta\theta_{in} + \Delta\theta_{etc.}$$

.....(1)

ここで、第 1 項はクライストロンに印加される電圧の変動に対する位相の変化係数、第 2 項はクライストロンの空洞の特性に影響する温度変動に対する位相変動係数、第 3 項はクライストロンに入力されるパワーに起因する変動係数、第 4 項はドライブ電力の位相変動に対する変動係数、 $\Delta\theta_{etc.}$ は上記の変動以外の諸々の要因による変動について考慮した項である^[13]。

LEBRA の RF リニアック (加速周波数 2856MHz、パルス幅 20 μ s) の電子ビームバンチ長は 5ps 程度である^[14, 15, 16]。光パルスと電子パルスを 10% 以内の精度で重ねることを要求すると、パルス内の位相変動を 0.5 以内に抑える必要がある。印加電圧変動とクライストロン出力 RF の位相変動の関係^[17]から、こ

れに要するパルス平坦度は 0.08% である。また、このときの加速電圧変動は、クライストロン出力 RF の電力変動の関係式^[18]から 0.1% である。

表 1. 長時間位相変動の諸要因

要因	変化率 ($^{\circ}$ / $^{\circ}$ C)	温度変 化 ($^{\circ}$ C)	位相変 動 ($^{\circ}$)
冷却水温度変化	0.6	± 0.1	0.12
ケーブル (10m)	10^{-2}	3.5	0.035
ドリフト管長の収縮	10^{-4}	-	-
クライストロン出力	3.0	± 1	± 3
RF アンプ出力	2.0	± 1	± 2

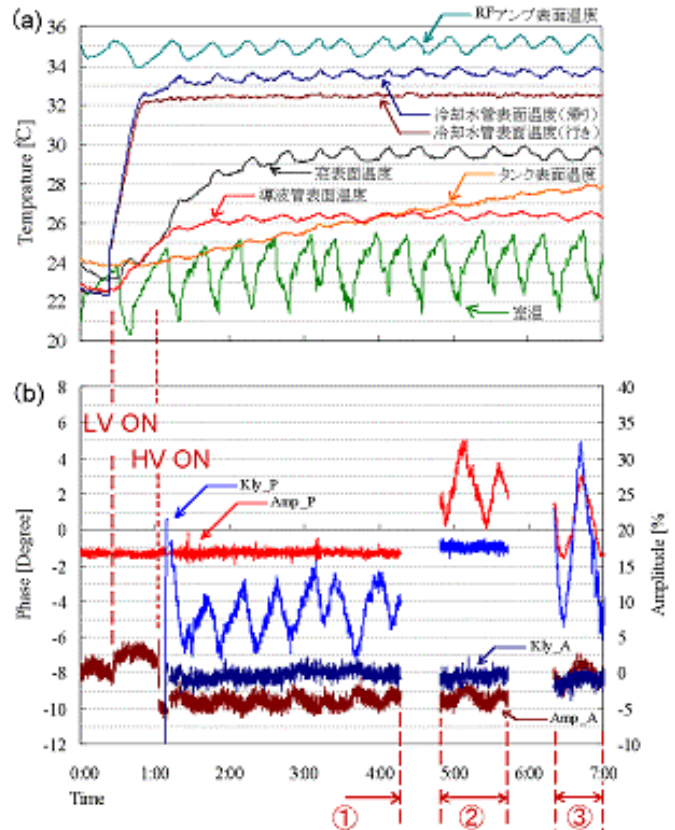


図 6. 温度と位相及び振幅の日変化。(a) 温度変化。(b) RF 系の位相と振幅。① RF アンプ出力位相をフィードバック補償した場合。② クライストロン出力位相をフィードバック補償した場合。③ フィードバック補償しない場合。

2.2 RF 系の長時間の位相変動

RF 系において位相変動を引き起こす要因としては、① 加速管自身に由来する位相変動として、加速管の各空洞間の周波数同調のずれ (静的な変動) によるもの、冷却水変動による加速管の伸び縮みによるもの、② クライストロンから加速管までの伝送系の伸び縮みによる位相変動、③ 2.1 で述べたクライストロン出力 RF の位相変動 $\Delta\theta_{out}^k$ 等があげられる。表 1 に示すように①、②は小さい。クライストロンモジュレータ室は、空調機 (定速式) で室温を $\pm 1^{\circ}$ C にしているため、周辺環境温度による③の方が大きい。図 6 に各々の (a) 温度と (b) 位相及び振幅の日変化を示す。この結果から、低電圧系統 (LV) を通電してからこれらの温度が一定の周期で変化するように

なるまでには約2時間程度を要することがわかる。また、RF系の位相変動が周辺環境温度に依存していることがわかる。この周期は、約30分である。また、図2③区間に示すように、クライストロン出力は、RFアンプ出力の変動を含むので、その変動はかなり大きく観測されている。

2.3 RF系のパルス内の位相変動

RFが長パルスの場合、半導体増幅器での半導体ジャンクションの温度の上昇は無視できず、それによるパルス内の位相変動は大きい。パルス内での位相変動の測定では、RFアンプ出力よりもクライストロン出力の方が大きく観測されている。図7に、パルス内の位相変動波形を示す。RFアンプのパルス内位相変動は $\pm 0.6^\circ$ (Ref2)で、クライストロンでは $\pm 1.5^\circ$ (Ref4)ある。関数発生器でRFアンプ出力位相を補償して $\pm 0.4^\circ$ (Ch1)にした場合、クライストロンの出力位相は $\pm 1.3^\circ$ (Ch3)になる。RFアンプで除去された位相変動の $\pm 0.2^\circ$ は、クライストロン出力でも同じように除去されている。この補償の結果から、RFアンプの位相変動が直接起因していないクライストロン位相変動が、 $\pm 0.9^\circ$ あることがわかる。(1)式に示したように、第4項のドライブ電力の位相変動、つまりRFアンプの出力変動はできるだけ小さくすることが望ましい。そこで、位相がパルス内フラットトップにおいて 0.5° 以内の部分 $20\mu\text{s}$ 以上取り出せる400W RFアンプ(日本高周波株式会社製)を導入した。図8に出力RFの位相と振幅のパルス波形を示す。増幅されるマイクロ波の位相は、立ち上がり直後は急速に変動するが時間が経過するに従って変動は小さくなることを利用し、RFアンプで増幅するマイクロ波のパルス幅を長くし(約 $30\mu\text{s}$)、図8(b')に示すように、位相変動が収まった部分を位相反転してRF出力として切り出し、クライストロン入力に用いるようにした。しかし、図8(a)、(b)からわかるようにRFアンプ個々の特性が異なることは避けられない。また、パルス平坦度は図7よりも明らかに改善されているが、パルスの立ち上がり部分の変動は残存しているため、パルス内の位相変動補償が必要である。

3. 位相変動補償システム

位相補償システムの概略を図9に示す。このシステムは、電子回路と高速移相減衰器(ϕ/A)を利用したもので、長時間の位相変動及びパルス内位相変動を同時に補償するものである。発信器(S.G.)をリファレンスにしてRFアンプ及びクライストロンの出力位相をダブル・バランスド・ミキサーで検出する。長時間の位相変動補償は、次のパルスを補償するような遅いフィードバック回路の方式である。ミキサーからの検出信号は、位相補償ユニットに入力される。この位相検出電圧(ϕ_m)がゼロになるように、位相補償ユニットでは、位相コントロール信号(PHASE CONT)を ϕ/A に出力する。ゼロからずれた位相量から、次のパルスに対する補償信号が作られる。パルス内の位相変動補償は、パルス毎に波形が再現されるので、ファンクションジェネレータによって、フィードフォワードの補償信号を作成する方式にした。ミキサーで検出された信号をオシロスコープを返してPCで読み込み、適切な補正関数を計算する。この補正関数をファンクションジェネレ

ータで作成し、フィードバックの制御信号に重畳することによってパルス波形を補正する。高速 ϕ/A はパルス電圧で制御する仕様であるため、パルス電圧として出力した波形に、ファンクションジェネレータの信号を乗せるように回路を構成した。

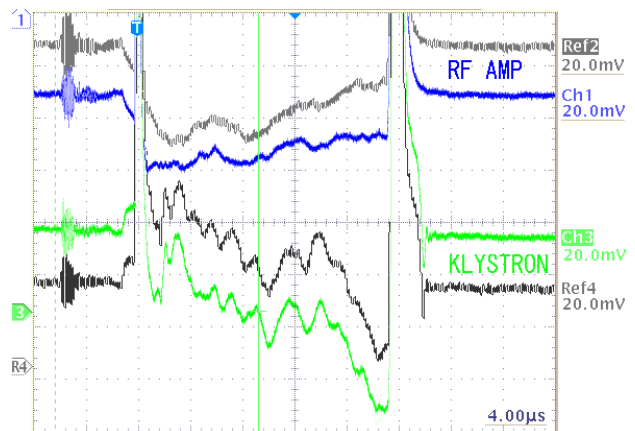


図7. パルス内の位相波形。Ch1、Ref1: 1.0°/div、Ch3、Ref4: 0.8°/div。

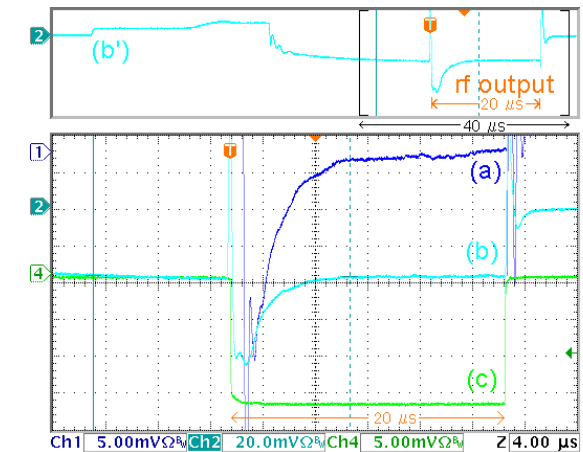


図8. 400W Max RFアンプの出力位相と振幅。(a)1号機RF位相(0.3°/div)、(b)2号機RF位相(0.7°/div)、(b')は横軸を拡大して表示したもの。(c)2号機RF振幅 #2 (120 W/div)。

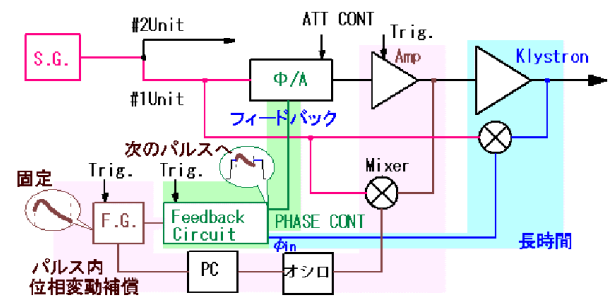


図9. 位相補償システムのブロック図。

4. 位相変動補償の結果

長時間に於けるクライストロン出力の位相変動は、位相変動補償システムによるフィードバックによって、周辺環境温度の影響を受けなくなり、 $\pm 0.2^\circ$ に改善された。2台のクライストロンがリファレンスの発信器に対して同じ安定度を持つようになった。図2②区間にクライストロン出力位相をフィードバッ

ク補償した場合を示す。RF アンプ出力位相が変動しても、クライストロン出力位相の変動は抑制されていることがわかる。

図 10(a)にファンクションジェネレータによってパルス内の位相変動補償をした場合の RF アンプの出力位相を示す。フラットトップが $\pm 0.25^\circ/20\mu\text{s}$ のパルスが得られている。しかし、図 10(b)が示すように、クライストロン出力には、 $1.5^\circ/20\mu\text{s}$ 位相変動が残っていることがわかる。

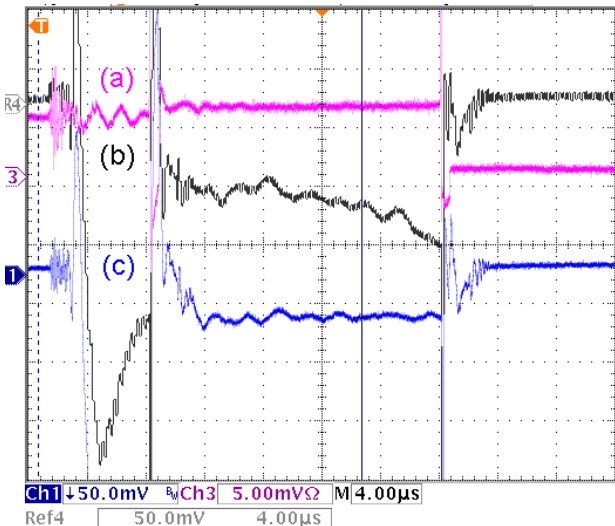


図 10. 位相変動補償をした場合の 1 号機 RF 出力位相。(a) 400W Max RF アンプ位相 ($0.3^\circ/\text{div}$)、(b) PFN 調整前のクライストロン出力位相 ($1.5^\circ/\text{div}$)、(c) PFN 調整後のクライストロン出力位相 ($1.5^\circ/\text{div}$)。

5. PFN 調整

PFN の手動調整では、設計時に予定していた PFN 平坦度 0.05% は達成されず、1% 以下にすることが困難であった。このパルス変動は、加速電子ビームのパルス内の不均一なエネルギー分布を引き起こし、FEL 発振の安定性を妨げる要因となる。そこで、このシステムを見直し、PFN 調整をパソコンを通して操作できるように改良した。さらに、最適な平坦度を出すために適切なインダクタンスの組み合わせを計算し、これを基に PFN 調整を行った。

PFN は 30 段のインダクターとコンデンサーから成る。各インダクタンスは、コイルを巻きつけた筒にモーター駆動によってアルミシリンダーを出し入れすることにより変えることができる。シリンダーの挿入長はポテンショメータを利用して、パネルメータに電圧表示される。モーターはデジタル I/O ボードを通してパソコンで制御される。最適な平坦度を出すために適切なインダクタンスの組み合わせは、次のような方法で算出した。各インダクタンスを変えて生じるパルス波形の電圧変化を測定する。この 30 段分の変分から、最小二乗法を用いて最適な平坦度を出すために適切なインダクタンスの組み合わせを算出する^[11]。図 11 に、1 号機クライストロンの RF 出力の波形を示す。今回の改良では PFN 平坦度 0.06%/17 μs まで達成することができた。この平坦度は、位相に換算すると $\pm 0.25^\circ$ 以内を十分に達成している。

6. PFN 調整の結果

PFN 調整の結果、加速電子ビームのパルス内エネ

ルギー変動も改善され、FEL 発振の安定性も向上した。図 12 に PFN 調整前と調整後のエネルギースペクトルを示す。パルス内で 0.5% あったエネルギーシフトは 0.25% に抑えられている。図 13 に位相変動補償をしない場合の FEL 発振状態を、図 14 に RF 系改良後の FEL 発振を示す。FEL gain も明らかに改善され、発振もより安定になったことがわかる。

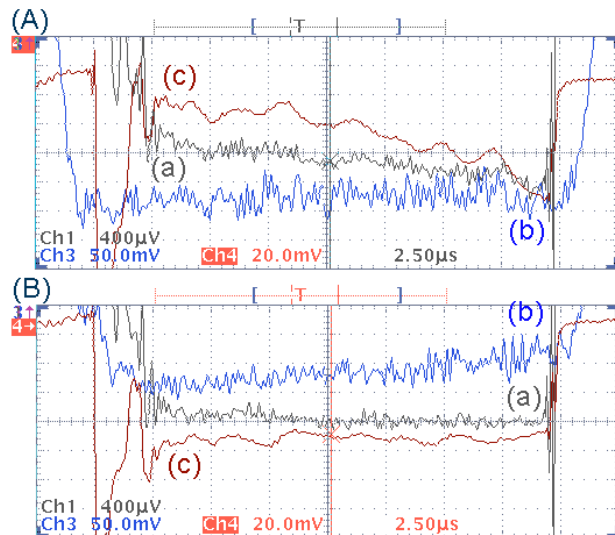


図 11. 1 号機クライストロンの RF 出力平坦度。(A) 調整前、(B) PFN 調整後 (a) RF 振幅 ($0.5\%/ \text{div}$)、(b) PFN 電圧波形 ($0.2\%/ \text{div}$)、(c) RF 位相 ($0.6^\circ/\text{div}$)。

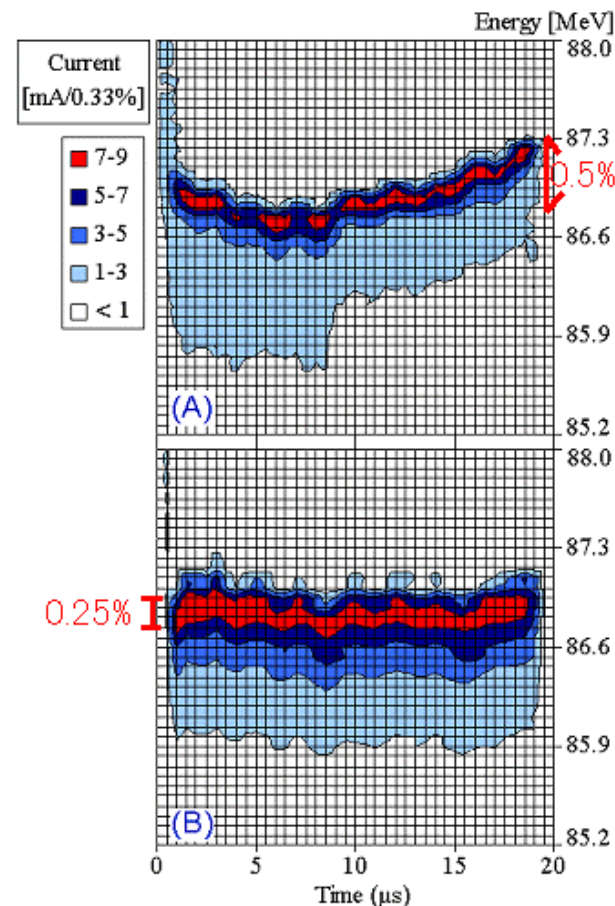


図 12. 電子ビームのエネルギースペクトル (86.8 MeV)。(A) PFN 調整前、(B) PFN 調整後。

7. まとめ

位相変動補償システムによって、長時間のゆっくりとした変動は 0.9 度/℃から±0.2 度に抑制された。クライストロン RF 出力位相のパルス内変動は、新しい RF アンプと位相変動補償システムの導入及び PFN 調整によって 3 度/17 μ s から 0.5 度/17 μ s に改善された。この結果、電子ビームのエネルギーシフトは半分に抑えられ 17 μ s に渡って均一なエネルギーで電子ビームを FEL システムに供給できるようになった。RF 系の改良によって、電子ビームのエネルギー変動は抑制され、高ゲインで安定な FEL 発振を得ることができた。

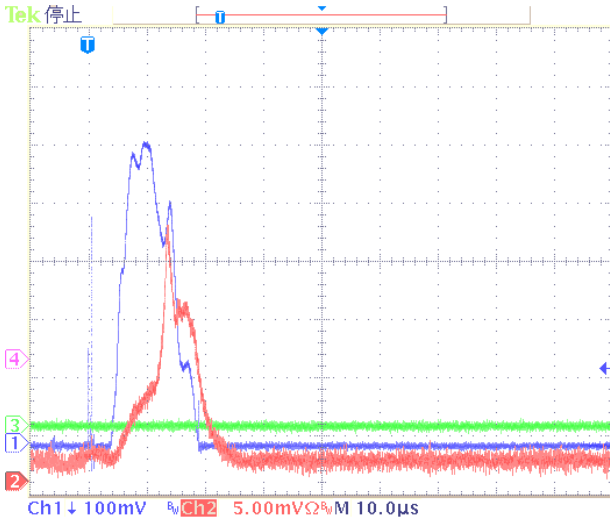


図 13. 位相変動補償及び旧アンプを用いた場合の電子ビーム電流と FEL 発振波形。CH1: 電子ビーム電流 100mA CH2: FEL 光強度検出器の信号。

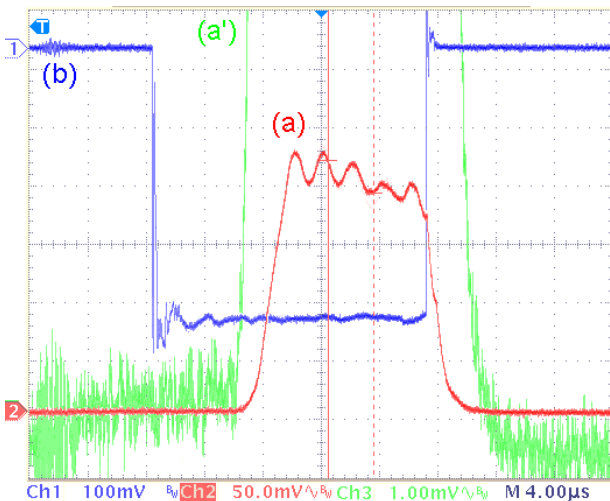


図 14. RF 系の改良後の電子ビーム電流と FEL 発振波形。(a) FEL 光強度検出器の信号、FEL 光強度検出器が飽和した状態。(a') は (a) の縦軸スケールを変えたもの。FEL gain は約 5%。(b) 電子ビーム電流 (20 mA/div)。

参考文献

[1] 佐藤 勇、他., "学術フロンティア推進事業と電子線利用研究施設進展の総括", Proc. of this Meeting.
 [2] 早川 建、他., "商用電源変動とビーム不安定性 II" Proceedings of the 28th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.90, 2003. URL:

<http://www-linac.kek.jp/mirror/lam28.tokai.jaeri.go.jp/proceedings/TC-1.pdf>

[3] 森 啓、他., "電子線利用施設における FEL 出力変動の測定", Proceedings of the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.561, 2004. URL:

<http://lam29.lebra.nihon-u.ac.jp/WebPublish/5P40.pdf>

[4] 横山 和枝., "FEL LINAC に於ける RF 系の改良によるビーム安定化に関する研究", 日本大学博士論文, p.6, 2002.

[5] 佐藤勇, "放射光入射器増強計画-KEKB に向けて", KEK Report 95-18, p.204, 1996.

[6] 横山 和枝、他., "RF Phase Drift Compensation with a Function Generator", Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.108, 2000. URL:

http://www-linac.kek.jp/mirror/www.spring8.or.jp/JAPANESE/conference/li-me00/proc_index.html

[7] 横山 和枝、他., "クライストロンドライブ系の位相安定化", Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.231, 2001.

URL: <http://conference.kek.jp/lam26/PosterPr.htm#L5>

[8] Y.Hayakawa, et al., "First Lasing of LEBRA FEL in Nihon University at a wavelength of 1.5mm", submitted to Proc. of the 23rd International FEL 2001 Conf., Darmstadt, Germany, 2001.

[9] 横山 和枝、他., "LEBRA クライストロンの位相変動測定", Proceedings of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.287, 2002. URL:

<http://www-linac.kek.jp/mirror/lam27.iae.kyoto-u.ac.jp/PDF/8P-07.pdf>

[10] K.Yokoyama, et al., "Improvement of the PFN Control System for the Klystron Pulse Modulator at LEBRA", Nucl. Instr. and Meth. A 528 (2004) 239-243, Proceedings of the 25th International Free Electron Laser Conference and 10th FEL Users Workshop (Tsukuba, Ibaraki, Japan, Sep.8-12, 2003).

[11] 横山 和枝、他., "PFN インダクタンスの自動調整システム", Proceedings of the 28th Linear Accelerator Meeting in Japan, p.464, 2003. URL:

<http://www-linac.kek.jp/mirror/lam28.tokai.jaeri.go.jp/proceedings/TP-55.pdf>

[12] T. Tanaka, et al., "Test Operation of the RF System of the 125 MeV LINAC at Nihon University", Proceedings of the 22nd Linear Accelerator Meeting in Japan, p.172, 1997.

[13] 横山 和枝., "FEL LINAC に於ける RF 系の改良によるビーム安定化に関する研究", 日本大学博士論文, p.47, 2002.

[14] Hiroyuki Nakazawa, et al., "Radiation from the FEL Undulator at Nihon University", Proceedings of the 12th Symposium on Accelerator Science and Technology, p.394, 1999.

[15] Y.Hayakawa, et al., "Characteristics of the Fundamental and 3rd Harmonic FEL at LEBRA", Nucl. Instr. and Meth. A507 (2003) 404.

[16] K.Yokoyama, et al., "Bunch Length Measurements at LEBRA", Proceedings of LINAC 2004 (August 16-20, 2004, Lubeck Germany), to be published.

[17] R.B.Neal, General Editor, "THE STANFORD TWO-MILE ACCELERATOR", W.A.Benjamin, Inc., p.294, 1968.

[18] 設楽哲夫, "高周波源", OHO'90, p.III-5, 1990.

Sバンドクライストロンの長パルス化

境 武志^{a),*,1}、佐藤 勇^{b)}、福田 茂樹^{c)}、道園 真一郎^{c)}、早川 建^{b)}、田中 俊成^{b)}、早川 恭史^{b)}、菅野 浩一^{a),2}、石渡 謙一郎^{a)}、中尾 圭佐^{c)}

a) 日本大学大学院 理工学研究科

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎物理実験B棟

b) 日本大学 量子科学研究所 電子線利用研究施設

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎物理実験B棟

c) 高エネルギー加速器研究機構

〒305-0801 茨城県つくば市大徳1-1

1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設(LEBRA)では0.3～6.0 μm までの赤外領域から紫外領域の自由電子レーザー(FEL)、及び、パラメトリックX線放射に関する研究開発を進め、これらの線源を用いた利用拠点を目指している^[1]。特に短波長FEL発振では利得が低くなるため、パルス幅の広い電子ビームが要求され、LEBRAではRFパルス幅20 μs の運転が必要となる。

LEBRAではKEKとの共同研究を提携して、KEKのフォトンファクトリーの入射器に使用していた三菱電機製PV-3030A1クライストロンを使用している^[2]。このクライストロンは短パルス用であり、仕様がパルス幅6 μs 、繰返し50Hz、出力電力33MWである。LEBRAでのクライストロン要求仕様は、最大出力電力が30MW、RFパルス幅が20 μs であり、繰返し数が最大でも10～12.5Hzである。平均電力としては低いが、RFパルス幅を10 μs より広げると、高周波窓破損が続出し、パルス幅20 μs の長パルス運転に対応できなかった。一方、KEKでの短パルス運転(パルス幅4 μs)では、59台のクライストロンアセンブリーに使用している高周波窓の平均寿命は1.9万時間で、平均無故障時間は約6.7万時間に達している^[3]。しかしLEBRAでは、短いもので数百時間、長いものでも千数百時間程度でクライストロン窓は破損した。クライストロンは高周波出力窓破損が致命的な損傷となるため、長パルス用クライストロンは出力窓を2個設け、出力窓の負担軽減を図っている。したがって、出力窓1つのSバンド用クライストロンでは、出力電力20MW以上で、パルス幅20 μs を超える大電力長パルス運転の例は、高周波窓の破損が大きな問題となり、これまで無かった。

2. クライストロン高周波窓の破損

図1-(a)に破損が起きた高周波窓の様子を示す。図はクライストロン高周波窓の導波管部分をばらし、クライストロン下流側の接続部分とセラミック表面を対応させ並べている。図1-(b)にクラック部分の拡大写真を示す。セラミック面にフランジとの間に発生した放電による痕が確認された。通常、高真空中でベーキングされたセラミックは放出ガスを低減す

るが、セラミックは多孔性の磁器である事から、何らかのきっかけで表面にわずかな損傷が発生するとガス放出等が起き、放電が誘発されセラミック表面が熔融することがある。セラミックの場合、局所的な熔融が生じると、その部分は加熱されやすくなり、更に熔融が進む傾向にある^[4]。この状態が継続してクラックが表から裏へ成長し、セラミックに貫通孔が生じたと考えられる。

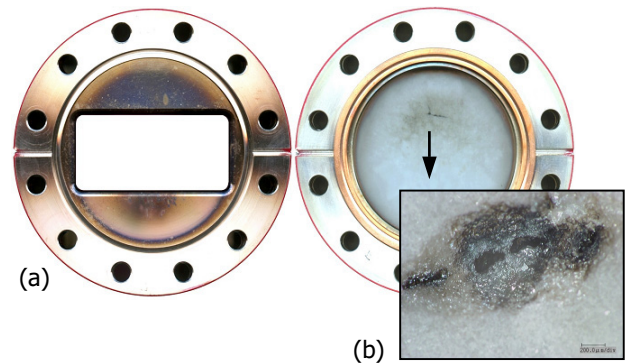


図1：(a)クライストロン下流側接続部と、RF窓セラミック破損の様子。フランジには放電痕が見られ、セラミック表面にはクラックがある。(b)：セラミック破損部分拡大写真。穴の周囲は熔融を起こし、裏側へと成長した穴が開いている。

3. 高周波窓の破損原因の推定と対策

大電力セラミック高周波窓はクライストロンの出力ポート以外に、クライストロン故障時等の交換作業の軽減を考慮し、加速管とクライストロン出力窓口を結ぶ導波管にも挿入している。この挿入窓はクライストロン窓と構造、材質は同じものを使用している。さらに窓を通過する高周波電力はほぼ同じである。しかし、加速管側高周波窓の故障は1997年のリニアック建設時からこれまで1、2号機共にほとんど発生しておらず、極端に故障率が低かった。さらに故障が発生した場合の原因としては、空調機の故障により発生したと見られる導波管接続部等からのリークや、加速管設置ミス等から発生したものであり、クライストロン高周波窓の破損とは違っていた。またKEK入射器ではシステム構成がLEBRAとほぼ同じであるが、どちら側の窓も同程度破損が起きており、このように片方が集中して壊れることは起きていない^[3]。

破損の原因として、加速管入力カップラーで反射が発生しやすいことから、クライストロン窓部分に

*Corresponding author. Tel.: +81-47-469-5489; fax: +81-47-469-5490
E-mail address: sakai@lebra.nihon-u.ac.jp

¹Present address: Laboratory for Electron Beam Research and Application, Nihon University, 7-24-1 Narashinodai, Funabashi, Japan.

²Present address: AET JAPAN, Inc., URSIS Bldg, 8.9th Floor, 1-2-3, Manpukuji, Asaoku, Kawasaki-City, Kanagawa, Japan.

反射によって定在波が立ち、電界が高くなっているのではないかと考えられた。しかし、クライストロン及び、加速管側の高周波窓どちらもほぼ同じ位相条件であるため、クライストロン高周波窓側が集中して壊れている原因とは考えにくかった。

次に、クライストロン出力高周波窓付近と、加速管側窓周辺の比較を行った。図2にクライストロン出力部立体回路と真空排気装置の位置関係を示す。クライストロン窓を主に引いている60l/sイオンポンプまでは約2.6mも離れているが、加速管側窓までは約1mしか離れていない。これらのことから、クライストロン窓の破損が加速管側窓の故障に比べ多かったのは、クライストロン高周波窓周辺の排気能力不足が主な原因と考えられ、窓等でのガス放出時における真空度の違いや、真空回復時間に原因があると推定した。そこで、クライストロン下流側の真空排気能力の評価を行った。

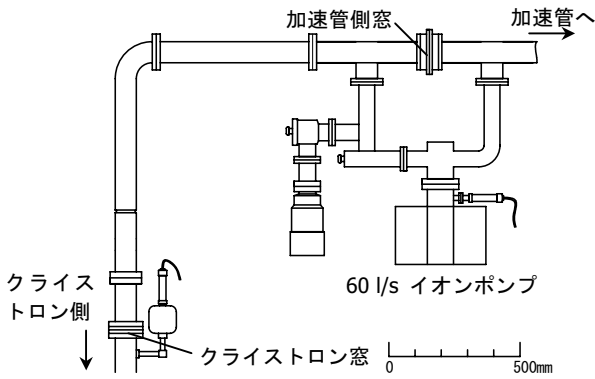


図2：クライストロン出力部立体回路と真空排気装置の位置関係。60l/sイオンポンプから約1mの位置にクライストロンと加速管の仕切り用に高周波窓を挿入している。構造、材質はクライストロン高周波窓と同等。

4. 真空排気コンダクタンスの評価

導波管等の形状を考慮に入れた真空排気コンダクタンスを求め、排気系の評価を行う^[5]。クライストロン窓での実効排気量を気温20℃の場合で換算すると、およそ8.1l/sであった。同様に、クライストロンと加速管との間を仕切っている加速管側窓部分での実効排気量は、約16.7l/sと見積もられた。この実行排気速度を用い、排気ダクトに使用しているステンレスや、導波管の無酸素銅からのガス放出量を $10^{-6}\text{Pa}/\text{s}/\text{m}^2$ と仮定し^[6]、真空度が正常時の 10^{-6}Pa 程度から短時間に 10^{-4}Pa まで悪くなる場合を想定し、真空度の回復時間を比較した。計算結果を図3に示す。加速管側窓付近とクライストロン窓付近での回復時間を比較すると、クライストロン高周波窓付近は加速管側に比べて倍以上の時間を要す。またクライストロン窓と加速管側窓の間の正常時における圧力分布は、クライストロン窓付近は加速管側窓表面に比べ約1.5倍高く、真空度が悪い事が分かった。

排気速度、窓表面での真空度の比較から、クライストロン高周波窓表面付近では、加速管側の高周波窓面に比べ、真空度悪化からの回復時間が遅く、さらに、正常時における真空度が低い。そこで、クライストロン高周波窓付近での真空排気速度を上げ、

かつ、窓表面での真空度を下げるためにクライストロン下流側の真空排気強化を行った。

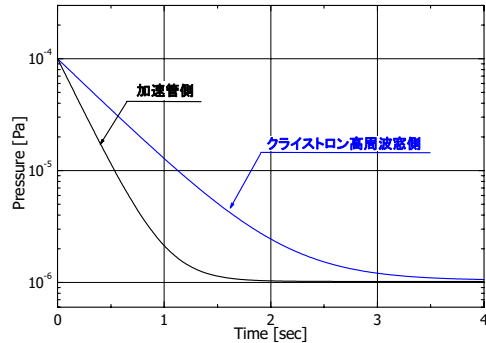


図3：クライストロン窓と加速管側窓の窓表面付近の真空悪化時からの回復時間比較。クライストロン窓では加速管側窓に比べて倍以上の時間が必要。

5. クライストロン下流側真空排気強化と効果

図4に示すようにクライストロン窓のセラミック表面から約30cmの位置に8l/sイオンポンプ2台を設置し、排気強化を行った。これにより、クライストロン窓付近での実行排気速度は、約19.5l/sまで増加した。先ほどと同条件で、真空度が悪化した場合を想定し、計算を行った結果を図5に示す。これより、強化前に比べ真空悪化時から回復時間は半分以下で可能となり、加速管側窓よりも早く回復するようになった。

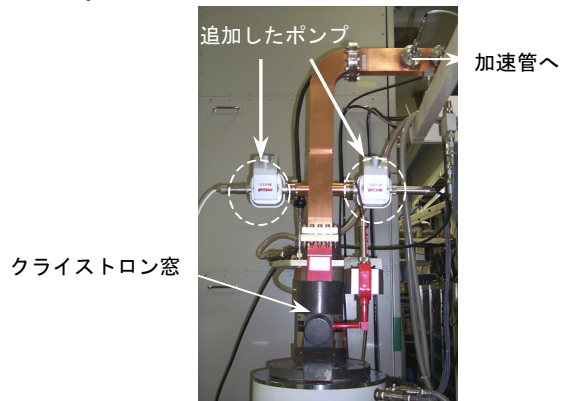


図4：真空排気強化を行ったクライストロン下流側の様子。8l/sイオンポンプ2台をクライストロン窓セラミック表面から約30cmの位置に設置。

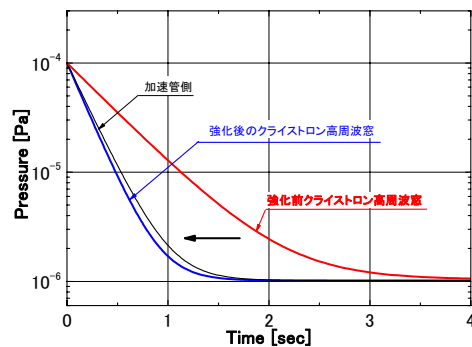


図5：排気能力強化前と後の真空悪化時からの回復時間比較。強化前に比べ約半分の時間で回復し、加速管側窓よりも早く回復するようになった。

図6にセラミック及び導波管からのガス放出量を同程度と仮定し、ポンプ位置からクライストロン下流側の圧力分布換算結果を示す。クライストロン窓表面付近での圧力は、強化前に比べて約1/3程度まで下がっている。これにより、真空排気速度の向上に加えて、正常時の真空度もあわせて改善された。

排気強化により、実際にクライストロン運転中に、真空度が悪化しても飛躍的に回復時間が短縮され、約1500時間のコンディショニングにより、パルス幅20 μ s、繰返し12.5Hz、出力電力20MWの安定動作を達成し、単一の高周波窓でのクライストロンにおいて、大電力長パルス動作に成功した。

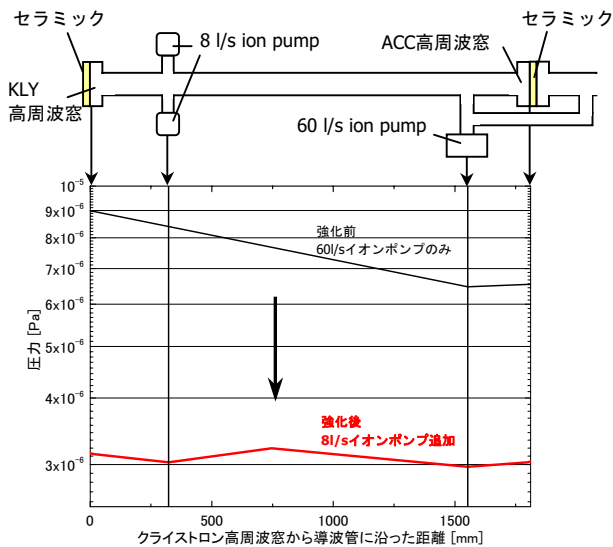


図6：クライストロン下流側強化後のクライストロン下流側圧力分布。クライストロン窓表面付近での真空度は強化前に比べ約1/3まで下がった。

LEBRAにおける1997年のリニアック建設当時からクライストロン使用状況の強化前と後の比較を図7に示す。強化後からクライストロンの故障率は格段に減っていることが分る。また強化後の2001年5月には波長1.5 μ mのFEL発振に成功し^[7]、排気強化による長パルス運転での安定動作が促進した。

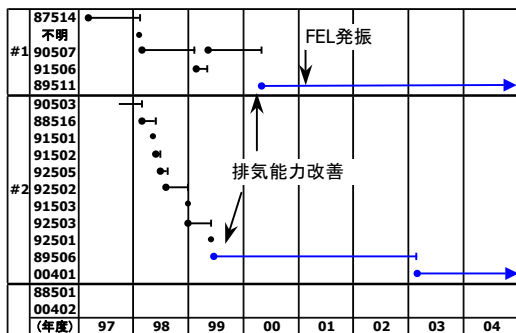


図7：クライストロン使用状況の強化前と後の破損状況の比較。強化後からクライストロンの故障率は格段に下がり、強化後の2001年5月にはFEL発振に成功している。

6. 大電力長パルスクライストロンの製作

クライストロンPV-3030A1の高周波窓上流側(クライストロン内側)の真空排気は、図9-(a)に示すように、内径15mmの排気パイプを直角に2回曲げ、矩形導波管部分から約250mmにある8l/sイオンポンプで排気している。このため、コンダクタンスが非常に小さく、実効排気速度が約1.3l/sと著しく悪い。そこで排気パイプの口径を約2倍、長さを1/4にした場合のコンダクタンスで排気速度を再評価すると、高周波窓周辺での実効排気速度は3.7倍のおよそ4.8l/sに増強できる。先ほどの計算と同様に、導波管からのガス放出量を一定とし、出力窓でガス放出が発生した場合を想定し、正常時(10⁻⁷Pa程度)から10⁻⁴Pa程度に短時間に真空が悪化した場合からの回復時間の計算を行った。計算結果を図8に示す。これより、改良後は1/3以下の時間で回復することがわかる。これより、PV-3030A1に比べ、クライストロン内部の真空回復時間が短縮され、クライストロンのコンディショニングが軽減されることが予想された。

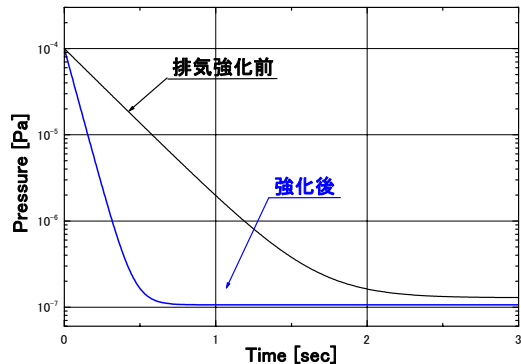


図8：これまで使用していた3030A1クライストロン内部の排気強化を行った場合と、強化前の真空悪化時からの回復時間の比較。改良を行うことで、1/3以下の時間で、元の真空度近くまで回復することが可能となる。

クライストロン窓下流側での排気能力による効果を踏まえ、排気口等を改良したクライストロンの製作を行った。製作の基本方針としては、現在使用しているクライストロンと同寸法であり、既設のヒーターパルストランス自体を改良せず、またクライストロン窓以降の導波管も交換しないで済む事が望ましい。そこで出力窓はこれまで同様1つとし、そのままクライストロンの交換のみで対応できるようにした。そこでKEKで開発された3030A1と同寸法で、高出力タイプのクライストロン3030A3^[8]をベースに改良を行った。

製作した新クライストロンはPV-3040Nと命名し、最後の文字"N"は日本大学の英語頭文字にちなんでつけられており、LEBRAでの使用のために改良、開発された事を意味している。図9-(b)、(c)にクライストロン全体の概観写真と高周波窓引き口部分を示す。3040Nクライストロンは、電子銃容器外形、全長がほぼ3030A1と同じ寸法で、真空引き口は太く短く製作した。

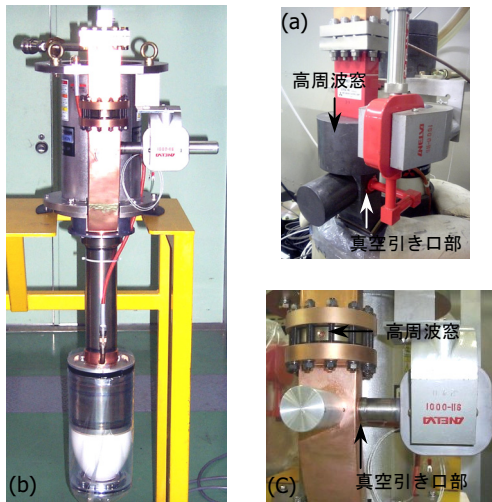


図9：PV-3040Nクライストロンの概観写真と真空引き口の様子。(a)3030A1の真空引き口部。(b)PV-3040N概観写真。(c)PV-3040N引き口部。

7. クライストロン動作試験

製作を行った三菱電機には、長パルスモード(パルス幅 $20\mu\text{s}$)用のテストベンチが無いために、パルス幅 $4\mu\text{s}$ の短パルスモード試験を三菱電機で、長パルスモード試験をLEBRAで行った。図10に3040Nの入出力特性を示す。パルス幅 $4\mu\text{s}$ 、繰返し 50Hz で行い、入力電力 250W に対して、出力電力 42.3MW が得られ、十分な出力特性が得られた。

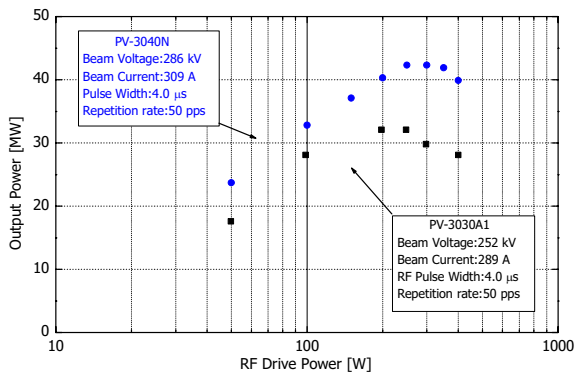


図10：3040Nクライストロンの入出力特性。3030A1クライストロンの同条件時の結果も示している。

短パルスモードでの試験後、LEBRAへ移設し、長パルスモード試験を行った。施設検査等の時間的制約から、パルス幅 $20\mu\text{s}$ 、出力電力 20MW を当面の目標とし、RFコンディショニングを行った。移設後、370時間のRFコンディショニングにより、出力電力 21.1MW を達成した。長パルスモードでの電圧特性試験結果を図11に示す。図には短パルスモードでの電圧特性試験結果も示している。

3040Nクライストロンは、パルス幅 $20\mu\text{s}$ の安定動作には、これまでに比べ格段に早く達成し、排気強化等の効果が認められた。さらにコンディショニングを進めることにより、出力電力 30MW に達することが期待される。

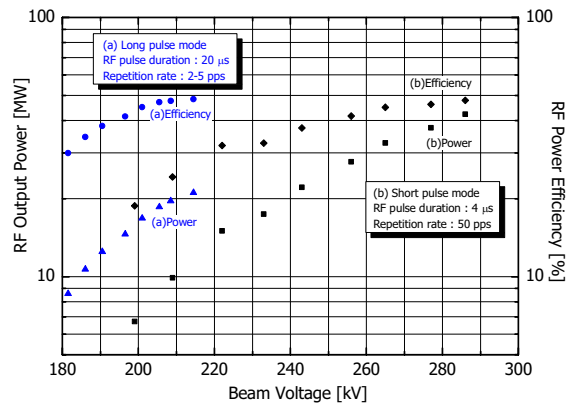


図11：3040Nクライストロンの(a)長パルスモード($20\mu\text{s}$)、(b)短パルスモード($4\mu\text{s}$)での電圧特性。

8. まとめ

1997年からのリニアック建設開始以来、10台のクライストロンが破損した。その原因として、クライストロン高周波窓では、窓表面等からのガス放出等により、真空が悪化したとき真空度の回復に倍以上の時間を要していたことが上げられる。そこでクライストロン窓周辺の排気強化を行い、加速管側窓と同程度まで排気能力が強化され、また、正常時のクライストロン下流側の真空度も改善した。その結果、加速器運転時の微小なガス放出に対する真空度回復時間が飛躍的に短縮し、1500時間のRFコンディショニング後、パルス幅 $20\mu\text{s}$ 、繰返し 12.5Hz 、出力電力 20MW の安定動作を達成し、高周波窓一つのクライストロンでの長パルス、大電力動作に成功した。

排気強化による効果を踏まえ、新しく製作した3040Nクライストロンは、これまで使用していたクライストロンに比べ、格段に早く長パルスでの安定動作が行えた。高周波窓はガス源であり、高周波窓の極近傍で排気する重要性和効果が顕著に示された。特に長パルス、出力電力数十MWでの大電力運転では良好な真空度へ迅速に回復することが重要である。また、これまでパルス幅 $20\mu\text{s}$ 以上、出力電力数十MWで動作可能なクライストロンは高周波出力口が2つのものしかなく、コストや場所等の制約が大きかったが、高周波窓一つのクライストロンでも大電力長パルス運転が可能であることが結論付けられた。

参考文献

- [1] Y.Hayakawa, et al., Nucl. Instr. and Meth. A 483 (2002) 29.
- [2] T.Tanaka et al., "PERFORMANCE OF THE FEL LINAC AT NIHON UNIVERSITY" Proc. 1st Asian Particle Accelerator Conf. (APAC'98), Tsukuba, Japan (1998) p722-724.
- [3] S.Michizono, Y.Saito, T.Matsumoto, S.Fukuda, S. Anami: "RF-windows used at the KEKB linac", Applied Surface Science Vol.169-170 (2001) pp.742-746.
- [4] 三浦厚: "リニアコライダーの為の大電力高周波窓の開発", 博士論文, 1994年
- [5] 熊谷寛夫,他: "真空の物理と応用", 裳華房
- [6] 末次祐介: "真空システムの設計", OHO'94高エネルギー加速器セミナー=Bファクトリーの加速器=", 1994年9月, pp.XI-1~XI-31.
- [7] T.Tanaka, et al., "OPERATIONAL STATUS OF 125-MeV LINAC AT NIHON UNIVERSITY", Proceeding of the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, Funabashi, 4-6 Aug 2004, pp.22-24.
- [8] S.Fukuda, et al., Nucl. Instr. and Meth. A 368 (1996) 561.

自由電子レーザー用マルチバンチ高周波電子銃のためのLaB₆光陰極の研究

菅野 浩一^{1,a)}, 佐藤 勇^{b)}, 早川 建^{b)}, 田中 俊成^{b)}, 早川 恭史^{b)}, 森 啓^{b)}, 野上 杏子^{b)}
境 武志^{a)}, 石渡 謙一郎^{a)}, 中尾 圭佐^{a)}

a) 日本大学大学院理工学研究科量子理工学専攻
〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1

b) 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設
〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1

1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設では高品質で安定な電子ビームを必要とする自由電子レーザー用125MeV電子線形加速器に対し、電子銃の低エミッタンス化やクライストロンの高出力化・長パルス化などの高度化を行ってきた。その成果があって、0.885~6.13 μm にわたる発振波長領域を連続的に得ることに成功し、利用実験を実現する事が出来た。このように各種の実験に使用できるようにはなったが、一方でFELパワーはまだ必ずしも充分ではない。また、0.3~0.8 μm の紫外-可視光領域の発振も計画しているが、このような短波長発振にはよりピーク電流が大きく、エミッタンスが低い電子ビームが不可欠であると考えられる。このような高輝度電子ビームを発生させるためには、電子を高電界によって引出し・加速を行い、相対論領域に達するまでの距離を短くして空間電荷の影響を出来る限り抑える必要があるが、直流電子銃ではこれ以上の高電界の印加は困難である。そこで、より高電界を印加する事が可能な高周波電場を利用した高周波電子銃の検討を行っている。しかし、高周波電子銃で熱陰極を使用するとバックボンバードメントが発生し、20 μs の長マクロパルス電子ビームの発生は困難となる。そこで光陰極を用いた高周波電子銃の検討とLaB₆の適用可能性について検討した。

2. 光陰極高周波電子銃の有用性

FELは発振波長が短くなるにつれてエミッタンスが低い電子ビームを必要とする。また、自由電子レーザーの利得はピーク電流に比例し、波長の二乗に比例する。従って、発振波長が短くなると、利得がかなり低くなり、より高いピーク電流が必要となる。また、利得が低くなると発振に達するのに必要な時間が長くなりとなり、マクロパルス幅の長い電子ビームが必要となる。そこで紫外-可視光領域の発振も目指している本施設では電子ビームのマクロパルス幅は20 μs に設定している。高周波電子銃では高電界加速が可能なため、低エミッタンス大電流電子ビーム生成が可能であるが、熱陰極を用いると高周波電場の逆加速位相にのった電子が陰極表面に衝突し陰極温度を上げ、電子放出を不安定にするバックボンバードメントが発生する。図1にシングルセル熱陰極高周波電子銃の電子軌道計算の結果を示す。

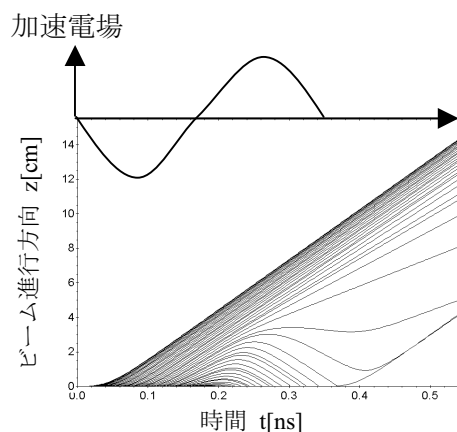
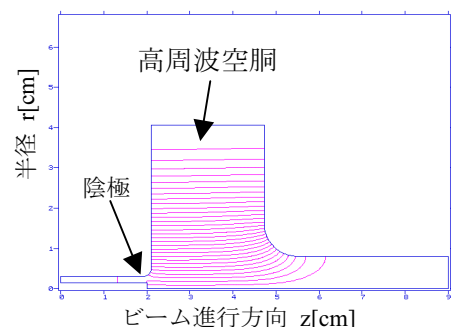


図1. S-band (周波数2856MHz、周期0.35ns) 熱陰極シングルセル高周波電子銃の高周波空洞と電子軌道計算結果。逆加速位相にのった電子が陰極まで戻ってしまうことがわかる。

このように熱陰極高周波電子銃ではバックボンバードメントが起き、電子放出が不安定になり、長マクロパルス電子ビームの生成が難しい。そこで、短パルス高出力レーザーを用いた光電子放出を利用した光陰極により、あらかじめバンチした電子ビームを陰極から発生することで解決することを検討している。図2に50psの短パルスレーザーを仮定した光陰極高周波電子銃の電子軌道計算結果を示す。ここで、高周波空洞の形状と電場は同じである。この図からわかるように、光陰極を用いれば逆加速位相に乗る電子がなくなることが可能で、バックボンバードメントは発生しないと予測される。そこで本施設では、FELの短波長発振と長波長FELの高性能化のため光陰極高周波電子銃の開発を進めている。

¹ Present address: AET JAPAN, Inc., URSIS Bldg, 8.9th Floor, 1-2-3, Manpukuji, Asaoku, Kawasaki-City, Kanagawa, Japan.

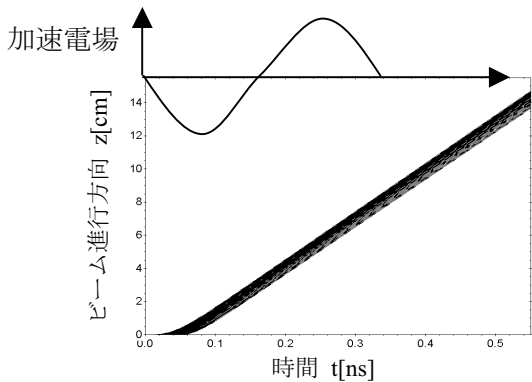


図2. S-band（周波数2856MHz、周期0.35ns）熱陰極高周波電子銃の電子軌道計算結果。高周波空洞は図1と同じ。50psのレーザーパルスを、位相を選択して照射すれば逆加速位相にのる電子がないことがわかる。

3. 光陰極要求性能

熱陰極と同様に光陰極にも様々な材質が検討されている。自由電子レーザーの利用実験に十分耐える安定性や耐久性が必要で、陰極寿命は十分に長く信頼性が高くなければならない。最近の光陰極材質には銅などの寿命が長い純金属陰極や Cs_2Te などの量子効率が大きいアルカリ系金属陰極などが良く使用されている。この二種類の陰極は様々な施設で開発、研究が実施されており成果を上げているが、純金属陰極では仕事関数が高いのでレーザーシステムに負担がかかり、アルカリ系金属では寿命が短く、システムもやや複雑になるなど、本施設で使用するには適していない。そこで、本施設では LaB_6 の低い仕事関数や、活性化が容易であるなどの優れた特長に着目し高輝度マルチバンチ電子ビーム発生用の陰極として検討している。

4. LaB_6 陰極の特徴

LaB_6 は電子ビーム描画装置や電子顕微鏡用電子銃の熱陰極として用いられているが、DUKE大学の蓄積リング用の電子銃では光陰極として使用されている^[2]。酸化物について低い仕事関数を持ち、Nd:YAGレーザーの第三高調波（波長355nm）の一光子吸収による光電子励起が可能である。純金属の仕事関数は4~6eV程度で、 Cs_2Te は3.6eVである。従って、Nd:YAGレーザーの場合、第四高調波（266nm）を照射する必要がある。この波長を得る際にさらにレーザーパワーが小さくなるので効率が悪い。また、活性化操作が酸化物や単原子層陰極陰極に比べて容易でありイオン衝撃や残留気体の影響も受けにくく、酸化物のように一旦活性化したあとで大気にさらしてしまうと、その後は使用できなくなるということはない。 B_2O_3 や LaBO_4 など、表面の酸化物の蒸気圧が LaB_6 に比べ高いので、1500K程度に加熱することで容易に除去が可能。従って常に高温にすると洗浄表面に近い状態が保てる。光陰極では熱電子放出を抑える必要があるのであまり高温に

はできないが、使用する前に加熱による脱ガスをすることで洗浄表面が得られる。高量子効率のアルカリ系金属や酸化物陰極の耐久性はあまり高くないが、 LaB_6 は2983Kと高融点物質であり、レーザー照射に対する耐久性が高い。これらの特徴は長マクロパルスマルチバンチ光電子ビーム生成用陰極として期待できる。

5. 光電子励起用レーザーシステム

LaB_6 光陰極用ドライブレーザーとして光電子励起用ドライブレーザーにはNd:YAGレーザーの第三高調波が使用可能である。Nd:YAGレーザーはレーザー加工などでよく使用される赤外高出力固体レーザーで、熱伝導や熱への耐性が強く、強い光を励起することができる。また、十数ps程度の短パルス発振が可能でバックボンバードメントがおきない程度にバンチした電子ビームの励起が可能である。このシステムはLIGHTWAVE社のCW-Modelocked Nd:YAGレーザー発振器で得られた、波長1.064 μm 、マイクロパルス幅50ps、繰り返し89.25MHzのレーザー光を、POSITIVELIGHT社のNd:YAG増幅システムを用いて増幅している。本施設のリニアックはマクロパルス幅20 μs 、繰り返し12.5Hzであるため、この増幅システムのポッケルスセルによりパルス切り出しをしている。また、波長355nmの光を得るため波長変換素子LBOとBBOを使用している。このレーザーシステムより平均1W程度の出力が得られる。

6. LaB_6 光陰極特性試験

6.1 試験内容と構成

LaB_6 光陰極の特性試験を行った。図3に実験装置の構成図を示す。Nd:YAGレーザーシステムから得られる355nmの光を真空度 10^{-6}Pa 台に保たれた真空チャンバー内の陰極に照射する。本実験で使用する単結晶 LaB_6 陰極の結晶面は仕事関数が2.6eVと小さい[100]面である。 LaB_6 陰極は陽極との距離が3mmとなるように設置した。光電子励起光を直入射するため、陽極には切かきがある。チャンバーをグランドとし、グランドに対して陽極に最大3kVの正電位をかけることができる。また、陰極はグランドに対して電氣的に浮いている。陰極へヒーター電力を投入するための電源と陰極アッセンブリの間には、ヒーター電源に光電流が流入しないように、チョークトランスとコンデンサーを取付けた。光電子電流は、陰極とグランドの間に設置したコンデンサーに一時的に電荷として貯め、そのコンデンサーと並列に設置した抵抗に流れる電流として検出する。

図4に LaB_6 陰極と銅の陽極を示す。この実験により、光電子放出電荷量のレーザーエネルギー量依存性を測定し、量子効率を求めた。

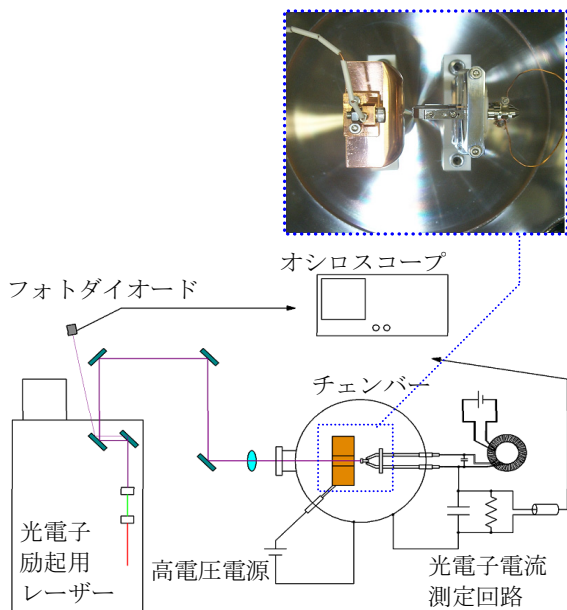


図3. 実験装置構成図。励起レーザーは陽極の切りかきを通り、LaB₆陰極表面に垂直に入射する。チェンバー内の真空度は10⁻⁶Paに保たれている。



図4. LaB₆陰極と陽極。左が単結晶LaB₆陰極、右は銅製の陽極。LaB₆はグラファイトを介して固定されている。陽極は陰極の正面からレーザー光を照射できるように切りかきがある。

6.2 光電流の測定と量子効率の導出

光電子放出電荷量のレーザーエネルギー量依存性を測定し、量子効率を求めた。陰極温度が室温における光電子放出の照射レーザーエネルギー量依存性を測定した。図5にレーザーのエネルギー量と放出電荷量の変化を示す。レーザーの照射エネルギー量を上げると、それに比例した光電子放出電荷量が得られた。しかし、1.2mJ/macropulse以上を照射するとエネルギー量の増加とともに急激に放出電荷量が上昇した。本実験では、レーザースポットサイズを各エネルギー量に対して一定の条件で実験を行っており、エネルギー量を上げるとレーザーエネルギー密度が上がる。その結

果、レーザーによる陰極加熱が電子放出に寄与したと考えられる。この時のレーザーのピーク強度は4.7MW/cm²であった。一方、物質の量子効率測定は放出電荷量と照射エネルギー量が比例の関係から求める必要がある。従って、4.7MW/cm²以下における実験結果から量子効率を求めたところ、室温では4.79×10⁻⁵であることがわかった。同様に陰極温度1243K及び1563Kの場合の量子効率を測定した。図6に陰極温度に対するLaB₆の量子効率測定結果を示す。室温に比べ量子効率の改善が見られた。

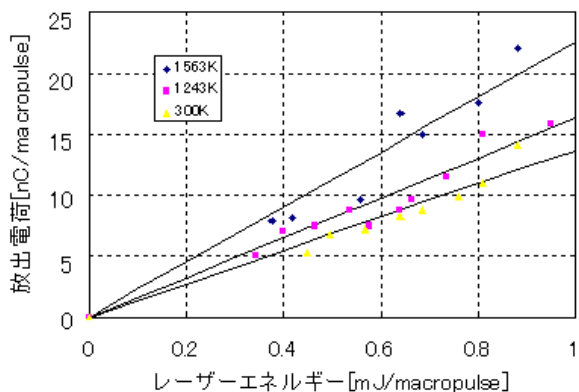


図5. レーザーのエネルギー量と放出電荷量の変化。印加電圧は2.5kV。直線は各陰極温度における測定結果のフィッティング直線を示す。

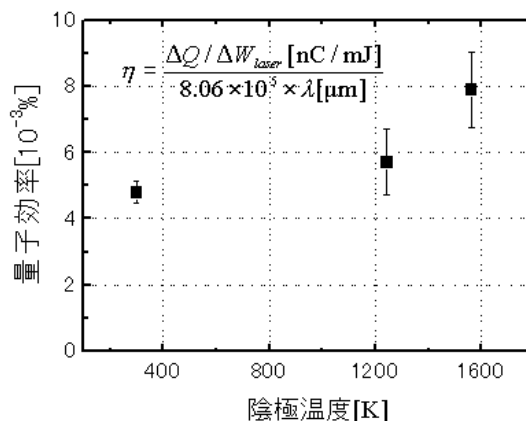


図6. 陰極温度に対するLaB₆の量子効率η。レーザーのエネルギー量と放出電荷量の変化及び照射レーザー波長より得られる。

7. 短波長FEL用陰極としての適用可能性

FELでは発振波長が短くなるほど利得が小さくなるため、紫外線や可視光のような短波長発振にはより大きいピーク電流が要求される。光陰極からの放出電荷量はレーザーのエネルギー量と量子効率に

よって決まる。Nd:YAGレーザーシステムで利用できる第三高調波のエネルギー量は、44.8 J/micropulseである。この場合、ピーク強度を、量子効率を測定した領域 ($<4.7\text{MW}/\text{cm}^2$) にするには、レーザースポットサイズを 0.2cm^2 以上にすればよい。室温におけるLaB₆の量子効率は 4.79×10^{-5} であり、このシステムにおいて得られる光電子放出電荷量は611pC/bunchとなる。3.5psにバンチ圧縮することを考えれば、ピーク電流が170Aのマルチバンチ電子ビームの発生が可能になる。この値は大阪大学における誘電体多層膜ミラーを用いた波長 $0.3\mu\text{m}$ のFEL発振実験で使用された電子ビームのピーク電流値60Aを上回り、紫外-可視光領域FEL発振条件を満たしているといえる。また、現在のLEBRAのリニアックに関するピーク電流20Aに比べると8倍以上の向上が予想される。

8. まとめ

紫外-可視光領域FEL用高輝度電子源の光陰極として、LaB₆の優れた性質に着目し、適用に関する基礎的な研究を行った。そして、LaB₆陰極による長マクロパルスマルチバンチ電子ビーム発生と光電子励起

レーザーを直入射した場合の量子効率の測定を行った。陰極温度が室温における量子効率は 4.79×10^{-5} で、陰極温度を1563Kに上げると 7.90×10^{-5} に量子効率が改善される。さらに、室温のLaB₆陰極と日本大学光陰極用Nd:YAGレーザーシステムを用いて放出可能なピーク電流は、170Aと見積もられた。これより、陰極温度が室温でも、現在のLEBRAのリニアック入射器に比べて、十分大電流化が達成でき、紫外-可視光領域FEL発振に十分な電流が得られると推測できた。

参考文献

- [1] Y.Hayakawa, et al., "First Lasing of LEBRA FEL in Nihon University at a wavelength of $1.5 \mu\text{m}$ ", Proceedings of the 23rd International Free Electron Laser Conference and 8th FEL User's Workshop (Darmstadt, Germany 2001.8), Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A483(2002) 29-33.
- [2] P.G.O'Shea, et al., "Single bunch injection system for an electron storage ring an RF photoinjector", Appl. Phys. Lett. 73, 411(1998)

熱陰極電子銃の低エミッタンス化

菅野 浩一^{1,a)}、佐藤 勇^{b)}、早川 建^{b)}、田中 俊成^{b)}、早川 恭史^{b)}、境 武志^{a)}、石渡 謙一郎^{a)}、中尾 圭佐^{a)}

^{a)} 日本大学大学院理工学研究科量子理工学専攻

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

^{b)} 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

1. はじめに

自由電子レーザーを発振させるためには、エミッタンスの低い良質な電子ビームが必要である。エミッタンスとは荷電粒子の集合面積とその拡がり状態を位相で示すパラメータである。電子ビームが非相対論領域にある加速器入射部では、その性能が電子ビームの資質に影響する。特にエミッタンスは電子銃の性能に強く依存する。従って、電子銃の設計は自由電子レーザーの発振及び利用実験に大きく関わり、非常に重要である。日本大学電子線利用研究施設では 100keV、0.4A、20 μ s の電子ビーム発生に、高エネルギー加速器研究機構の 200keV、5A シングルバンチ電子銃と同型の電子銃を使用していた。

2. 電子銃電子軌道計算

本施設の電子銃運転パラメータを表 1 に示す。このパラメータに対し図 1 のような形状を持つ高エネルギー加速器研究機構で使用されていたものと同型の電子銃電極と電子放出面積が 1.0cm² の EIMAC Y646E カソードを用いて電子ビームを発生していた。

表 1. 電子銃運転パラメータ

カソード面積	1 cm ²
グリッド-アノード間隔	30 mm
加速電圧	100 kV
グリッド電圧	150 V
バイアス電圧	50 V
放出電流	0.4 A
パルス幅	20 μ s

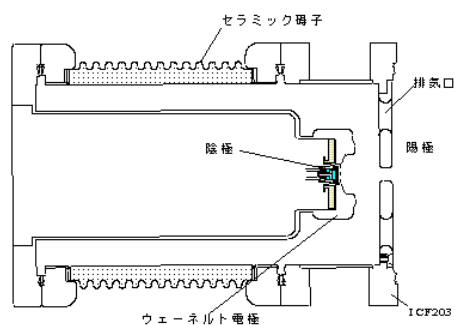


図 1. 電子銃電極形状。三極管構造を持ち、面積 1cm² の EIMAC Y646B カソードを使用していた。

この電子銃から得られる電子ビームの電子軌道計算を、空間電荷効果を考慮し、EGUN^[1]を用いて行った。このケースではグリッドから電子を放出していると仮定している。その計算結果を図 2 に示す。カソード位置より $z=140$ mm の位置にマグネティックレンズが設置されている。ウェーネルト電極による電子ビームの集束が強すぎ、集束点がアノード付近にあるという計算結果が得られた。このため、ビームがマグネティックレンズを通る時、ビーム径はカソード径より大きくなってしまうと推測できる^[2]。そこで、図 3 のように再び EGUN を用いて適切な集束力になるようにウェーネルト電極の傾斜をなだらかにした電極形状での電子軌道計算を行った。また、低エミッタンス化を図るため、電子放出面積が 0.5cm² と小さい EIMAC Y646B を使用すると仮定して計算した。その結果、目的としていた平行ビームが得られることが明らかになった。

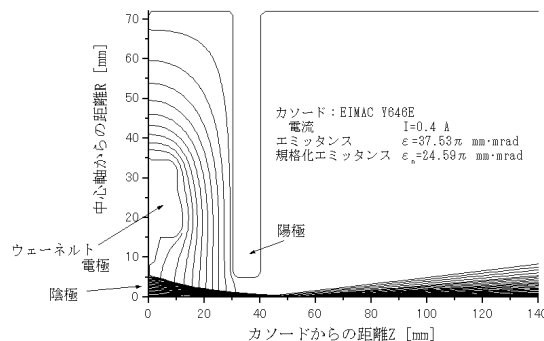


図 2. 旧電子銃に関する電子軌道計算結果。ビームウェストが陽極直後にあり、その後は発散してしまっている。

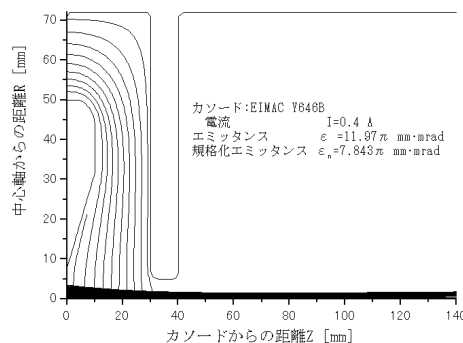


図 3. 新電子銃に関する電子軌道計算結果。エミッタンスが小さく、laminar ビームが実現できている。

¹ Present address: AET JAPAN, Inc., URSIS Bldg, 8.9th Floor, 1-2-3, Manpukuji, Asaoku, Kawasaki-City, Kanagawa, Japan.

3. 電子銃の製作

EGUN を用いて最適化したウェーネルト電極形状を取り入れた新電子銃を製作した。図4に EIMAC Y646B カソードを取り付けた新電子銃の写真を示す。ウェーネルト電極は製作が容易な形状にした。



図4. 電子銃ウェーネルト電極形状。左が新電子銃、右が旧電子銃。新電子銃は旧電子銃に比べ径の小さいEIMAC Y646B カソードが取り付けられている。

4. 電子銃下流に於けるエミッタンス測定

新旧の電子銃から放出される電子銃のビームのエミッタンス測定を行った^[3]。本測定ではエミッタンス位相空間上の電子の分布をマグネティックレンズによって変化させ、ワイヤースキャナーを用いてその分布の大きさを測定した。測定はマグネティックレンズの磁場強度 Q とビームの半径の関係から $twiss$ パラメータの値を求めてエミッタンスの値を評価した。磁場強度 Q は近軸軌道方程式より得られ^[4]、式(1)で表される。ただし、マグネティックレンズを $thin$ レンズと仮定している。

$$Q = \frac{e^2}{4m_0^2(\gamma^2 - 1)c^2} \int_0^L B(z)^2 dz \quad (1)$$

ここで、 e は電荷素量、 m_0 は電子の静止質量、 γ はローレンツ因子、 c は光速、 L は磁場の実効長、 $B(z)$ はマグネティックレンズが作り出す軸上の磁場を表す。ワイヤースキャナーには $0.1\text{mm}\phi$ のタングステンワイヤーを張り、約 52V のバイアスをかけている。測定に使用するマグネティックレンズがつくる磁場ピークの位置は電子銃カソードからビーム進行方向に 42.2cm 、ワイヤースキャナーのワイヤーは 69.2cm の位置に設置されている。図5に測定ブロック図を示す。

図6、7にマグネティックレンズの集束力に対するビーム半径の測定結果と最小自乗法より求めた規格化エミッタンス ϵ_n の値を示す。しかし、ここでは重みをつけていない。新電子銃では旧電子銃より約 $1/3$ 程度に規格化エミッタンスが小さくなった。これより、電子銃の改良による入射器の高度化がなされたと考えられる。

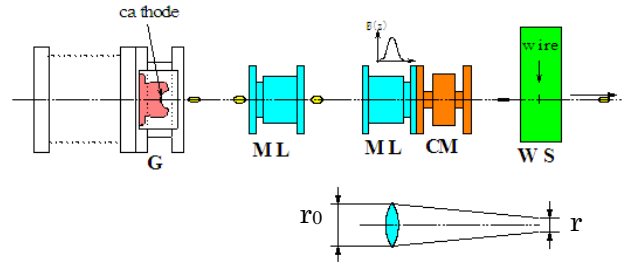


図5. マグネティックレンズとワイヤースキャナーによるエミッタンス測定ブロック図。Gは電子銃、MLはマグネティックレンズ、CMは電流モニター、WSはワイヤースキャナーを示す。

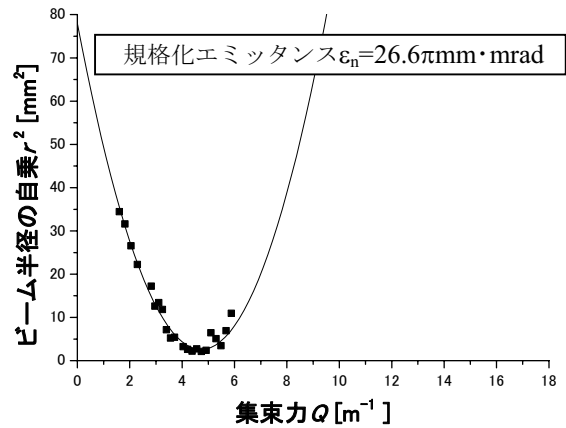


図6. 旧電子銃のエミッタンス測定結果。電流モニター直前のマグネティックレンズの集束力に対するビーム半径の自乗の変化を示す。ビーム半径はワイヤースキャナーで測定した。

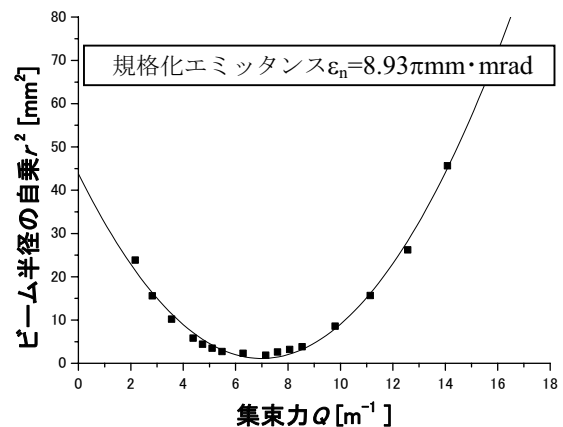


図7. 新電子銃のエミッタンス測定結果。電流モニター直前のマグネティックレンズの集束力に対するビーム半径の自乗の変化を示す。ビーム半径はワイヤースキャナーで測定した。

5. 加速後のエミッタンス測定

次に加速器終端より下流でエミッタンス測定を行い、入射器の高度化によって加速器から得られる電子ビームの低エミッタンス化が実現できたかを調べた。測定方法は入射部に於けるエミッタンス測定と同じだが、エミッタンス位相空間上の電子の分布を変化には四極電磁石を用いている。図8に測定ブロック図を示す。

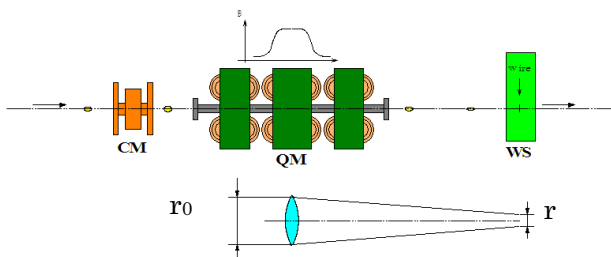


図8. 四極電磁石とワイヤースキャナーによるエミッタンス測定ブロック図。CMは電流モニター、QMは四極電磁石、WSはワイヤースキャナーを示す。

四極電磁石の集束力に対するビーム半径の測定結果と最小自乗法より求めた規格化エミッタンス ϵ_n の値を図9、10に示す。しかし、重みをつけていない。プリバンチャー、バンチャーや加速管によるバンチングや高周波加速の影響を受けエミッタンスは倍以上になっている事がわかる。また、電子銃を改良したあとの加速管下流でのエミッタンス測定では改良前の約1/3程度に規格化エミッタンスが小さくなった。これより、電子銃の改良による入射器の高度化がなされたと考えられる。

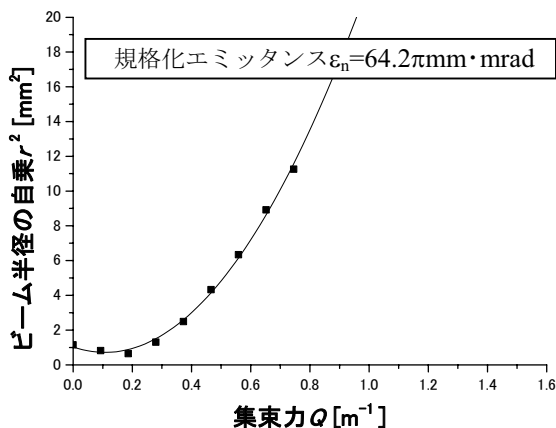


図9. 電子銃改良前の加速器終端でのエミッタンス測定結果。四極電磁石の集束力に対するビーム半径の自乗の変化を示す。

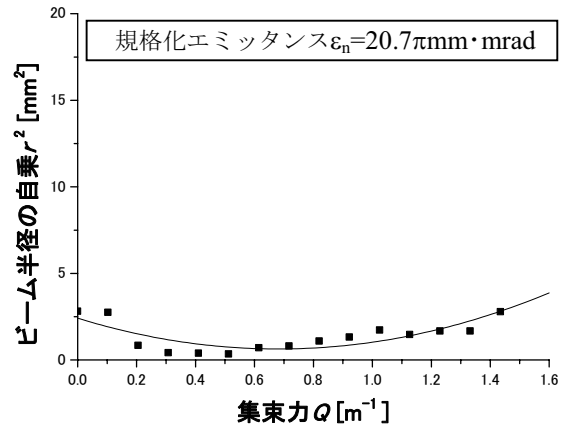


図10. 入射器高度化後の加速器下流に於けるエミッタンス測定結果。四極電磁石の集束力に対するビーム半径の自乗の変化を示す。

6. まとめ

EGUNを用いてウェーネルト電極形状の最適化を行い。エミッタンスが小さく laminar ビームを得られる電子銃を製作した。入射部での規格化エミッタンスを測定した所、新電子銃では旧電子銃と比較して1/3程度に小さくなっていることがわかった。その入射部の高度化によって加速器から得られる電子ビームのエミッタンスも小さくなったことが測定からわかった。

入射部のエミッタンス測定にはマグネティックレンズを使用した。そして、エミッタンスはEGUNによる計算値と合う測定結果が得られた。これより、入射部でのビームのエミッタンス測定には、マグネティックレンズを使えば、四極電磁石と同様の方法でエミッタンスの測定が可能であると考えられる。

電子銃の低エミッタンス化やクライストロンの長パルス化など125MeV電子線形加速器の高度化により、2001年5月に波長1.5 μm の赤外FEL発振に成功、同年6月においては、およそ1kWの尖頭出力に達し、0.885~6.13 μm の連続可変波長FELの発生も可能になった。

参考文献

- [1] W.B.Herrmansfeldt, "EGUN –an electron optics and gun design program" slac report 331 1988
- [2] K.Kanno, et al., "ANALYSIS OF THERMIONIC DC ELECTRON GUN FOR 125 MeV LINAC" Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan, Himeji, July. 12-14, 2000, p168-170
- [3] 酒井文雄, "RF ガンのエミッタンス測定", Proceedings of the Workshop on "Precise Measurement of Electron Beam Emittances", 1997, p266-p271
- [4] 電気学会, 電気学会大学講座 電子・イオンビーム工学, オーム社, p109-p110

リニアック入射部の整備と改良

田中俊成, 佐藤勇, 早川建, 早川恭史, 横山和枝*, 桑田隆生, 野上杏子, 森啓, 境 武志
 日本大学量子科学研究所 電子線利用研究施設
 〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎

1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設の125MeV電子線形加速器は、1996年に高エネルギー物理学研究所(KEK)との間で開始された共同研究(研究課題:「電子線形加速器の高性能化とその高度利用」)に伴い、赤外～紫外線領域の自由電子レーザー(FEL)の開発を行うためKEK光子ファクトリーの陽電子生成リニアックの一部を移設して建設された。建設当初は自由電子レーザー発振にはRF電子銃を用いた低エミッタンス電子ビームの加速が重要と判断し、加速器入射系のRFシステムはRF電子銃の設置を前提とした構成とした^[1]。

RF電子銃については大電力RF試験を行ったが光陰極の開発が課題であったため、DC電子銃を用いたビーム加速性能の試験および性能向上を優先した。このため一旦組み上げたRF電子銃と α 電磁石からなる入射部を撤去し、100kVのDC電子銃・7セル進行波型プリバンチャー・21セル進行波型バンチャーからなる入射部に置き換え、1997年末から加速試験が開始された^[2]。

電子ビーム入射システムは、最終的に加速後に得られる電子ビームの代表的特性であるエミッタンス、ビームバンチ長、エネルギー幅を決定付けるとともに、低エネルギー部であるためにビーム軌道上に発生する微弱な電場および磁場によるビームの偏向が加速ビーム安定度の悪化を招きやすい。このため、加速試験開始以来リニアック本体を始めとして様々な改良を重ねビーム性能の向上が計られて来た。電子銃の改良、クライストロンの長パルス動作安定化及びRF電力と位相の安定化に関しては他の報告に譲り^{[3][4][5]}、この報告では加速器建設以降に主にビーム入射部周辺の加速器本体及び大電力RF立体回路系に対して行った整備および改良についてまとめる。

2. 大電力RF立体回路系の改良

2.1 加速試験開始当初のRF系構成

リニアック建設当初の大電力RF立体回路系は、図1のブロック図で示される構成となっていた。入射部においてはRF電子銃から全エネルギーで約1.5MeVの電子ビームを引き出すことを計画していたため、4m長レギュラー加速管に入射する前に前段加速を行う必要があった。このため、4m加速管3本からなるレギュラー部の上流に加速勾配の高い30cm加速管1本が配置されていた。

実際にこれまで使用してきたDC電子銃を用いた入射部は、100kV電子銃、7セル進行波型プリバンチャー加速管、21セル進行波型バンチャー加速管から構成されている。バンチャー出口において、バンチされた電子

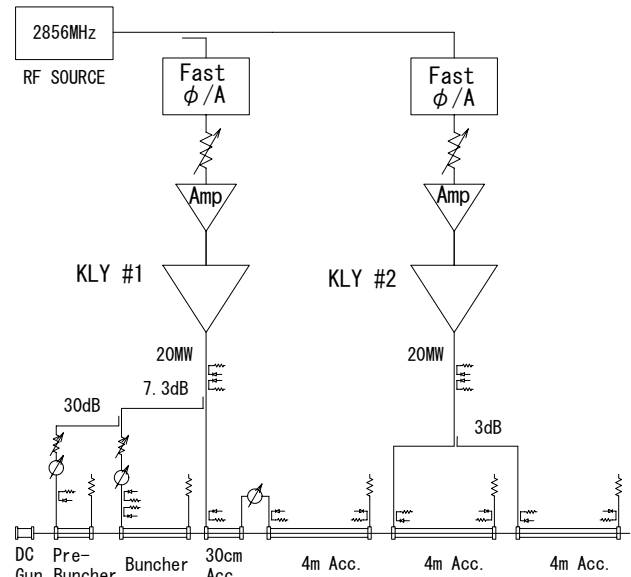


図1. リニアック加速試験開始当初のRF系構成のブロック図。リニアックはプリバンチャー、バンチャー、30cm加速管および4m加速管3本で構成され、各クライストロンからのRF出力20MWでピーク電流200mA、最大エネルギー100MeVまで加速する設計になっていた。

ビームの設計エネルギー値は約5MeVである。

クライストロンはパルス幅20 μ s、繰り返し2HzでピークRF出力電力20MWでの安定動作を当初の目標として運転していた。このRF構成では、30cm加速管で入射エネルギー5MeVのビームを10MeV以上加速することが出来、30cm加速管の出力空洞から取り出された加速後のRFがさらに十分な電力を保っていることから、このRFを1本目の4m加速管に再入力することにより加速に用いる、というRF電力の効率的な利用と立体回路の簡素化を図っていた。その結果、設計上はリニアック全体として、ピーク電流200mAで最大100MeVまでの加速が可能であった。

2.2 加速管位置不具合の改善

1998年1月末に最初のビーム加速に成功して以降、FELの発振実験では約96MeVの電子ビームを用いてFEL波長488nmでの発振を目指していた。ところが、クライストロンのRF出力は1号機・2号機ともに20MWでピーク200mAのビームを100MeVまで加速が可能ではなかったが、リニアック出口でのピークビーム電流を約100mAまで下げて実験を行っていたにもかかわらずクライストロン出力を25MW以上と思われる値まで上昇させて実験する必要があった。クライストロンの長パルス動作の安定化は、クライストロン出力RF窓周辺の真空度を改

* Present Address : 茨城県つくば市大穂1-1 高エネルギー加速器研究機構

善する排気能力の強化を施すことで2000年1月末に漸く実現したが、それ以前において長パルスでより高出力が必要とすることは、放電によるクライストロン出力RF窓の損傷が深刻であった。このことは、長パルスでの安定動作の確立までに10本以上のクライストロンのRF窓を破損させてしまった一因にもなっている。

このようになる理由を調べていた過程で1999年5月、設計ではRF位相を調整すると2本目加速管と3本目加速管では同時にビーム負荷が最大になるはずが、実際にビーム負荷が最大となる位相が約 60° 異なることがわかった。そこで加速管の位置を確認したところ、3本目の加速管が正規の位置より約17mm上流に設置されていたことが判明した。これが電力不足の原因であると判断されたため、直ちに位置の修正を行った。

KEKから移設したリニアックのレギュラー部のうち2本目と3本目の加速管には、図1のようにクライストロン2号機1台からの出力を3dB方向性結合器により分割し供給している。当初の立体回路では、KEKでの仕様そのままにこれら加速管2本間のRF位相を調整する移相器は持たせず、加速管までの導波管長を機械的に合わせることで電子ビームバンチを加速RF電場の同位相に乗せて加速する設計となっていた。したがって、2本の加速管が正規の間隔で設置されていないと設計上の加速エネルギーが得られないことになる。17mmの設置誤差は、2本の加速管位相に換算して約 60° のずれに相当し、ビーム負荷の観測から得られた結果と一致する。

3本目加速管の位置を修正した後の加速試験では、クライストロン出力約20MWで100MeV以上まで加速できることが確かめられた。

FEL実験用ビームラインにビームを導く際には、 90° ビーム偏向電磁石系の分散軌道にあるスリットにより通過可能なビームエネルギーの幅を中心エネルギーの数%以下に制限し、エネルギーの揃ったビームのみを導く。このため、加速ビームのエネルギー特性が 90° 偏向系通過後のビーム電流の振舞を決定する。

FEL実験ビームラインに導かれたビーム電流はリニアック出口直線部での値の約60%で、これは修正前と特に違いはなかった。加速管間隔の修正により加速エネルギーは改善されても、1本目の4m加速管を通過した後はビームのバンチ長はほとんど変化しないため、ビームの質の改善には繋がらなかったことを意味する。また、リニアック運転開始当初から直線部出口のビーム電流波形自体にみられた不安定な挙動も同様に変化がなかった。

2.3 30cm加速管の撤去

RF電子銃を用いた入射部においては、 α 電磁石中に設置されたスリットにより、あらかじめエネルギーと位相を揃えられたビームのみが30cm加速管に入射する設計となっていた。しかし、DC電子銃を用いた入射部の場合、30cm加速管に入射する電子ビームには素性の良いバンチされたビーム以外にバンチされずエネルギーが不揃いのビームも多く含まれるため、30cm加速管内では数10%のビーム損失が発生していた。この損失はプリバンチャーとバンチャーでのバンチ特性に依存するため、

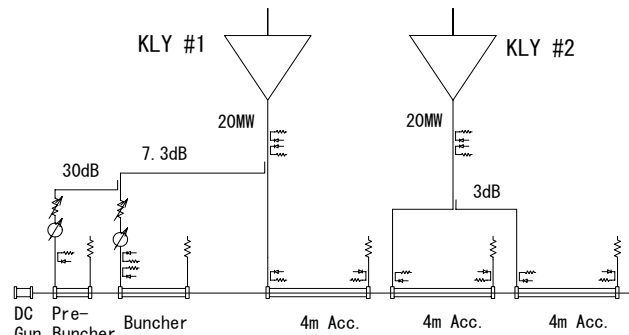


図2. ビーム加速の安定化のために30cm加速管を撤去した後のRF系構成。1999年12月変更。1本目4m加速管入力に大電力移相器を撤去し、30cm加速管にRFを直接4m加速管に入力する構成とした。他の部分の構成は変わらず。

RFパルス内においてもパルス間においても、RF電力と位相の変動に伴い損失自体の変動が生ずることとなる。この結果30cm加速管におけるビーム負荷が変動し、30cm加速管の出力空洞に取り出されるRFの電力と位相にはより大きな変動が現れる。したがって、そのRFを再入力して使用する1本目の4m加速管においては加速電場の不安定化という問題が生ずる。

加速電子ビームの安定度は、加速管入力RFの電力と位相の安定度に強く依存する。この入射部の構成によって、ほぼ光速度のビームが加速される4m加速管中での加速電場が不安定になると、最終的に得られるビームの品質を大きく損なうことは明らかである。高品質のビームが要求されるFELの発振のためには、この可能性を避ける必要があった。

1999年5月には30cm加速管直前に挿入したヘルムホルツコイルと30cm加速管に直巻きしたコイルを強く励磁することにより、30cm加速管のビーム透過率が改善しリニアック出口で180mAのピーク電流を得ることが出来るようになった。しかし、依然としてビームは不安定であり、30cm加速管でのビーム損失は残っていた。

バンチャーで5MeVまで加速されることから、RF電子銃を用いるときのように4m加速管に入射する前の前段加速は、4m加速管でのビーム集束・加速という目的には不要であることが、ビーム加速シミュレーションの計算から判断できた。さらに、30cm加速管と1本目4m加速管で得られる加速エネルギーの合計は、30cm加速管なしでRF電力を直接4m加速管に入力する場合とほぼ同等であると推測された。したがって、DC電子銃を用いた場合には30cm加速管なしでも問題ないとの結論に達し、1999年12月末に撤去することとなった。この結果、立体回路系は図2のように変更された。30cm加速管の撤去と1本目4m加速管の入力にあった大電力移相器の撤去により、30cm加速管に入力していたRFを直接4m加速管に入力するよう導波管の接続を変更した。

2.4 バンチャー部立体回路不具合の改善

30cm加速管の撤去によりビーム安定度が改善される可能性が期待されたが、クライストロンの長パルス運転での安定動作に目処がついた2000年3月になって加速試験を行ったところ、リニアック出口に到達するビームがわずか数10mAと極端に少なく、ビーム加速が非常に難し

くなるという結果になった。このようになった原因として、30cm加速管を撤去した結果4m加速管に入射するビームの集束条件が大きく変化したことが直ちに考えられたため、良好なビーム加速が得られるよう集束パラメータと加速器の運転パラメータを探る作業を行うことになった。

2000年3月のこの実験中に、バンチャーのRF電力と位相を調整してもビームの挙動にほとんど変化が起きていないことが判明した。これは、バンチャーがほとんど機能していないことを意味していた。加速実験ではクライストロン側からの透過電力を移相・減衰器直後の導波管位置でベータ・ホール結合器を用いて観測していたものの、バンチャーからの反射RFについては初期の段階に確認したのみで、通常は観測していなかったため、このときまで異常には気づけなかった。バンチャーからの反射RFを調べると、明らかに大きな反射が戻って来ている。

そこで、バンチャー系立体回路のうち、移相・減衰器の下流部分を一部撤去し、バンチャー側に向けて低電力パルスRFを入力して反射電力パルス立ち上がりの遅れを観測し、反射が生じている導波管の部位を特定する作業を行った。この結果、真空仕様導波管の途中のフランジから反射していることが分かり、フランジをはずして確認したところ、真空シールに使用していたヘリコフレックスに正規の3.5mm径ではなく4mm径のものが使われていたことが判明した。フランジには多数の放電痕が見られた。したがってヘリコフレックスの径が正規より太すぎたためにフランジ面の電氣的接触が不十分で、開放端に近い状態になって大きな反射を生じさせていたと考えられた。

問題のあった導波管フランジのヘリコフレックスを正規の3.5mm径のものに変更した後は正常にバンチャーにRFが入力されるようになり、反射電力は十分小さくなった。この結果、リニアック出口の直線部では極めて安定した、矩形でピーク100mA以上の電流値一定のビーム電流波形が容易に得られるようになった。

2.5 バンチャー入力RF電力不足によるビーム電流の不安定な挙動とその解消

バンチャー部RF立体回路系の不具合の発見により、それまで原因不明であったリニアックの不安定な挙動の一部を解決することが出来た。その挙動とは

- 1) リニアック出口でのビーム電流波形に周波数の高い振動波形が観測されるなど、非常に不安定なビーム加速が起きる場合があったこと
- 2) クライストロン1号機の出力導波管に取り付けたベータ・ホール結合器で出力RF電力をモニターしていたが、バンチャーの移相器を操作するとRF出力電力が変化して見えたこと

である。

1)については、通常では考えられない数MHz以上の振動波形が電子ビーム電流を観測するコア・モニター出力に現れていた。必要なRF電力がバンチャーに供給されないとバンチの形成と加速が正常に進まず、ビーム加速効率が低下する。

また、極端な場合には、プリバンチャーでモジュレーションを受けたビームによって逆にバンチャー内に誘起

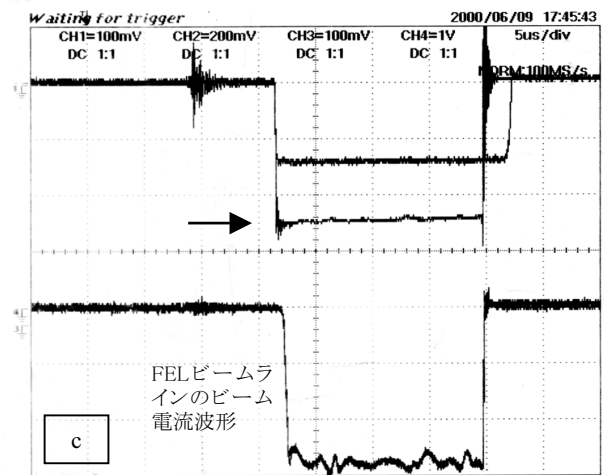
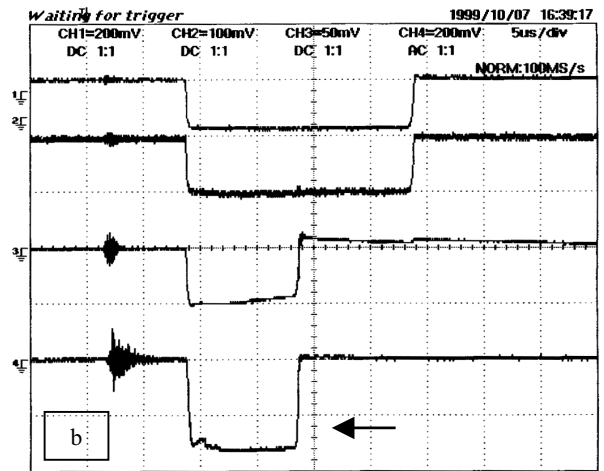
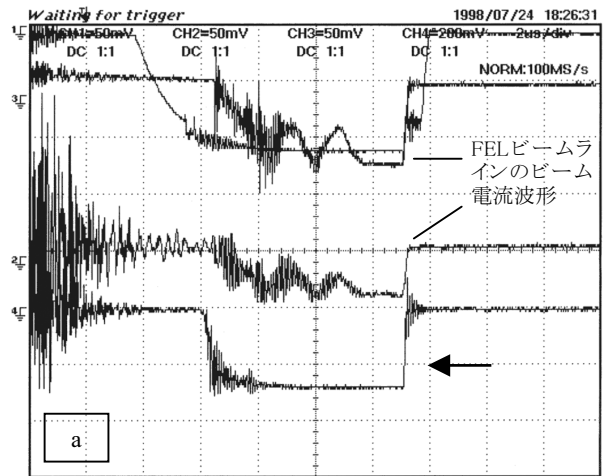


図3. バンチャー入力RF電力不足によるビーム電流波形の不安定な挙動とその解消。黒矢印で指してある波形がリニアック出口直線部でのビーム波形。a) RF不足で電子ビームパルスがRFパルスより先にバンチャーに入射した例。b) 電子ビーム波形を矩形に改善してRFパルスとほぼ同時にバンチャーに入射した例。c) バンチャーRF電力が正常になったときのビーム波形。a)の横軸は2 μ s/div、b)とc)の横軸は5 μ s/div。c)においてビーム電流安定度が大きく改善された。a)とc)にはFELビームラインに導かれた後のアンジュレーター直前と直後のビーム波形も示して安定度の違いを比較している。ただし、c)はRF位相安定度の改善がなされ、さらに内径の大きな真空ダクトに変更した後であり、ダクトによるビーム損失がなくアンジュレーター直前と直後で電流波形には変化がない。

されたRFが支配的となってバンチャー内を後方に伝わることを考えられる。バンチャーの最後のセルは位相速度が光速に近いが、バンチャーで加速されない場合には電子の速度はその55～60%であるため、バンチャー最後部に誘起されたRFは後方に進行する成分が主であると推測される^{6) [7]}。このとき、バンチャー入力結合部から導波管に伝わったRFが、異常だったフランジ位置まで到達して反射し再びバンチャーに入力する。このRFは後続の電子ビームにエネルギーモジュレーションと加速を与える。この一連の現象が電子ビームと導波管を含めた共鳴状態を形成し、不安定なビーム加速を招いた可能性が考えられる。特に、RFのタイミングより早く電子ビームパルスがバンチャーに入射している場合にビーム電流の振動波形が強く現れていた。このため、それまで原因不明ながらも、電子銃からビームを引き出すタイミングをRFパルス開始のタイミングより前に設定することを避けることにより、ビーム電流の激しい変動を抑制していた。

図3に、黒矢印でリニアック出口直線部でのビーム電流波形を示す。図3.a はバンチャー入力RF不足で電子ビームパルスがRFパルスより先にバンチャーに入射したときの例、図3.b は電子銃から引き出される電子ビームの波形を矩形に改善してRFパルスとほぼ同時にバンチャーに入射したときの例、図3.c はバンチャーRF電力が正常に戻った後のビーム波形の例である。図3.a と3.b の場合には、クライストロンが長パルスで運転できなかったときであるため、リニアック出口でのビームパルスは狭くなっている。バンチャーが正常に機能するようになった後ではビーム安定度が大きく改善している。

図3.a と3.c にはFELビームラインに導かれたビームの、アンジュレーター直前と直後のビーム波形も示してある。図3.a はRF位相安定度の改善がなされる前であり、図3.c はその後で且つアンジュレーター内のビームダクト内径を大きくした後であるため、単純には比較できないが高い周波数で変動していたビーム波形は解消していることが分かる。

2)については、ビーム加速時におけるクライストロン1号機出力RF電力の正確な測定を妨げていた点で、加速器動作パラメータに曖昧さが生じ問題であった。この現象は、バンチャー側からの大きな反射RF電力がクライストロンに到達することでクライストロンのインピーダンスが変化し結果として出力RF電力が変化する、という解釈と、クライストロンからの透過電力をモニターするベータ・ホール結合器の方向性分離度が不十分であるために反射電力との干渉によりRF電力が増減して見える、という別の解釈の可能性も存在する。これまでは、この問題を確認するための測定は行っていないが、放電などによりバンチャー加速管側から大きな反射が発生した時に、クライストロン出力モニター波形、1本目加速管からの反射、加速管ダミーロードの入力RF等を同時に観測することにより正確な知見を得られると期待される。

バンチャー部のRF入力不足については、加速試験の開始当初から導波管フランジに問題があったのは間違いないが、リニアック出口直線部では電子銃引出電流の50%が得られたときもある。したがって、常にバンチャー

が全く機能していなかったとは考え難い。むしろフランジでの放電や室温の変化などによりフランジの接触状態が一定せず、加速特性がパルス内、パルス間、さらには運転日ごとでも変動していたと考えられる。また、30cm加速管を撤去したことで加速効率が極端に悪化したことから、30cm加速管がバンチャー機能のある程度担っていた可能性もあるが、詳細な検討は行っていない。

現在では上記二つの現象は起きなくなっているため、リニアック出口でのビームの安定度は大きく改善されている。クライストロン1号機出力RF電力のモニター値も、クライストロン印加電圧に対して、加速条件にかかわらず良く再現されている。

2.6 入射部およびレギュラー部立体回路の改良

RF位相安定化の成果もあり、30cm加速管を撤去した後の加速電子ビーム電流とエネルギーのパルス内変動は、図3(c)のように抑制されるようになった。しかし、リニアック出口直線部におけるビーム電流に対して、90° 偏向電磁石系を通過してFELビームラインまで導かれたビーム電流はその60～70%を越えることが出来なかった。これは、クライストロン1号機からのRF出力が約20MWのときにプリバンチャーおよびバンチャーに分配されるRFがまだ不足し、バンチ形成が不十分なため、下流の4m加速管でエネルギー幅が広がってしまっていることを示唆した。したがって、バンチャー系統へのRF電力分割比の変更が必要と考えられた。実際に、クライストロン1号機の出力RF電力を増加させたときにFELビームラインでのビーム電流増加が確認された。1本目4m加速管の入力RFの増加ではエネルギー上昇はあっても、電子ビームはほぼ光速に達しているためバンチ特性の変化までは期待できないことから、これはバンチャー系RF電力の増加によるバンチ特性の改善の結果と考えられた。

また、図2に見られるようにプリバンチャーとバンチャーのRF電力・位相は互いに独立に調整する構成になっていたため、例えばバンチャーを調整したときには、他の加速管の位相との関係とともにプリバンチャーの位相との関係も同時に変化してしまい、調整が複雑になっていたため、この改善の必要があった。

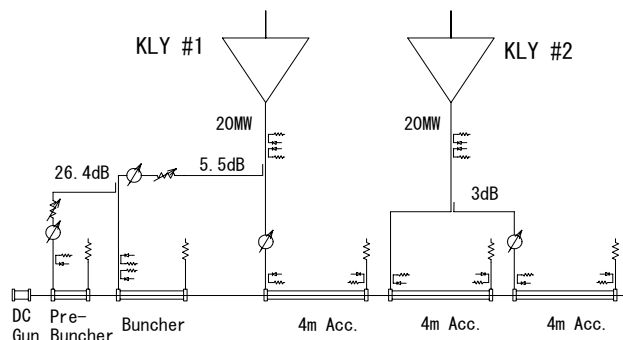


図4. 2001年2月のRF系構成変更後のブロック図。クライストロン1号機出力からバンチャー系への電力分割比を7.3dBから5.5dBに、またバンチャー移相・減衰器上流からプリバンチャーに-30dB電力分割していたのを移相・減衰器下流から-26.4dB分割に変更、1本目と3本目の4m加速管入力直前に大電力移相器を設置。これによりバンチャー系電力が増強され、入射部調整が簡素化され、さらにビームエネルギー可変範囲が大幅に拡大した。

さらに、30cm加速管を撤去した際に、1本目4m加速管入力直前にあった大電力移相器も撤去したため、RF源から見てこの4m加速管に入力するRFは位相が固定され、他の全ての加速管入力RF位相はこれに相対的な量としてのみ調整可能であった。つまり、他の位相を変更せず、1本目4m加速管の位相のみを調整することが出来ず、調整の自由度に問題があった。

そして、学術フロンティア推進事業の開始に対応しFELの広範囲にわたる波長可変性を確保するためには、アンジュレーター磁石の磁極間隙の調整のみならず、電子ビームエネルギーの大幅な変更を可能とする必要があった。

以上の課題について検討を行った結果、2001年2月に図4のようにRF系の構成を変更した。まず、プリバンチャーへのRFはバンチャーの位相・減衰器の下流側から26.4dB方向性結合器で分岐して入力するよう変更した。これにより、バンチャーの位相を調整してもプリバンチャーは相対位相に変化がないためバンチャーの特性は変化せず、その下流の4m加速管の相対位相だけが変化する。そして、クライストロン1号機からバンチャー系にRFを分岐する方向性結合器の分岐比を7.3dBから5.5dBに変更しバンチャー系の電力を増強した。この結果、バンチャーの位相調整によってはリニアック出口直線部まで加速されたビーム電流の約90%まで、エネルギー幅2%のスリットを通過させFELビームラインに導くことが可能になった。

また、4mレギュラー加速管の1本目と3本目のRF入力直前に大電力移相器を設置した。これにより1本目4m加速管の位相のみを調整することが可能になり、調整の自由度が上がった。さらに、3本目の位相を調整できるようになったため、2本目までは通常位相で加速し3本目で減速位相に調整することで安定に低エネルギービームを得ることが容易となり、最低エネルギー50MeV以下から最高エネルギー100MeVまでの加速エネルギー範囲を実現した。実際、試験的には34MeVのビームをFELラインに問題なく導くことが出来た。

3本目加速管の位相を調整できるようになったことのもう一つ大きな利点として、加速ビームバンチ内のエネルギー分布(所謂エネルギーチャープ)を調整可能になったことが挙げられる。これは90°偏向系を通してFELラインにビームを導いた際にビームバンチ長と電荷密度の調整が出来ることを意味し、FEL発振に重要なビームパラメータを最適な条件に調整できるため、発振の成功に重要な役割を果たしたと言える^[8]。

3. ビーム集束系の改良

3.1 バンチャー下流部集束系の改造

図5にバンチャー出口から1本目4m加速管入口までのビーム輸送ラインの概観を示す。リニアック運転開始当初は四極電磁石トリプレットのみを用いていたが、30cm加速管のビーム透過率が低かった。このため、図5.aのようにバンチャーと30cm加速管の間にヘルムホルツコイルの片側1台のみを挿入し、さらに30cm加速管の胴体に直接コイルを巻き、これらの組み合わせにより集束

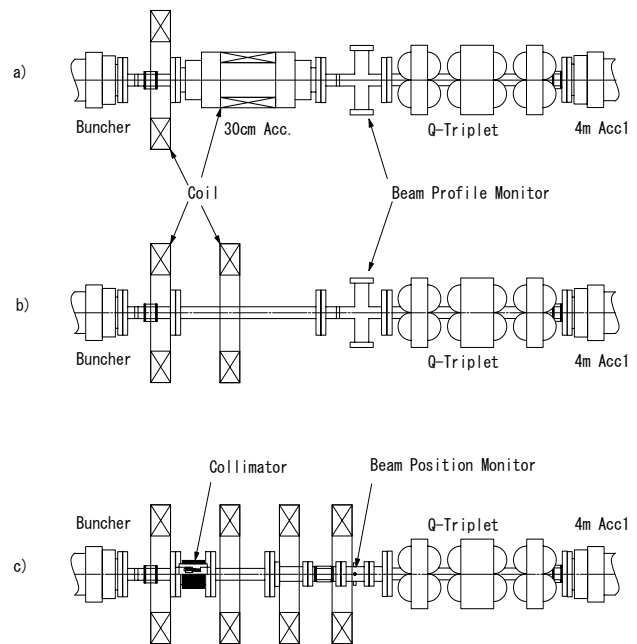


図5. バンチャー下流部のビーム集束系構成図。a) 30cm加速管使用時の構成。ヘルムホルツコイルの片側コイル1台と加速管直巻コイルにより30cm加速管のビーム透過率を改善していた。b) 30cm加速管撤去後、加速管直巻コイルの代わりにヘルムホルツコイルの片側を追加。現在はこの集束系構成で運転している。c) 現在のビームラインの構成。将来のビーム電流増強に備え、ヘルムホルツコイル1組を追加してある。追加したヘルムホルツコイルは未使用。また、コリメーターを挿入することでビーム径を制限している。

束磁場を発生させてビーム透過率を改善させていた。

1999年12月に30cm加速管を撤去した後、バンチャー出口から4m加速管までの全長約1350mmの部分は、図5.bのように下流側に四極電磁石トリプレットがあるのみで残りの上流側部分は自由空間となった。この自由空間はビームモニターを挿入するダクト部分以外は不要であった。しかし、自由空間を短くするにはRF立体回路を含め上流の入射部の移動が必要となるため、自由空間のまま残した。その代わりに、30cm加速管に巻かれていたコイルがなくなったことから、この長い自由空間には集束コイルを挿入してバンチャーを出たビームの発散を抑制する必要が生じた。そこで、図5.bに示してあるようにヘルムホルツコイルの片側部分を増設した。この集束系で現在に至っているが、ビームの透過に関しては特に問題はない。

さらに、将来のビーム電流増強に備え、2003年10月に図5.cのようにヘルムホルツコイル1組を挿入したが、このコイルは未使用である。また、バンチャー下流には2003年9月に15mm径のコリメーターを挿入し、10月にはさらにコリメーター径を変えビーム径を12mmに制限したが、実際には良く調整されたビーム条件ではビーム径はさらに小さく、コリメーターによるビーム損失は顕著には見られない。

3.2 プリバンチャー部の集束コイル増設

電子銃からバンチャーまでのビームラインの概観は図6のようになっている。建設当初、電子銃からバンチャーまでのビーム集束系は、磁気レンズ-磁気レンズ-ヘル

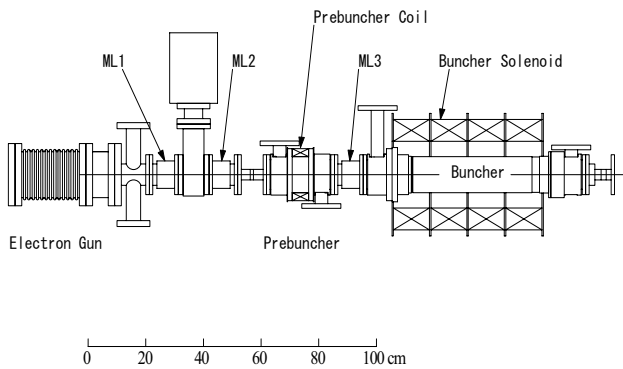


図6. 電子銃からバンチャーまでのビームライン。2000年12月にプリバンチャーコイルを追加した。ビーム集束系は、ML1、ML2、プリバンチャーコイル、ML3、バンチャーソレノイドから構成されている。

ムホルツコイルー磁気レンズーバンチャーソレノイドの順に並べた構成とする予定であったが、プリバンチャー周辺に設置するヘルムホルツコイルの製作を待たずにビーム加速試験を開始した。このため、電子銃から引き出された電子ビームはバンチャー入射までほぼ等間隔に発生させた集束磁場で集束する予定であったのが、集束磁場が一部欠けることになった。

プリバンチャー部にヘルムホルツコイルがないことによるビーム集束への悪影響については検討を行っていなかったが、通常はここに集束磁場があることによりプリバンチャー内での発散を打ち消すことが出来、安定なビーム輸送が期待できる。しかし、プリバンチャー部に設置可能なヘルムホルツコイルは、導波管フランジなどの空間的な制約により径を非常に大きくする必要が生じ、設計が難しく実際には設置が困難であった。そこで、2000年12月にDC電子銃の改造を行った際に、図6のようにプリバンチャーの胴体に直接コイルを巻きソレノイドに近い磁場を発生させるよう改造を行った。

電子銃の改造においては、それまで使用していたEIMACの大電流用Y646Eカソード(カソード径11mm)をY646Bカソード(同7mm)に変更し、電子銃ウエネルト部分の形状を変更しビーム集束を弱くすることによりエミッタンスの向上を図った^[3]。この改造により電子銃から引き出されたビームの特性が大きく変化したため、同時に設置を行ったプリバンチャーコイルの効果を比較するデータは得られていない。

4. 帯電によるビーム軌道変位の抑制

日大125MeVリニアックにはビーム電流モニター取り付け用のセラミックダクト、セラミック蛍光板式ビームプロファイルモニター、さらにはRF窓など、ビームライン上に多数のセラミックが使われて来た。セラミックは真空中での電気絶縁材料として多用されるが、電子ビームがセラミック周辺の金属部品あるいはセラミック自体に衝突すると、二次電子放出の効果により容易に帯電する。そして、ビーム加速を繰り返す毎に徐々に帯電電荷量が増加し、帯電電荷により発生した静電場がセラミックの絶縁限界を越えると一瞬で放電し、また帯電を始める。

リニアック入射部のように低エネルギー電子を輸送するビームラインでは、セラミックの帯電によって発生した

静電場をもたらす電子ビーム軌道の偏向を無視することが出来ない。この場合セラミックの下流側、特にリニアック出口では典型的な現象として、帯電・放電の繰り返しに対応してビーム軌道が徐々に変位していった一瞬で戻る、という不連続的なビーム軌道の変動が生じ、リニアックの長時間運転においてビーム安定度が損なわれる結果となる。

日大リニアックにおいても、加速試験開始以来セラミックの帯電が原因と思われるビーム軌道の変動が頻繁に観測された。また、放電によると見られる高い周波数成分のノイズがビーム電流モニターからの信号に重畳して観測された。帯電個所としてはビーム電流モニター用のセラミックダクトが疑われ、この問題を解決するため1999年6月に電子銃から近い順に3ヶ所のセラミックダクトの内側に図7.aのようなアルミ製スリーブを挿入し、セラミックに生じた静電場を遮蔽する対策を採った。この結果、リニアック入射部において発生したセラミックダクトの帯電によると考えられる大きなビーム変動は見られなくなった。

その後、FEL発振の実現と発振の安定化を目指してRF系を始め様々な改善がなされて来たが、蛍光板式ビームプロファイルモニターの使用によりアンジュレーター磁石が劣化したことを契機に、ビーム損失を発生させないビームモニターとして2000年以降ストリップライン型ビーム位置モニターの開発・整備が進められた。これによりビーム軌道の監視が常時可能になった^[9]。2003年

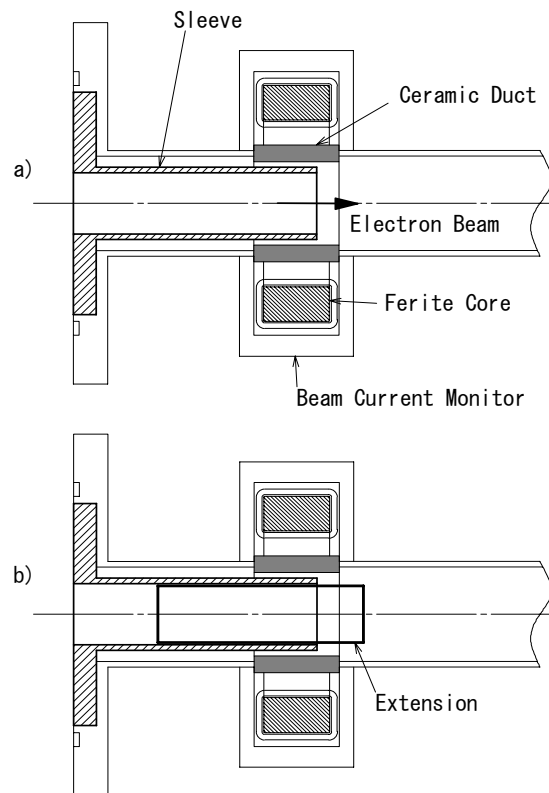


図7. ビーム電流モニター用セラミックダクトの帯電による電場の影響を避けるアルミ製遮蔽スリーブの挿入。a) 1999年6月に施した対策。b) 2003年10月に帯電の影響がわずかに残っていることが判明し、ステンレスシートからなる筒を内側に挿入しスリーブを延長。この状態でビーム電流波形の観測に関して問題は生じていない。

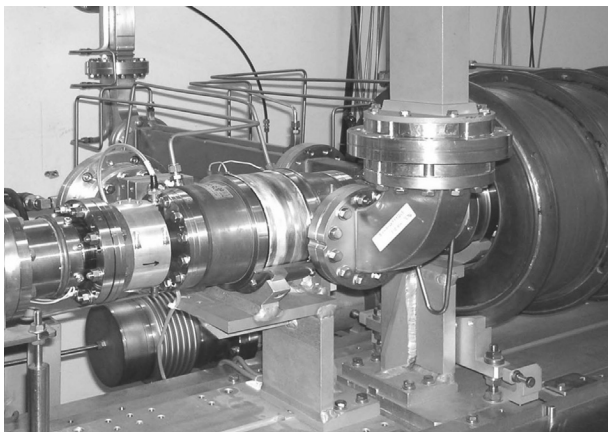


図8. プリバンチャー周辺部の写真。ビーム電流モニター(写真左)のセラミックダクト遮蔽を改善、プリバンチャーRF出力窓の上流にHバンドを挿入し窓をビームラインから遠ざけ、ダミーロードをそれまでの水平方向から鉛直方向に配置を変更した(写真右上)。

9月にはリニアックの加速管前後にもビーム位置モニターを設置し、FEL発振の安定度と加速中のビーム軌道の振舞との関係を調べられる条件が整った^[10]。

2003年後半にはマクロパルスごとにFELの発振が安定に再現されるようになったことから、発振状態の長時間にわたる変化も明らかになってきた。そして、FELの発振状態が徐々に変化し15~20分周期で元に戻る現象が繰り返されていることが分かった。リニアック各部に設置されたビーム位置モニターの信号を詳細に調べたところ、すでにバンチャーの出口において、セラミックの帯電が原因と考えられる、周期的なビーム軌道の微小な変位が起きていた。この変位を観測したビーム位置モニターより上流にあったセラミックは、ビーム電流モニター用セラミックダクト2台と、ビーム軌道から100mm以上離れているプリバンチャーのRF入力窓および出力窓各1台のみであった。

2003年10月にセラミックダクトの遮蔽を確認したところ、図7.aに見られるように、プリバンチャーの上流にあるセラミックダクトのスリーブ長が若干不足していることが判明した。このため、図7.bのようにステンレスシートを丸めて筒状にしアルミスリーブの内側に挿入することでスリーブを延長した。また、プリバンチャーのRF出力窓がビームラインから約140mmの位置にあったが、それに続くダミーロードが水平に配置され、周辺での作業に不都合であったため、窓をビームラインから遠ざけることも兼ねて図8の写真のように、Hバンドを窓の上流に挿入した。プリバンチャーのRF入力側の窓はビームラインから約230mm離れており、問題ないと判断した。さらに、バンチャーから下流には蛍光板式ビームプロファイルモニターが設置してあったが、実際には使用していなかったため帯電の影響を考慮し撤去した。

以上の対策を施した結果、ビーム位置モニター上でもセラミックの帯電が原因と考えられるようなビーム軌道の周期的変位は観測されなくなり、FELの発振状態も安定になった。正確には何が問題であったかは確認していな

いが、ビームエネルギーが低く且つビーム軌道に最も近い部分においてセラミックの遮蔽が不十分と見られたプリバンチャー上流ビーム電流モニター(図8の写真左部分)のセラミックダクトが最も可能性が高いと考えられる。

5. まとめ

125MeVリニアックのビーム安定化とFEL発振の実現およびその安定化のために、1997年のリニアック完成以来様々な改良・改善が行われてきたが、そのうち二度に渡り大電力RF立体回路系の変更を行った。これにより、リニアック入射部におけるビームバンチ特性が向上し、リニアック出口直線部におけるビーム電流のうち90%がFELビームラインへ導かれるようになった。また、大電力移相器の増設によりビームの縦方向位相空間分布が調整可能になったことはFEL発振の実現に大きく貢献した。さらにビームエネルギー可変範囲が大幅に拡大したことから、FEL発振波長範囲とFEL利用研究の拡大に大きく寄与した。

ビームの安定度と品質の改善は、各部の電源、クライストロン、RF電力および位相の安定化の実現により大きく前進したが、ビーム位置モニターの整備によりビーム自身の挙動まで詳細に知ることが出来るようになったことが、安定度を損なう原因を特定し、さらに安定度を高める上で重要な役割を果たした。

参考文献

- [1] T.Tanaka et al., Free Electron Lasers 1997, North-Holland; Proceedings of the 19th International Free Electron Laser Conference and 4th FEL Users' Workshop (Beijing, China, Aug. 18-22, 1997) II-103 - II-104.
- [2] I.Sato et al., Proceedings of the 23rd Linear Accelerator Meeting in Japan (Sep. 16-18, 1998, Tsukuba, Japan) 22-24.
- [3] K.Kanno et al., Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 1-3, 2001, Tsukuba, Japan) 73-75.
- [4] T.Tanaka et al., Proceedings of the 2nd Asian Particle Accelerator Conference (Beijing, China, Sep. 17-21, 2001) 743-745.
- [5] K.Yokoyama et al., Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) 4758-4759.
- [6] I.Sato et al., Proceedings of the 24th Linear Accelerator Meeting in Japan (Jul. 7-9, 1999, Sapporo, Japan) 10-12.
- [7] K.Hayakawa et al., Proceedings of the 24th Linear Accelerator Meeting in Japan (Jul. 7-9, 1999, Sapporo, Japan) 113-115.
- [8] I.Sato et al., Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 1-3, 2001, Tsukuba, Japan) 30-33.
- [9] K.Ishiwata et al., Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 1-3, 2001, Tsukuba, Japan) 270-272.
- [10] T.Tanaka et al., Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 4-6, 2004, Funabashi Japan) 22-24.

自発放射自己増幅の観測

田中俊成, 早川建, 佐藤勇, 早川恭史, 横山和枝*, 桑田隆生, 野上杏子, 森 啓, 境 武志

日本大学量子科学研究所 電子線利用研究施設 (LEBRA)

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎

1. はじめに

真空紫外からX線領域の短波長自由電子レーザー (Free-Electron Laser, FEL) の実現が期待できる光増幅過程は、今のところ自発放射自己増幅 (Self-Amplified Spontaneous Emission, SASE) 型FELのみである。その理由は、発振型のFELにおいて不可欠な高反射率の共振器ミラーが紫外領域より短波長では入手困難なため事実上不可能であるのに対して、SASE-FELにおいては共振器ミラーに頼る必要がないことにある。SASE-FELは理学・工学・医療分野等における研究用放射光源として、現在の大型放射光施設における光源の次世代となる第4世代光源として期待されている。特に、SASE-FELが大強度で可干渉性をもった極短単パルス光源であることは大きな魅力である。しかし、その実現には加速エネルギー数GeV以上のリニアックと長さ数100mのアンジュレーターが必要とされるため、世界的にも数少ない超大型加速器施設においてのみ可能となる^[1]。

一方、可視～紫外領域におけるFELも発振型FELの出力が高くなるに従い使用する共振器ミラーの耐性が問題となるため、強力な光源の実現を目指すには共振器ミラー不要のSASE-FELが重要な選択肢の一つとなると考えられる。またX-FELと同様に、発振型FELでは得られない極短単パルス光源が実現できることも重要である。

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) の125MeVリニアックを用いたFELは、アンジュレーターと共振器ミラーの組み合わせにより波長約1～6 μm の範囲で発振を実現している。元々このFEL装置はSASEを考慮して設

計されてはいなかったが、FEL発振実験において光共振器としての増幅効果が存在しない条件下でも光強度の顕著な増加が起きることが発見された。その後電子ビームの条件との関係を詳しく調べた結果、これはSASEによる光増幅であると判断された^[2]。

将来的課題として長尺アンジュレーターが必要となるものの、SASEの飽和が実現できれば共振器ミラーに頼らずに赤外～紫外領域の高出力FELを利用する可能性も開ける。したがって、日本大学に設置された加速器とFEL装置によるSASE-FELの研究は今後の光源開発にとって意味があると考えられる。そこで以下において、これまでに行なわれた基礎的な観測と実験結果について報告する。

2. LEBRAのFELシステム

LEBRAのFELシステムでは図1のように、125MeVリニアックで加速された電子ビームは2台の45° 偏向電磁石とその間にある4台の四極電磁石によって90° 偏向されアンジュレーターに導かれる。アンジュレーター放射光は共振器ミラーM1およびM2によって蓄積され、その一部が上流側のM2の中心に開けられた結合孔を通して取り出される。

表1にLEBRAにおける赤外FELシステムの主なパラメータを示す。電子ビーム電流値に関しては、直接測定されているのはマクロパルス電流のみである。マイクロパルス電流はビームのパンチ長の測定から求められる。LEBRAの電子ビームについて正確なパンチ長は測定さ

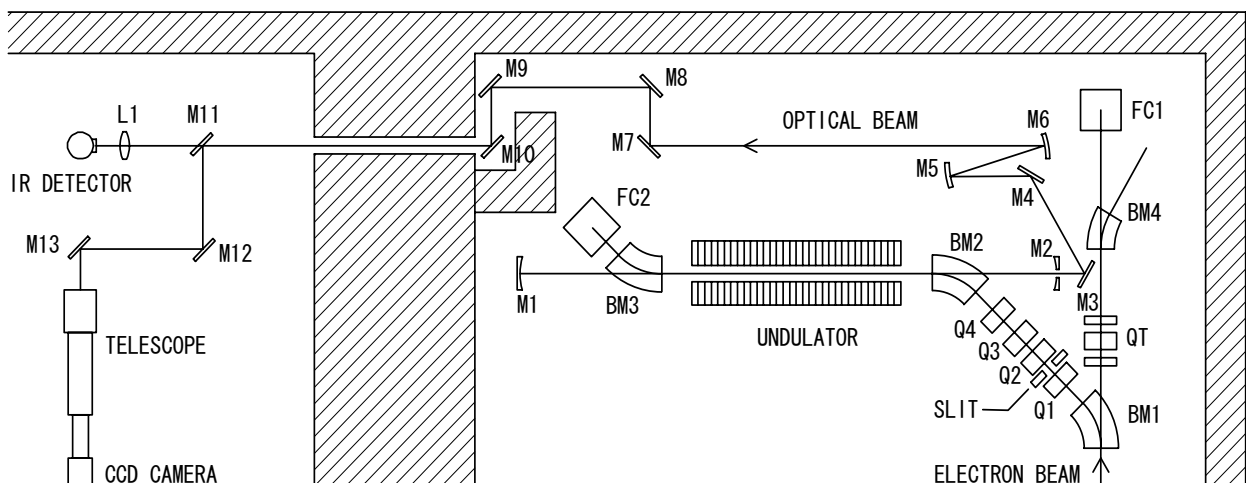


図1. LEBRAのFELシステムとSASE観測実験における光計測システムの概念図。加速器からの電子ビームは90° 偏向電磁石系 (BM1, Q1～Q4, BM2) によりアンジュレーターに導かれる。FEL共振器ミラーM1およびM2のうち、M2の中心に開けられた結合孔を通して光が取り出される。回折で広がった光は楕円ミラー (M5) と放物面ミラー (M6) からなるコリメーター (ビームエキスパンダー) で平行ビームに変換される。平面ミラーで隣接する実験室に導かれた光はInSn赤外線検出器を用いて計測される。同時に高調波の可視光もゴールドミラーで分離し望遠鏡を通してCCDカメラで観測する。

* Present Address : 茨城県つくば市大穂1-1 高エネルギー加速器研究機構

表1. LEBRA赤外FELシステムの仕様。

Maximum electron beam energy	125	MeV
Maximum undulator K-value	2	
Macropulse beam current	~ 80	mA
Micropulse beam current	> 20	A
Period of undulator field	48	mm
Minimum undulator gap width	24	mm
Number of periods	50	
FEL wavelength range	0.6 - 6	μm

れていないが、ビームの縦方向位相空間分布を推定する予備的実験の結果によれば、FELの発振が起きるときには1ps以下と推定される^[3]。バンチの間隔は350psであるため、マイクロパルス電流は概ね30A以上と考えられる。

FEL光共振器から取り出された光は回折環を伴う発散光となるが、結合孔から光学距離約2.5mの位置にある楕円ミラーM5によって集束された後に放物面ミラーM6で平行光に変換される。その後真空中を一連の平面ミラーによって隣接する実験室に導かれ、InSn赤外線検出器を用いて光出力が観測される。同時に、可視光高調波がコールドミラーを用いて分離され、望遠鏡を通してCCDカメラで観測される。この実験室に置かれた観測システムは2003年後半から開始したFEL共同利用のため撤去され、現在はFELをユーザー実験室に輸送する途中にモニター用として挿入されている。

ブラウンホーファー回折の原理によれば波長 λ_L の平面波の光が半径 a の孔を通過すると、回折により生ずる回折環のうち、第1暗環の半径の拡がり角 θ は

$$\theta = \frac{3.833\lambda_L}{2\pi a} \quad (1)$$

で表される^[4]。したがって、 $a=0.2\text{mm}$ 、 $\lambda_L=1\mu\text{m}$ の場合を例にとると $\theta=3\text{mrad}$ となり、楕円ミラーの位置における第1暗環の直径は15mmとなる。放物面ミラーは楕円ミラーに入射した光束を倍率1倍で平行ビームに変換するため、平行ビームの第1暗環直径も15mmである。この直径の光ビームが各ユーザー実験室まで導かれる。

3. 光出力強調の観測

FEL発振実験において行うビーム調整のうち、リニアックのバンチャーおよび4m加速管の入力RF位相を調整することによってビームバンチ長とバンチ内電子のエネルギー分布が調整されるが、これらを特定の位相に調整したときには実験室で計測していたアンジュレーター自発光のマイクロパルス波形において、図2のAのように間欠的に光出力が強調される現象が見られた。

矩形の電子ビームパルスがアンジュレーターに入射された場合、共振器ミラーが正しく調整されているときに観測されるアンジュレーター光のマイクロパルス波形として、通常は図2のBのような波形が得られる。すなわち、共振器中で往復・蓄積されていく光が反射損失などで減少するため指数関数的に飽和する立ち上がり部分、飽和して平坦な部分、さらに電子ビームパルスの終了により

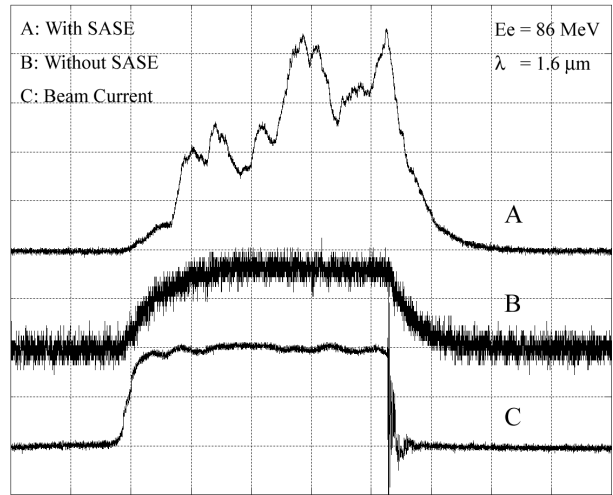


図2. アンジュレーター自発放射光のマイクロパルス波形とビーム電流波形。A: 光出力が強調されているとき(光検出器出力200mV/div)。B: 光出力の強調が見られないとき(光検出器出力20mV/div)。C: ビーム電流波形(20mA/div)。このときの波長は1.6 μm 。

指数関数的に減少する立ち下がり部分からなる。これに対して図2のAでは間欠的に約20倍にもなる複数のピークが現れている。AとBの違いは、バンチャー入力RF位相の調整のみによって生じた。このときの電子ビームマイクロパルス電流波形はCのようになっていた。このとき電子ビームエネルギーは86MeV、アンジュレーター自発放射光の基本波長は1.6 μm である。

この光出力の強調は、調整によっては通常的光蓄積波形に比べ約100倍に達する場合もあった。また、特徴的なこととして、この光強調は極めて不安定でパルスごとに波形が大きく変化し、RF位相の調整とビーム集束の調整に強く依存する。RF位相の調整は90° 偏向電磁系を通過した後の電子ビームの縦方向位相空間分布すなわちバンチ長に影響し、ビームの集束は横方向のビーム電荷密度に影響する。さらに、LEBRAにおけるFELの強い発振は、この光強調が生じる状態またはそれに近い状態にリニアックを調整したときに起きることが経験上分かっている。したがって、光出力が強調されるように調整された電子ビームは、バンチ長が短くビーム束が細く集束されていることを強く示唆する。

光出力の強調は共振器ミラーの間隔を変更しても依然として観測されたことから、通常発振型FELにおける光増幅現象すなわち共振器内の蓄積光の場と後続電子ビームとの相互作用による増幅とは明らかに異なる現象であった。通常ではFELが発振している状態で共振器ミラー間隔を変更すると図2のBの波形となる。我々は、短くバンチされた電子ビームが放射するアンジュレーター自発光が自己増幅された結果、光出力の強調が生じている、すなわちSASEが起きていると予想し、アンジュレーターの途中でビームを偏向させたときの光出力の振舞について調べることで増幅の有無を確認することを試みた。

4. 光強度のビーム偏向依存性の測定

アンジュレーター中で自発放射の自己増幅が起きているかを調べるため、実験条件として

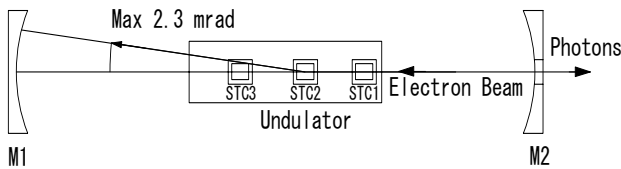


図3. アンジュレーター中でのビーム軌道偏向に対する光出力強度依存性の測定における、ビーム偏向システム の概念図。ステアリングコイルは上流から95cmの位置にあるSTC2を使用。ビーム偏向角は磁場計算より最大2.3mrad(励磁電流10A時)と推定される。

1) 2枚のFEL共振器ミラーのうち、光を取り出している上流側ミラーM1の向きを、自発光の蓄積が起きない十分な角度である1.5mradだけ水平方向に振る

2) 共振器ミラー間隔を、電子ビームバンチ長より確実に長い1mmだけ、FEL発振時の間隔からずらすという光共振器の調整を行った。これにより光共振器はFELの発振も共振器中の光蓄積も起きない条件に設定された。このとき、アンジュレーター中で発生した自発放射光は下流側のミラーM1で一度反射され、上流側のミラーM2の孔を通った光のみが外部に取り出される。

アンジュレーターの側面には鉛直方向にビーム軌道を微調整するステアリングコイルが3組設置してある。そこでこのうち、図3の概念図に示すようにアンジュレーター入口から95cmの位置を中心とする2番目のステアリングコイルSTC2を励磁することにより電子ビームを偏向し、この際に取り出される光強度のビーム偏向角依存性を測定した。ステアリングコイルは最大10Aまで電流を流すことが出来、簡単な磁場計算によればその際に

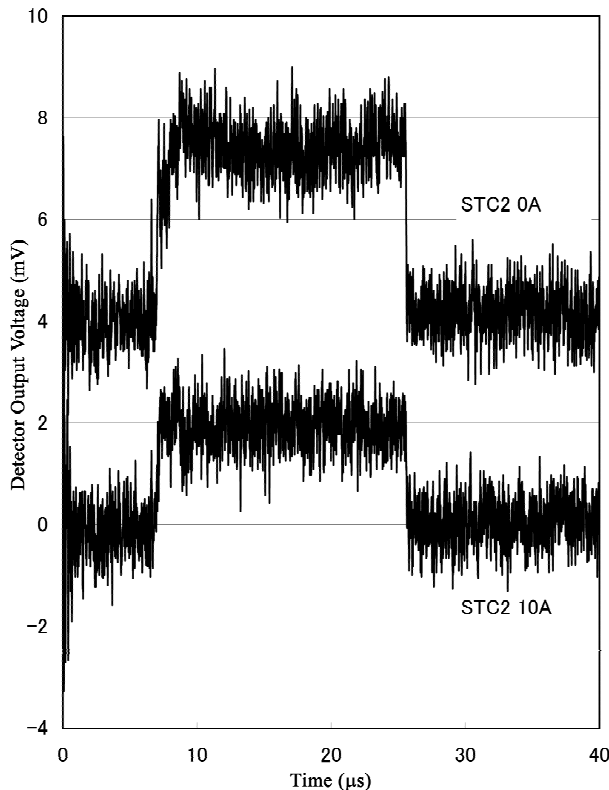


図4. 光出力の強調が起きていないときのビーム偏向の効果。a) ステアリングコイルSTC2の励磁電流0A、b) 励磁電流10Aのとき。10Aまで励磁したとき、光出力が約半分に減少している。光共振器は、FEL発振が起きず光蓄積もされないようアライメントをずらしてある。波長は1.8μm。

86MeVの電子ビームは最大約2.3mrad偏向される。

図4はアンジュレーター磁極間隙を最小にし、波長1.8μmにおいて通常の自発光のみが観測される状態で、a) ステアリングコイルを励磁しなかったときと、b) 10Aまで励磁したとき、の取り出された光強度の違いを示す。光共振器のアライメントをずらしてあるため、光が蓄積された波形とは異なり、どちらも矩形の波形を示していることが分かる。ステアリングコイルはアンジュレーター全長のほぼ40%進んだ位置にある。それ以降の部分で発生したアンジュレーター自発光が全く取り出されないように、このステアリングコイルで大きく電子ビームが偏向されると、実質的にアンジュレーター長が40%まで短くなったことに相当すると考えられる。このとき、アンジュレーター自発放射光の強度はアンジュレーター周期数の2乗に比例するため取り出された光強度は1/6まで減少すると期待される^[5]。しかしアンジュレーター放射光は角度広がりが大きいため、実際には図4のように、実験で励磁したコイルによる最大偏向角においても約1/2までしか減少しなかった。

次に、波長1.8μmにおいて光出力の強調が現れている状態にリニアックを調整し、ステアリングコイルの励磁電流を0Aから10Aまで2.5Aずつ変えて光強度を測定した結果を図5に示す。図2においては光の蓄積波形を観測していたために明確ではなかったが、励磁電流0Aの波形により、実際には間欠的に強調された光が発生しており、マクロパルス全体にわたって光強度波形が多くのピークから成っていることが明確に示されている。

ステアリングコイルを励磁してビームを偏向すると、励

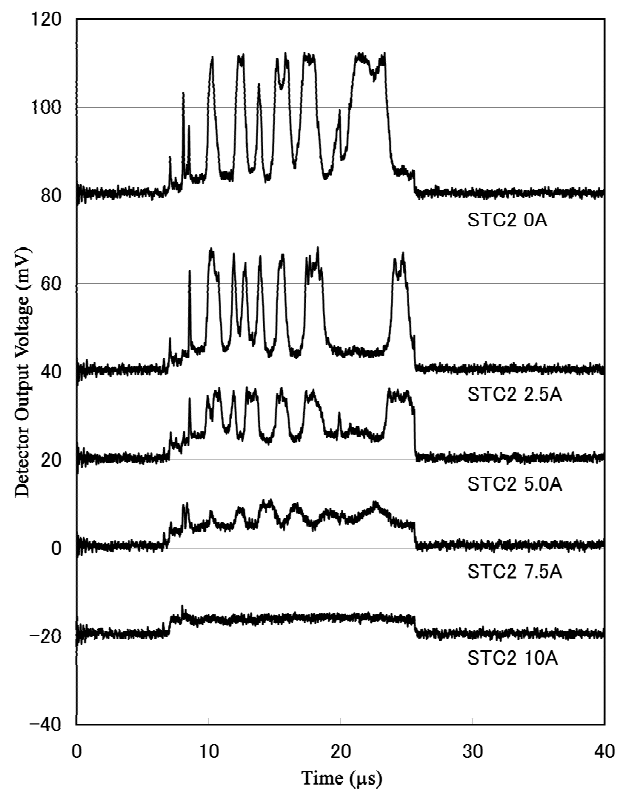


図5. 光出力の強調が起きているときのビーム偏向の効果。上から順にステアリングコイルSTC2の励磁電流0A、2.5A、5.0A、7.5A、10Aのとき。強調されていた光の成分は励磁電流の増加につれて減少し、10Aではほぼ消滅し、図4の通常のアンジュレーター光のみになる。

磁電流の増加につれてこの強調された光の成分が減少し、10Aまで励磁した結果では強調された光の成分はほとんど消滅し、図4にあるような通常観測されるアンジュレーター光の強度波形のみが観測されるようになった。

この実験結果から、図5のピーク状の強度を示す光成分は、アンジュレーターの後半部分で発生していたことが明白となった。このように通常のアンジュレーター光に比べて強い光の発生機構としてはSASEによる増幅の他に、ビームバンチに顕著な微細構造が生じたことに起因するコヒーレント・シンクロトロン放射の可能性が考えられる^[6]。しかし、コヒーレント・シンクロトロン放射の場合にはその放射角度の拡がり基本的には通常のアンジュレーター放射と同じであり、図4に示されたように、ビームを途中で偏向してもこれほどの減光は起きないことが期待される。つまり、観測された光は通常のアンジュレーター光に比べて指向性が強い可能性が考えられるが、アンジュレーター光よりも指向性の高い光ビームの発生は、そもそも電子ビームとの相互作用を前提にしなければ期待できない。このことから実験結果は、光と電子ビームバンチの重量による相互作用で光が増幅されたのが、ビームを偏向することで重量度が低下し増幅が抑制された結果、大きく減光したことを示すものと考えられる。

以上のことから、図5の間欠的に発生した光強度の増加はSASEによる増幅の結果と考えられる。この場合、図5の結果はアンジュレーター中を電子ビームが1.5m進む間に少なくとも10倍の増幅が起きていることを示唆する。そこで、LEBRAのリニアックから得られる電子ビームを用いた場合にSASE増幅が可能となるビームの条件と、現在のビーム条件の下で予想される増幅特性について検討を試みることにする。

5. SASE-FELに要求されるビームと現状

SASE-FELに要求される電子ビームの性質としては、まずビームの規格化エミッタンス ϵ_N が概ね

$$\epsilon_N < \sim \gamma \frac{\lambda_r}{4\pi} \quad (2)$$

を満たすこと、また電子ビームの相対的なエネルギー拡がり σ_E/E が

$$\frac{\sigma_E}{E} < \rho \approx \frac{1}{4} \left[\frac{1}{2\pi^2} \frac{I_{pk}}{I_A} \frac{\lambda_u^2}{\beta \epsilon_N} \left(\frac{K}{\gamma} \right)^2 \right]^{1/3} \quad (3)$$

を満たすことが挙げられる^[7]。ここで、 γ は電子の静止質量を単位とした電子エネルギー($\gamma = E/mc^2$)、 λ_r は放射される光の波長、 ρ はFELパラメータ、 C はアンジュレーター周期長、 K は平面波アンジュレーターのパラメータで $K = eB \lambda_u / 2\pi mc$ 、 B はアンジュレーターのピーク磁場、 I_{pk} はマイクロパルスビーム電流、 I_A はアルフエン電流($I_A \sim 17kA$)、 β はアンジュレーター中でのビームの平均 β 関数である。また λ_r は

$$\lambda_r = \frac{\lambda_u(1+K^2/2)}{2\gamma^2} \quad (4)$$

と与えられ、さらにSASEの利得は光電力が e 倍になるまでに要するアンジュレーター中での電子ビームの軌道長、すなわちgain-length L_g を用いて定義され

$$L_g \approx \frac{\lambda_u}{4\pi\sqrt{3}\rho} \quad (5)$$

と表される。したがって

$$L_g \approx \frac{1}{\sqrt{3}} \left[\frac{2\lambda_u \beta \epsilon_N \gamma^2}{\pi K^2} \frac{I_A}{I_{pk}} \right]^{1/3} \quad (6)$$

となる。

(4)式から明らかなように、X線領域のSASE-FELを実現するには高エネルギーの電子ビームが不可欠となる。この条件の下でSASE-FELの利得を大きく、すなわち(6)式のgain-lengthを短くするためには、周期長が短くピーク磁場の強いアンジュレーター、規格化エミッタンスが小さくマイクロパルスビーム電流の大きい電子ビーム、さらには強いビーム集束系が必要とされ、リニアック技術およびビーム技術の向上が大きな課題となる。これに対してLEBRAの場合には電子エネルギーが100MeV以下であるため、必要とされる条件が大きく緩和される。

電子エネルギー86MeVにおいて波長1.8 μ mのSASEに要求されるビームのエミッタンスは(2)式より

$$\epsilon_N < \sim 2.4 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{rad} \quad (7)$$

であるが、LEBRAでは電子銃から引き出した直後のエミッタンス測定の結果では $\epsilon_N = 1.3 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{rad}$ と見積もられており^[8]、条件を満たしている。また、アンジュレーター中での平均 β 関数は概ね $\beta = 1m$ となるようビーム輸送系が設計されている。そこでマイクロパルスビーム電流80mAにおいてビームバンチ長を約0.5psと仮定すると、マイクロパルス電流は $I_{pk} = 50A$ となり、実験時のアンジュレーター磁極間隙から $K = 1.5$ のときにSASEに要求されるビームのエネルギー拡がりは(3)式より

$$\frac{\sigma_E}{E} < \approx 0.33\% \quad (8)$$

である。実際のビームのエネルギー分布を測定した結果では半値全幅が数10%大きな値となっているが概ね条件は満たされていると考えられる。これらから、LEBRAの電子ビームはSASE増幅に必要な条件をほぼ満たしていることが分かる。さらに、これらのパラメータからgain-lengthを求めると

$$L_g \approx 0.69m \quad (9)$$

となる。したがって、上のビーム条件下ではLEBRAにおける現状のFELシステムでSASE増幅が観測されることは全く不思議ではないと言える。リニアックの運転条件がgain-lengthに大きく影響する要素として、マイクロパルス電流の評価の問題があるが、90°偏向電磁石系を通過する際にバンチ圧縮効果を利用してピーク電流値を高められているため、これはビームの加速条件によって大きく変化する。したがって(9)式のように求められたgain-lengthはあくまでも参考値である。上の計算で得られたgain-lengthは実験結果を説明するには長すぎるように見える。しかし、バンチ長は実際には0.5psよりさらに短く圧縮されている可能性がある。例えばバンチ長が0.3psの場合には $L_g = 0.56m$ となり、1.5mで約14倍の増幅が得られることになり実験結果を良く再現できる。ただし、gain-lengthの理論値は一次元モデルに基づいており、精度に問題があるため実験結果をこれだけで説明することは難しい。

6. まとめ

日本大学LEBRAのリニアックとFELシステムを用いて行ったFEL発振実験において、光共振器から取り出されたアンジュレーター自発放射光のマクロパルス波形に光出力が強調される現象が見つかった。アンジュレーターの途中でビームを偏向することにより光出力強調の振舞を調べた結果、これはSASE増幅による現象であると判断された。LEBRAの電子ビームの特性は、SASE増幅に要求される条件を概ね満たしていることが確かめられた。さらに光の強調がSASEによる増幅と考えたとき、SASEの一次元モデルから予想されるgain-lengthは実験結果と矛盾しないことが確認された。ただし、LEBRAのシステムは発振型FELの利用を目的に建設されているため、これと比較可能な同程度のエネルギー規模で研究が行われているVISA SASE-FEL計画^[9]のように本格的にSASEを研究する手段が今のところない。増幅特性を詳しく調べるには今後研究手段の開発が必要と考えられる。

参考文献

- [1] G.Dattoli, A.Renieri, Nucl. Instr. and Meth. A 507 (2003) 464-469.
- [2] T.Tanaka et al., Nucl. Instr. and Meth. A 528 (2004) 486-490.
- [3] K.Yokoyama et al., Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 4-6, 2004, Funabashi Japan) 602-604.
- [4] M.Born and E.Wolf, Principles of Optics, Cambridge University Press (1999).
- [5] C.Brau, Free-Electron Lasers, Academic Press Inc., San Diego, 1990.
- [6] M.Borland, Proceedings of LINAC 2002 (Gyeongju, Korea) 11-15.
- [7] P.Emma, Proceedings of EPAC 2002 (Paris, France) 49-53.
- [8] K.Kanno et al., Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug. 1-3, 2001, Tsukuba, Japan) 73-75.
- [9] A.Murokh et al., Nucl. Instr. and Meth. A 507 (2003) 417-421.

ビームモニターの開発

石渡 謙一郎^{A)}、佐藤 勇^{B)}、早川 建^{B)}、田中 俊成^{B)}、早川 恭史^{B)}、諏訪田 剛^{C)}、古川 和朗^{C)}、
 横山 和枝^{C)}、境 武志^{B)}、菅野 浩一^{A)}、猪川 弘康^{A)}、中村 吉宏^{A)}、中尾 圭佐^{A)}

^{A)} 日本大学大学院 理工学研究科 量子理工学専攻

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1 日本大学工学部船橋校舎 物理実験B棟

^{B)} 日本大学 量子科学研究所

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台7-24-1 日本大学工学部船橋校舎 物理実験B棟

^{C)} 高エネルギー加速器研究機構

〒305-0801 茨城県つくば市大穂1-1

1. はじめに

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設では、高エネルギー加速器研究機構との共同研究により赤外から紫外線領域における自由電子レーザー(FEL)の発振にむけて電子線形加速器(リニアック)の性能改善および高度化が進められ、現在、赤外領域におけるFELの利用実験が行われている。加速器の性能はビーム計測を行って初めて知ることができ、ビームモニターは加速器のビーム輸送ラインの調整運転、実用運転、故障時の診断になくてはならない装置である。ビーム計測には破壊型計測と非破壊型計測があり使い分けされている。

以前、可視から紫外線領域におけるFEL発振実験を行っていたが、アンジュレーター磁場の劣化により使用が不可能になった^[1]。これはビーム位置とビームの分布を測定する破壊型の蛍光板モニターで発生する放射線が主な原因であった。可視から紫外FEL用アンジュレーターが使用不可能となったので赤外FEL用アンジュレーターに変更した際、アンジュレーター入口・中央・出口に設置されていた蛍光板モニター3台を取り外した。これによりFEL共振器軸のビームラインにはビーム軌道をモニターできるものが無くなったため、破壊型の蛍光板モニターに代わる非破壊型ビーム位置モニター(BPM)を設計・製作し、リニアック出口部およびアンジュレーター入口・出口にそれぞれ1台ずつ計3台設置した。このBPMはビーム軌道の計測に非常に有効であった。その後、加速器直線部に6台・FELビーム

ラインに4台・X線ビームラインに3台の計13台に増設を行った。ここでBPMの設置場所を図1に示す。

本研究の目的は、BPMを用いてリニアックの運転・調整時における電子ビーム位置を非破壊的に複数の場所でモニターすることにより電子ビーム軌道を安定させFEL発振を容易にするシステムを構築することである。

2. 非破壊型ビーム位置モニター

導入したBPMは集束した電子ビームの電荷分布の重心位置を非破壊的に計測する装置である。リニアックの加速周波数2856MHzのマイクロ波(RF)で集束した電子ビームがBPMを通過する際、電子ビームが誘起するウェーク場を電極でとらえビーム位置を測定する。BPMはストリップライン型の電極を、高周波同軸ケーブルの特性インピーダンス50Ωに整合させ、また、電極長を加速周波数2856MHzの1/4波長の長さで共振するように設計した。また、水平方向と垂直方向に向かい合うように4電極から構成されている^[2]。各電極からの信号は放射線の影響が小さい場所に高周波同軸ケーブルを用いて伝送され、RF検波器に入力される。ビーム位置はこの検波電圧の関数として求められる。このBPMの利点は、(1)ビーム位置を0.1mm以内の高精度で測定できる、(2)ビーム位置の測定とビーム使用とが両立できる、(3)パルス内のビームの挙動がわかる、などがあげられる。しかし欠点は蛍光板モニターのようにビームの断面分布が測定できない点である。

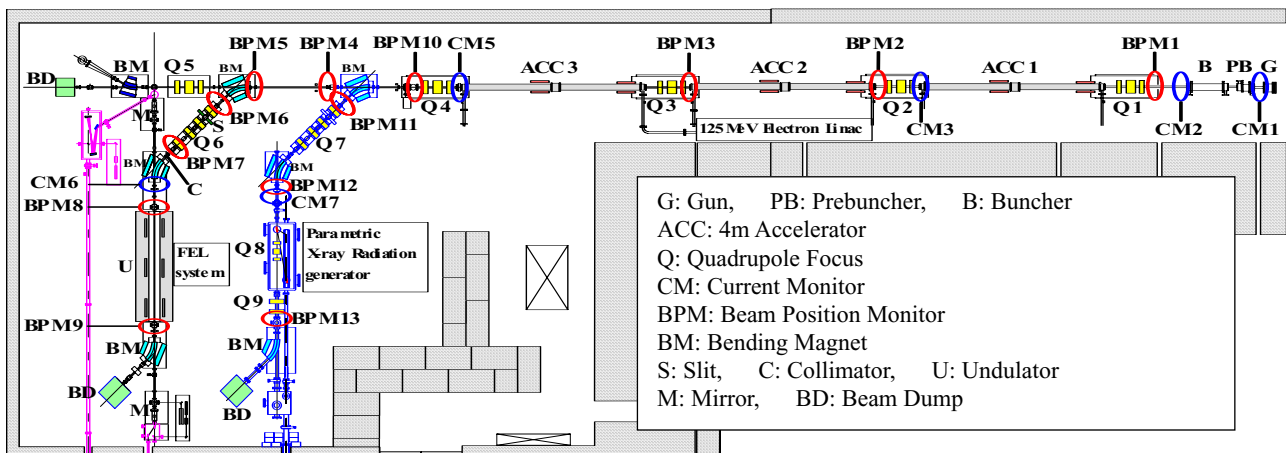


図1. ビーム位置モニターの設置箇所。

3. BPMの較正とビームラインへの設置

BPMの較正は、直径0.5mmのタンダステンワイヤーに2856MHzのRFを伝送して擬似ビームをつくり、ワイヤーを中心軸に、BPMを1mmステップで±5mmの範囲を格子点状に移動させ、4電極の出力を同時に計測し、その信号からビーム位置を換算して行った。また、この較正では、BPMの中心から半径5mmの範囲内で換算誤差を0.05mm以内に行ってきた^[3]。

リニアック直線部のBPM 3台は四極電磁石近傍にトランシットでその位置を確認しながら設置したが、電子ビームにとっては四極電磁石の磁場中心が軌道に対する中心となるために、その軸からずれた設置は誤差をとまなう。ビームが四極電磁石の磁場中心を通過すれば磁場を変化させても、下流のBPMではビーム位置の変化は観測されない。このとき、四極電磁石近傍に設置したBPMで計測したビーム位置が磁場中心となる。この原理を用いて電子ビームによる四極電磁石の磁場中心とBPM中心とのズレを測定した。測定の結果、1台の水平方向を除き、四極電磁石の磁場中心とBPM中心とのズレは0.4mm以内におさまっていることがわかった^[4]。

4. FELビームラインに設置したBPMの有効性

電子ビームはリニアック直線部からFEL発生装置へ45° 偏向電磁石2台と四極電磁石4台とを用いて輸送され、この輸送系では90° 偏向後のビームを無分散に設定できるようにパラメーターを設定できる。

無分散パラメーターは、FELビームラインのアンジュレーター入口に設置したBPMの各電極の検波波形をオシロスコープで測定することにより設定できる。分散が残っている場合、電子ビームは90° 偏向系通過後エネルギー変動によりビーム位置が変動するためBPMの水平対向電極の検波波形が逆相になるので、同相になるようにビーム輸送系のパラメーターを調整すると、ビームは無分散に設定されたビームの輸送系を通り安定する。また、無分散にビーム輸送系が設定されるとアンジュレーター入口のBPMで計測されるパルス内のビーム位置の変動は水平方向・垂直方向ともに0.2mm以内になっている。このような場合はFEL発振に長パルスを有効に使用することが可能になり、FEL発振は飽和し安定になる^[5]。

また、FELでは光共振器中に蓄積された光の中心軸を後続の電子ビーム軌道と重ね合わせることが発振の条件となるため、高精度のビーム軌道計測が必要であり、アンジュレーターの入口と出口に設置されたBPMによるビーム軌道の同時観測はFEL発振を容易にしている。

5. 高調波によるビーム位置算出への影響

FELビームライン90° 偏向は2回の45° 偏向によって遂行されるが、45° 偏向部に設置されたBPMのビーム位置計測はエネルギー変動の測定に有効である。しかし、偏向部に設置されているスリット幅を調整するとスリットから338mm上流部に設置されているBPMのRF検波出力が異常になる現象が観測

された。これはバンチされた電子ビームがスリット周辺でマイクロ波を誘起し、そのマイクロ波が上流に伝播してBPMの信号に加算されることが原因と想定された。ビームダクトは円形導波管でありその遮断周波数は4540MHzであることから、加速周波数2856MHzはビームダクトを伝播しない。従って検波出力の異常は高調波によるものと想定された。これを確認するため、検波器の直前に4.2GHzが上限のローパスフィルターを設置し、再度スリット幅を調整しながら検波出力を測定した。その結果、高調波はローパスフィルターによって除去され、ビーム位置の読み取りが正常になり、エネルギー変動の測定が可能となった^[5]。

6. ビーム位置の計測システム

ビーム軌道の調整を容易にし自動調整を可能とするために、リニアック直線部およびFELビームラインに設置されたBPM 10台の全パルスのビーム位置を記録・表示を行うシステムを開発した。リニアック直線部のBPM 6台では20 μ sのパルス内のビーム位置変動は微少でありビーム位置の検出は、パルス内の1点で行えば十分である。FELビームラインのBPMではパルス内において変動するが計測点を1点に絞ってビーム変動を測定することにした。

各BPMの各電極の検波信号を高速オペアンプに入力し20倍に反転増幅する。この信号は、ビームパルス幅20 μ sの中心時点でもサンプル/ホールドされる。BPM 10台×4電極のサンプル/ホールドされた信号の電圧はPCIバスに接続された12ビットAD変換ボードでデジタル化されPCに取り込まれる。このようにPCに取り込まれたデータからビーム位置を計算し、さらに、記録・表示するシステムを製作した。

PC画面には各BPMの4電極の検波電圧、現在のビーム位置、ビーム位置の履歴が表示できた。これにより、ビーム位置の常時モニターが可能となり、ビーム軌道の調整が非常に容易になった^[6]。

7. まとめ

非破壊型BPMを13台設計・製作し、擬似ビームを使って較正後、ビームラインに設置した。このBPMを用いることによりビーム位置・軌道の常時モニターが可能となった。また、パルス内におけるビーム位置の変動もモニター可能となった。

45° 偏向部に設置したBPMを活用し、そのビーム位置計測により電子ビームのエネルギー変動が測定可能となった。

FELビームラインに設置したBPMは、90° 無分散偏向系の設定を容易にし、FEL発振のビーム特性の診断およびアンジュレーター内のビーム軌道調整に重要な役割を果たしている。

ビーム位置の計測システムは、2Hzの電子ビーム繰り返しで、常時、各BPMにおけるビーム位置の同時計測が可能になり、これをPC画面に表示し、ビーム軌道の調整を容易にしている。

さらに、BPMの導入により、電子ビームの安定輸送が可能になりFEL発振を容易にしている。

参考文献

- [1] I.Sato et al., “Advanced Status AT LEBRA in Nihon University”, Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan (July 12-14, 2000, Himeji Japan) pp.24-28.
- [2] 石渡謙一郎 他, “非破壊型ビームポジションモニターの開発研究” Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan (Aug.1-3, 2001, Tsukuba, Japan) pp.270-272.
- [3] K.Ishiwata, et al., “Development of Strip-Line Type Beam Position Monitor” Proceedings of the 21st International Linear Accelerator Conference (LINAC2002, Gyeongju, Korea, August 19-23, 2002)
- [4] K.Ishiwata, et al., “Calibration of Beam Position Monitors by the Beam” 平成16年度（第48回）日本大学工学部学術講演会 物理系部会
- [5] K.Ishiwata, et al., “Influence of Harmonics on the Output Signal of Beam Position Monitor Installed near the Slit” Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan (August 4-6, 2004, Funabashi Japan) 567-569.
- [6] K.Ishiwata, et al., “Development of Beam Position Measurement System at LEBRA” Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan (August 4-6, 2004, Funabashi Japan) 570-571.

電子ビーム及びFELビームパルス長の計測

早川 建¹、横山和枝²、中尾圭佐³、佐藤 勇¹、田中俊成¹、早川恭史¹

日本大学量子科学研究所¹
〒274-6501船橋市習志野台7-24-1
高エネルギー加速器研究機構²
〒305-0801 茨城県 つくば市 大穂 1-1
日本大学理工学研究課³
〒274-6501船橋市習志野台7-24-1

1. はじめに

電子線利用研究施設では、電子加速器における加速位相の制御と電子ビームを自由電子レーザー(FEL)発生装置に導く90度偏向系を利用してバンチ圧縮を行っている。バンチ圧縮によって電子ビームのピーク電流を高め、FELの発振を実現している。しかしこれまで、電子ビームのパルス長については、ストリークカメラによる測定から、1.7mm(5psec)以下、という程度しかわかっていなかった。電子ビームパルスと光パルスは図1に示すように、アンジュレータ内で空間的に重り合う部分で相互作用を行う。FELの利得は電流に比例するので、同じ電荷量でもパルス幅が狭いほど利得は大きくなる。この意味で、電子ビームのパルス長を知ることは重要である。

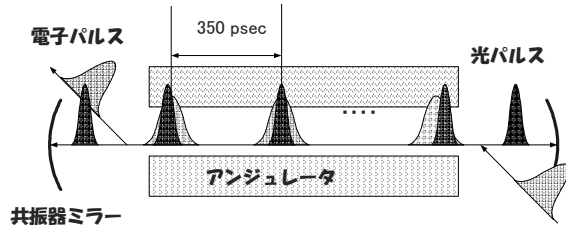


図1. 電子ビームと光パルスの相互作用領域。電子ビームのピーク電流が高くなるほど自由電子レーザーの利得は大きくなる。

FEL発生装置の電子源として使われている電子線形加速器は、マイクロ波によって電子を加速する。このため、電子はこの加速マイクロ波の周期で、集積されたパルス（バンチ）列となる。ビーム電流はコアモニターなどを使って計測されるが、コアモニターとその信号を観測するオシロスコープなどは、パルス列を分離して計測するのに必要な分解能を持たないので、平均電流しか測定できない。バンチのパルス長はサブピコ秒からピコ秒であると考えられるので、これを直接計測するのは難しい。加速に使われるマイクロ波の振幅と、加速位相、電子ビームのエネルギースペクトル、バンチのパルス長の間には互いに相関がある。この内、エネルギースペクトルと加速位相の相対値は直接測定できる物理量である。従って、何点かの加速位相についてエネルギー

スペクトルを測定すればバンチのパルス長が導かれる。

FEL光のパルス長は、干渉計を使って直接計測できる。

2. 電子ビームの時間構造

ほとんどの常伝導線形加速器と同様に、LEBRAの線形電子加速器もパルスモードで運転される。このパルス長はおよそ20 μsec で、マクロパルスと呼び、空間的な長さはおおよそ600mになる。これは加速器の長さよりはるかに長いので、孤立したパルスとして、加速器内に存在するわけでは無い。このマクロパルス内に、加速マイクロ波の波長105 mm(350 psec)間隔で、バンチが形成される。これをマイクロパルスあるいは後述のマイクロバンチに対してマクロバンチと呼ぶ。さらに、FEL発振時には、FEL発生装置内で、FELの波長に対応する間隔で、バンチが形成される。これをマイクロバンチと呼ぶ。これら、マクロパルス、マイクロパルス（マクロバンチ）、マイクロバンチの関係を図2に示す。

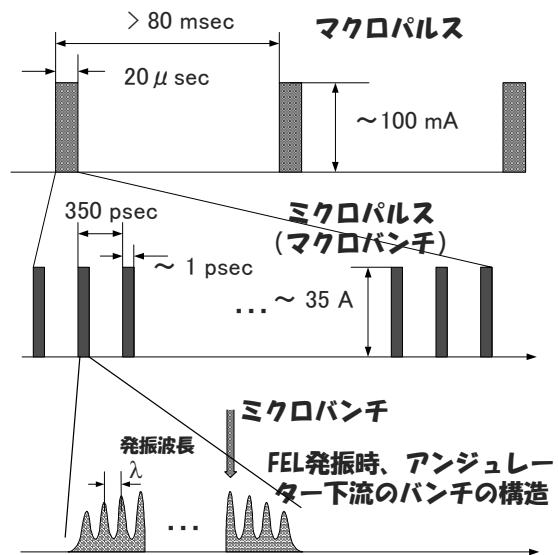


図2. LEBRA線形加速における電子ビームの時間構造。うえから順番に、マクロパルス、マイクロパルス（マクロバンチ）、マイクロバンチの様子を示す。

3. バンチの形成とバンチ圧縮の原理

電子銃から放出された電子は直流のビームと成るが、プレバンチャー・バンチャーからなるバンチ形成部において、エネルギーによる電子速度の違いを利用して集群され、1 mm (3.3 psec) 程度のパルス幅のバンチが形成される。下流の加速部では高エネルギーになるため、電子エネルギーが異なっても、ほとんど速度の違いが無いいため、バンチ長は変化しない。

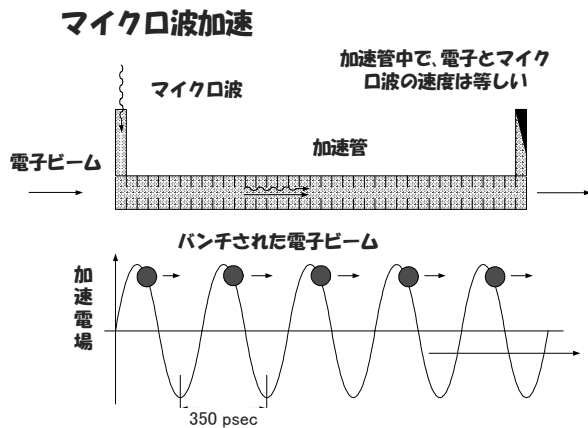


図3. マイクロ波加速の概念図、電子はバンチしているために、ほぼ同じ加速エネルギーを得るが、相対的に位置によってわずかに異なる。

バンチ圧縮は3本の加速管における加速位相の組み合わせを選び、バンチ内のエネルギー分布の調整されたビームが運動量アナライザを通過するとき起きる。

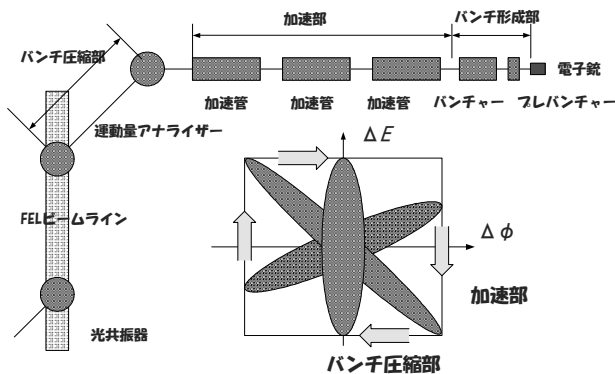


図4. バンチの進行方向位相空間における密度分布の変遷、加速部で適当な分布が形成されると、運動量アナライザを通過する時にバンチが圧縮される。

運動量アナライザは無分散90度偏向系になっており、90度偏向後はエネルギーの違いによる軌道の違いは生じない。しかし、エネルギーの高い電子は大回りな軌道を通るため、中心軌道を通る電子に比べ、軌道は長くなる。逆にエネルギーの低い電子の軌道は短くなる。従って、偏向系に入射する時に、エネルギーの高い電子がバンチの前方に、

低い電子が後方に分布していれば、速度はほとんど等しいため、エネルギーの低い電子がエネルギーの高い電子に追いつき、バンチが圧縮される。

マイクロ波加速の概念図を図2に、バンチが圧縮される様子を図3に示す。

4. バンチ長の測定^[1]

加速部下流2本の加速管は共にクライストロン2号機からマイクロ波を供給され、クライストロン1号機との相対的な位相 θ を変えることができる。また、3本目の加速管は2本目の加速管に対して、相対的な位相 $\Delta\theta$ が変えられるようになっている。クライストロンの出力が一定である時、電子ビームの加速エネルギーは位相 θ と $\Delta\theta$ によって決まる。各々の加速管の最大加速電圧を V 、2本の加速管による加速エネルギーを E とすると、

$$E = V \cos(\theta) + V \cos(\theta + \Delta\theta)$$

$$= 2V \cos\left(\frac{\Delta\theta}{2}\right) \cos\left(\theta + \frac{\Delta\theta}{2}\right)$$

と書ける。これより、同じ加速エネルギーに対して、位相 θ と $\Delta\theta$ の様々な組み合わせが可能であることがわかる。また、バンチの中心から $\delta\phi$ だけ離れた点の加速エネルギーは $\delta\phi \ll 1$ のとき、

$$E + \delta E = E - 2V \cos\left(\frac{\Delta\theta}{2}\right) \sin\left(\theta + \frac{\Delta\theta}{2}\right) \delta\phi$$

である。すなわち、同じ加速エネルギーでも、位相の組み合わせによって、エネルギー分布を様々に変化させることが可能である。今、バンチした電子の進行方向の位相空間における密度分布に楕円形を仮定し、楕円のパラメータ (Twiss パラメータ) を、 α , β , γ とし、楕円の面積 (エミッタンス) を π で除した量を ε とする。2本目の加速管入り口のTwissパラメータを α_0 , β_0 , γ_0 エミッタンスを ε_0 とし、3本目加速管出口におけるエネルギー幅 (半幅) を ΔE とすると、

$$\Delta E^2 = \varepsilon_0 (\beta_0 g(\theta, \Delta\theta)^2 + 2\alpha_0 g(\theta, \Delta\theta) + \gamma_0)$$

なる関係が成り立つ。ここで、

$$g(\theta, \Delta\theta) = -2V \cos\left(\frac{\Delta\theta}{2}\right) \sin\left(\theta + \frac{\Delta\theta}{2}\right) \frac{2\pi}{\lambda}$$

である。様々な位相の組み合わせについて ΔE を測定すれば、上の関係を使って、 $\varepsilon_0 \alpha_0$, $\varepsilon_0 \beta_0$, $\varepsilon_0 \gamma_0$ を求めることができる。 ΔE として半値幅を取れば、加速部におけるバンチの長さ l (半値全幅) は $l = 2\sqrt{\varepsilon_0 \beta_0}$ なる関係から求められる。FELビームラインにおけるTwissパラメータは2本目及び3本目の加速管を通過する際の変換行列と、運動量アナライザを通過する際の変換行列

$$\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ g(\theta, \Delta\theta) & 1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 1 & \frac{2\rho(s - \sin s)}{E_M} \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

を使って求めることができる。ここで E_M は電子ビームの中心エネルギー、 ρ, s は運動量アナライザーを構成する偏向電磁石の軌道半径と偏向角で、それぞれ550mmと $\pi/4$ である。

測定は、加速エネルギー100MeV、FELの発振波長1.5 μm で運転中に行った。測定結果を図5に示す。

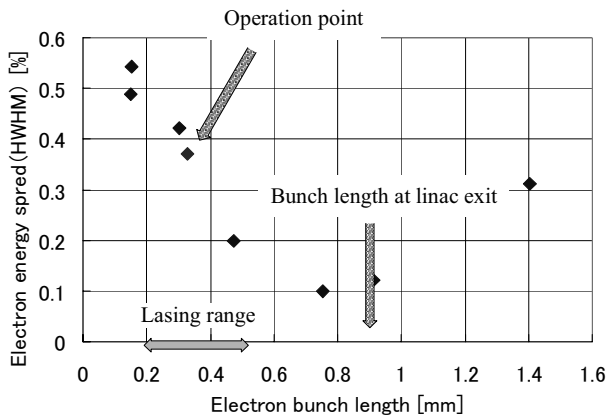


図5. 加速エネルギー100MeV、FELの発振波長1.5 μm で運転中に測定したスペクトルのエネルギー幅とバンチ長の関係。加速器直線部において約0.9mmだったバンチ長が最短0.1mm程度に圧縮されている。

この時、図からわかるように、加速器直線部において約0.9mmだったバンチ長が最短0.1mm程度まで圧縮される。ただし、発振の条件を満足するのは0.2~0.5mmの間で、もっとも強く発振したのは0.3mm程度の時であった。バンチ長が0.2mm以下になると、ピーク電流は大きくなるが、エネルギー幅が広くなり、逆に、エネルギー幅が最小になる付近ではバンチ長が長くなり、発振の条件を満足しなくなる。

5. FELパルス長の測定^[2]

FEL光パルス長の計測は、そのコヒーレンス性を利用して干渉計による自己相関波形の測定によりなされる。干渉計は図6に示すようなマイケルソンの干渉計で、可動全反射ミラーの位置の移動によって増減する光検出器の位置の光量を測定するものである。可動ミラーは移動ステージに取り付けられている。この測定は40~50nmステップの移動量で行った。自己相関波形の例を図7に示す。図の横軸は可動ミラーの相対的な位置である。自己相関波形の空間的な長さははその形成の仕方からわかるように、光パルス長の2倍の長さを持つ。一方、光は全反射ミラーの所で折り返すわけであるから、軌道長の変化はミラーの移動量の2倍になる。従って、可動ミラーの位置を横軸にとった自己相関波形の長さははその目盛で読んだ光パルス長の長さに相当する。この図か

ら光パルスの長さは半値全幅でおよそ60 μm と見積もられる。

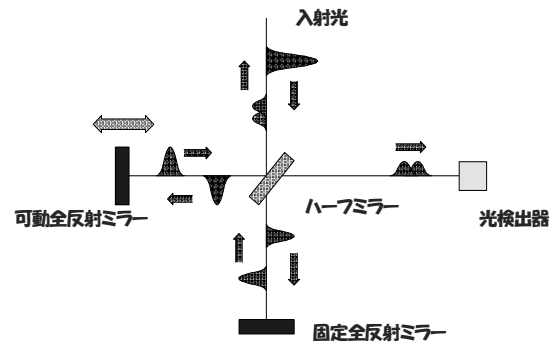


図6 実験に使用したマイケルソン干渉計の構成図。

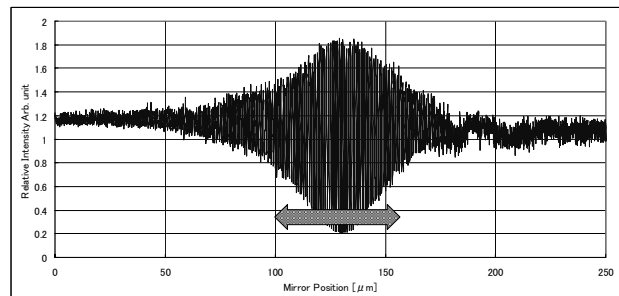


図7 波長1.5 μm のFEL光の自己相関波形、光パルスの半値幅 (FWHM) はこの図からおよそ60 μm と見積もられる。

6. まとめ

電子ビームのパルス長を2本の加速管の加速位相の組み合わせに対応するエネルギースペクトルの測定から求めた。FELのパルス長は干渉計による自己相関波形から求めた。まとめると以下の表のようになる。

電子ビーム	パルス長	加速器出口	~0.9 mm
	FELビームライン (発振時)		~0.3 mm
FEL光	パルス長		~0.06mm

これらの結果から、バンチ圧縮機構は正しく機能していることが確認された。

参考文献

- [1] K.Yokoyama et al., MEASUREMENT OF ELECTRON BUNCH LENGTH AT LEBRA, Proc. of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and The 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, Funabashi, August.4-6, 2004, p602
- [2] K.Hayakawa et al., Measurement of the pulse length of the FEL nonlinear harmonics radiation, Proc. of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and The 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, Funabashi, August.4-6, 2004, p649.

LEBRAにおける真空度モニタシステムの整備

野上 杏子¹、佐藤 勇¹、早川 建¹、田中 俊成¹、早川 恭史¹、石渡 謙一郎²、中尾 圭佐²

¹ 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

〒 274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

² 日本大学大学院理工学研究科量子理工学専攻

〒 101-8308 東京都千代田区神田駿河台 1-8-14

1 はじめに

加速器では、電子ビームの通る経路を真空に保つことが重要である。なぜなら、電子ビームの軌道に気体分子が残っていると、ビームが残留気体分子に衝突してその一部が失われるからである。そのため、このような残留気体分子との衝突による電子ビーム損失が起こらないように加速器内を高真空に保つ必要がある。通常の加速器では、 10^{-6} Torr 程度の真空度が必要であるが、数時間にわたってビームを安定に出し続けるにはそれ以上の真空度が要求される。また、経験的に加速器内で何かトラブルが起こった場合、真空度が悪化することがわかっている。つまり、真空度を常にモニタすることは、加速器内でのトラブルの兆候を知るためのひとつの方法であると考えられる。

日本大学電子線利用研究施設 (Laboratory for Electron Beam Research and Application: LEBRA) においてもイオンポンプを用いて、加速管および自由電子レーザー、パラメトリック X 線ビームラインを高真空に保っている。しかし LEBRA では、いままで真空度を記録しているものは、電子銃とクライストロン窓下流側に設置されたイオンポンプの真空度のみで、そのほかは、定期的に運転開始時に各箇所のイオンポンプの真空度を運転日誌に記録している程度であった。そこで、LEBRA の加速器各所に設置されているイオンポンプの真空度を常時モニタでき、さらに記録しておくようなシステムが必要とされる。そこで、今回そのシステムの整備をおこなった。

2 真空度モニタシステム

図 1 にデータ取得の流れを示した。イオンポンプ電源は、制御室またはモジュレータ室に設置されており、それぞれの record out の出力電圧値をアナログ回路で増幅した後、A/D 変換してパソコンに取り込み真空度に換算している。図 2 に LEBRA の構成図と各所に設置された

イオンポンプを示した。アナログ回路部は、それぞれ 2 種類のイオンポンプ電源に対応した回路を製作した。電子銃、加速管などに設置されているイオンポンプを制御している ULVAC 製の電源は、record out の出力電圧値にノイズとして 50 Hz の AC 成分あり、作動増幅回路を用いてそれを取り除いている。また、ANELVA 製のイオンポンプ電源の出力電圧値は、反転増幅回路を用いて増幅している。ここで、クライストロン窓下流側に設置されているイオンポンプの真空度は、くり返し 2 Hz で運転しているためにそれによる時間変化を含んでいる。そこで、ANELVA 製のイオンポンプ電源のうちクライストロン窓下流側のものは、運転によっては最大繰返し 12.5 Hz ではあるが 10 Hz 以上の高周波数を取り除くためのローパスフィルタを通して電圧値を増幅している。

A/D 変換器の分解能は 12bit で、サンプリングレートが最大 100 kHz のものを使用した。

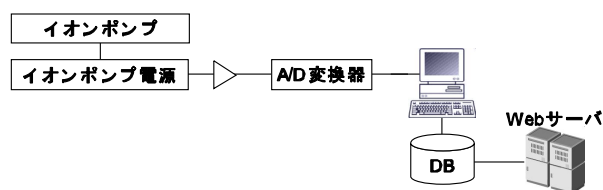


図 1: データ取得の流れ

3 測定結果

図 3(a) に、電子銃周辺の真空度の時間変化を示した。これより、加速管に取り付けられたゲートバルブの開閉時に、真空度が大きく変化していることがわかる。データは 0.1 秒間隔で取得しているが、通常時は 1 秒間隔でデータベースに記録している。真空度の急激な悪化が生じた場合は、0.1 秒間隔でデータを記録するようにした。

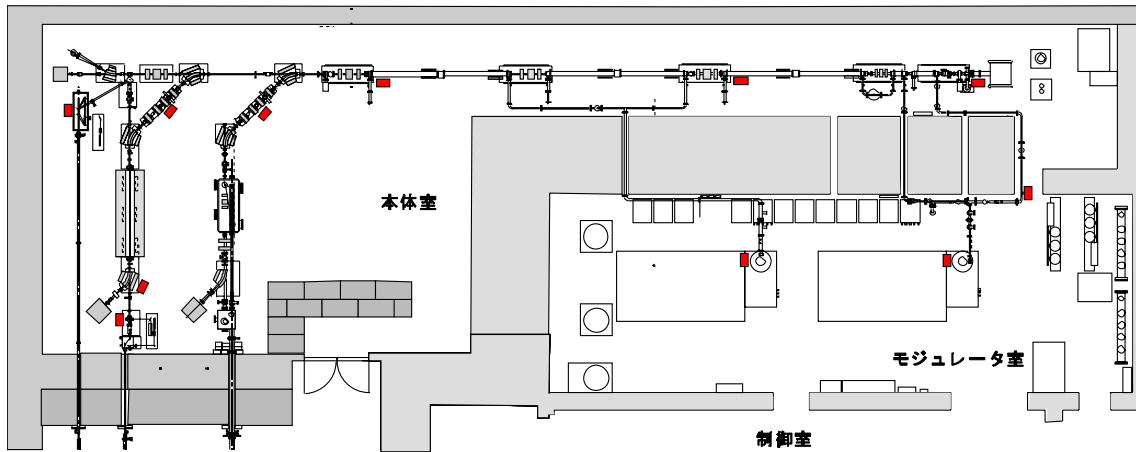


図 2: LEBRA の構成図。赤で示された箇所にはイオンポンプが設置されている。

実際、図 3(b) に電子銃で真空度が悪化したときの 20 秒間のデータを示した。これから、急激な真空度の変化が起こったのちデータを 0.1 秒間隔で記録し、さらに、真空度の変化が緩やかになると再び 1 秒間隔でデータを記録していることがわかる。この閾値は可変でそれぞれの箇所に対応して入力できるようにしてある。

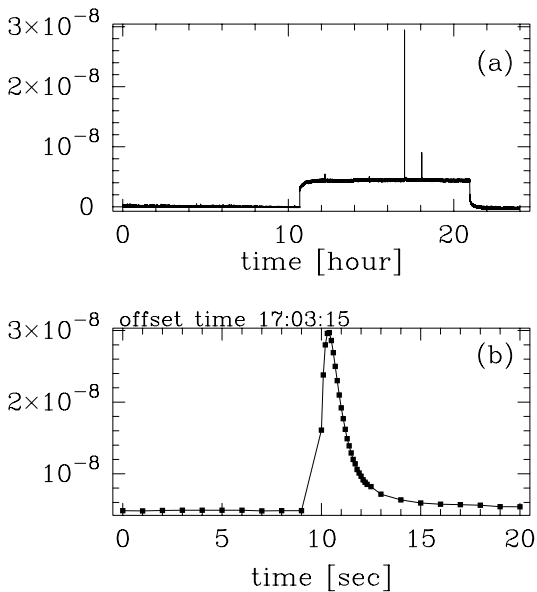


図 3: 2005 年 2 月 10 日の電子銃周辺の真空度の時間変化。(a)1 日分、(b) 真空が悪化したときのデータ取得例

4 まとめと今後の課題

LEBRA に設置されているイオンポンプのうち、加速器および自由電子レーザービームラインのイオンポンプの真空度を常時モニタするシステムを整備した。その真空

度は、イオンポンプ電源の record out の出力電圧値をアナログ回路で増幅し A/D 変換したものをを用いて換算した。また、通常 1 秒間隔でデータを記録しているが、真空度の急激な変化が起こったときには 0.1 秒間隔でデータを記録するようになっている。さらに真空度のデータは、データベースに記録し、LEBRA のプライベートネットワーク内から Web ブラウザで、グラフまたはカンマ区切りのテキスト形式で取得できるようにした。

今後の課題としては、パラメトリック X 線ビームラインおよびユーザに供給している自由電子レーザーラインに設置されたイオンポンプの真空度もモニタできるように整備する必要がある。使用している A/D 変換器は外部トリガをもっているので、運転周波数に同期してデータを取得することも可能である。現在、モニタしているイオンポンプ電源のレンジを切り替えると、record out の出力電圧値がかわってしまい、これをプログラム側で判断できないため正しい真空度に換算できない。そのため、レンジを切り替えないことで対応しているが、真空度によっては record out の電圧値が最大になってしまうのでこのままでは常時モニタとして使用できない。そこで、レンジを切り替えることなく、かつ、出力電圧が最大値を越えることなく真空度を常時モニタできるようにする必要がある。そのためには、現在使用しているアナログ回路では、イオンポンプとグランドレベルが違うので修正しなければならない。また、急激な真空度の悪化が起こったとき、つまり加速器内でのトラブルの兆候があったときは、アラームなどで警告するプログラムを作成する予定である。

日本大学電子線利用研究施設における放射線監視の現状

中尾圭佐^{A)} 佐藤勇^{B)} 早川建^{B)} 田中俊成^{B)} 早川恭史^{B)}

^{A)} 日本大学大学院理工学研究科量子理工学専攻

^{B)} 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

1 はじめに

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA) の加速器は、放射線発生装置であり施設内及び環境中の放射線量を定期的に測定する義務をさせられている。そこで LEBRA では、環境放射線と、加速器本体に隣接した大実験室の放射線量を常時監視するシステムを構築した。本稿ではこの放射線監視システムの概要及び観測した放射線量について報告する。

2 放射線常時監視システム

2.1 放射線検出器

1995年3月に環境放射線監視装置が整備された。環境放射線検出器は、 γ 線検出装置として NaI(Tl) シンチレータが、中性子線検出装置として BF₃ 検出器が、それぞれ2台ずつ屋外に設置されている。放射線検出器の配置図を図1および2に示す。敷地の境界付近に NaI(Tl)、BF₃ がそれぞれ設置され、残りの NaI(Tl) はビームダンプ室の上に、BF₃ は加速器本体室の上に設置されている。

また物理実験 B 棟建屋内には、制御室およびモジュラータ室にイオンチェンバが、大実験室には γ 線監視装置が設置されている。

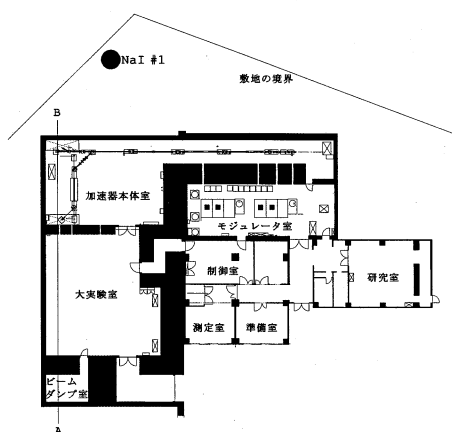


図 1: 放射線検出器配置図 (平面図)

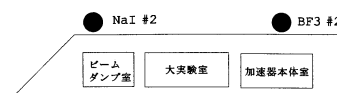


図 2: 放射線検出器配置図 (図 1 の直線 AB の断面)

2.2 システム構成

本システムの構成を図3に示す。NaI(Tl) および BF₃ 検出器で検出された信号は、プリアンプで増幅され Single Channel Analyzer で波高分析されスケーラカウンタでカウントされる。一分毎の計数がデータベースに記録される。大実験室の γ 線モニタは、アロカ社製の製品で、測定値をペンレコーダで記録するもので、測定値を外部に出力する端子が装備されていない。そこでペンレコーダの入力端子と A/D コンバータの入力端子を並列に接続し、 γ 線量を取得することにした。取得した放射線量は、データベースに記録するだけでなく、登録されたネットワーク上のコンピュータに送信している。制御室では、送信されたデータを表示し運転に利用している。データベースに記録された履歴は、LEBRA プライベートネットワーク内ならどこでも、Web ブラウザで時間変化のグラフまたはカンマ区切りテキスト形式で取得することができる。動作イメージを図4に示す。データベースエンジンには PostgreSQL[1] を、Web サーバには Apache[2] を使用している。

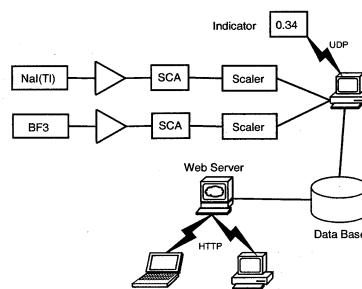


図 3: システム構成図

3 測定値

2005年2月1日の大実験室 γ 線量および環境放射線計数の時間変化を、それぞれ図5、図6に示す。この日の大実験室の放射線量の最大値は $2.20\mu\text{Sv/h}$ で、最小値は $0.33\mu\text{Sv/h}$ であった。運転日誌によると、この日は10時12分から14時48分までビーム加速を行い、12時16分から13時5分までと、13時10分から13時26までの間ビーム加速を停止している。図4に示す大実験室の放射線量は、ビーム加速の有無に連動して変化していることがわかる。

屋外の γ 線計数の測定値は、一分間あたり最大 2099 個、最小 1541 個で、中性子は最大 8 個、最小 0 個であった。 γ 線計数の測定結果に見られる長周期の変動は、気温の変化による計数率特性の変化が原因であると考えられる。

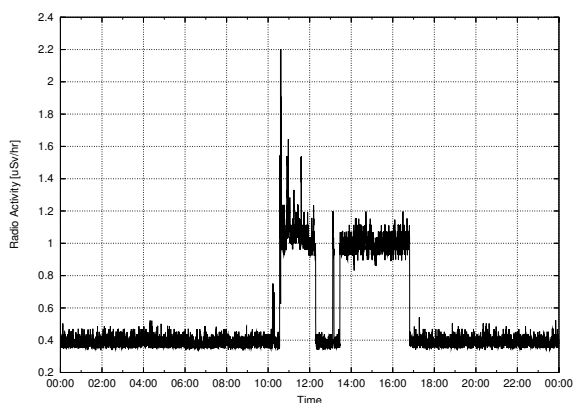


図5 大実験室放射線量の時間変化

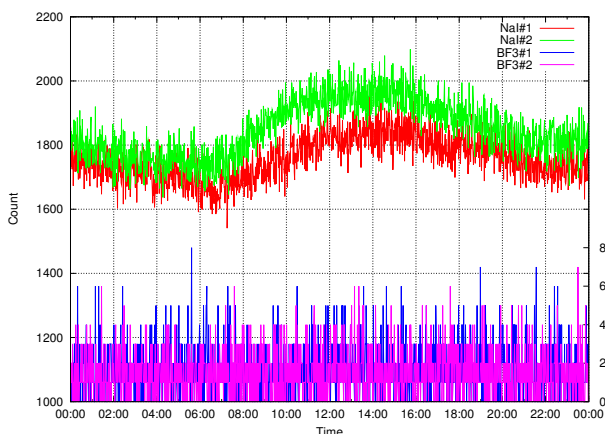


図6 環境放射線計数の時間変化 (赤:NaI#1 緑:NaI#2 青:BF3#1 紫:BF3#2)

4 ビーム加速による γ 線放出

加速ビームによって生成された γ 線が、環境中に放出されている量を見積もるために、ゲート回路を用いて、

敷地の境界に設置されている NaI 検出器#1 の出力から、ビームに同期した γ 線粒子の数を検出できるようにした。

ビーム停止中における、1分あたりの γ 粒子を N_0 とすると、ゲートを通過することができる計数は、1分あたり $N_0 d$ である。ここで d はデューティファクタである。この N_0 とビーム加速中におけるゲートを通過した、ビームに同期した計数 N_{syn} と比較することで、加速ビームによる γ 線粒子の計数を見積もることができる。

2005年1月12日から2月28日までのデータを用いると、1分あたり平均 $N_0 = 1734 \pm 41$ 、 $N_{syn} = 0.07 \pm 0.01$ で、ビーム条件は、エネルギー 76.4~100MeV、ビーム電流 100~120mA であった。

ゲートに入力したトリガは、パルス幅 20usec、繰り返し 2Hz であるから、 $N_0 d = 0.069 \pm 0.002$ となる。 $N_{syn} - N_0 d = 0.001 \pm 0.001$ が、毎分あたりビーム加速によって増加した計数である。これは N_0 の誤差の範囲内であり、ビーム加速による γ 線の増加は無視することができるといえる。

5 まとめ

環境放射線および大実験室の γ 線量を常時監視システムを構築した。計測したデータはデータベースに蓄積され、Web ブラウザを用いて履歴を閲覧することができる。これにより大実験室の γ 線量は、ビーム加速の有無によって大きく変動することがわかった。また敷地の境界の NaI 検出器から得られた信号に、加速ビームに同期したゲート回路を入力することで、ビーム加速による γ 粒子計数の増加を見積もったところ、有意な差が認められなかった。

参考文献

- [1] PostgreSQL Homepage
<http://www.postgresql.org/>
- [2] Apache HTTPD Project
<http://httpd.apache.org/>

PXRを利用したアプリケーションの整備と現状

森 啓¹⁾, 早川恭史¹⁾, 佐藤勇¹⁾, 早川 建¹⁾, 田中俊成¹⁾, 桑田隆生¹⁾,
野上杏子¹⁾, 境武志¹⁾, 城所明生²⁾, 寒河江登志朗³⁾, 高橋由美子⁴⁾

1) 日本大学量子科学研究所電子線利用施設

2) 日本大学大学院量子科学専攻

3) 日本大学松戸歯学部

4) 日本大学理工学部物理学科

1. 緒言

日本大学電子線利用研究施設(LEBRA)では2004年4月14日のパラメトリックX線放射(PXR)のFirst Light確認以降、X線出力の向上と共に利用装置の拡充とエネルギー分布の測定技術の充実を図ってきた。

利用装置としては大きく分けてイメージング装置と回折装置に分けられる。イメージングは早くより充実が図られ、初期のポラロイドフィルムを用いた撮影からX線用CCD、X線専用ビデオカメラを導入した。また、来年度以降に向けてイメージングプレート(IP)のテストやアバランジェホトダイオード(APD)の導入の検討を進めている。

回折装置としては一次元回折装置、高次回折装置、生体高分子構造回折装置及びそれに用いる集光系が準備されている。

2. 利用実績

調整実験なども含む利用実績は表1の通りである。初期から整備の進んでいたイメージングのウェイトが高い。なお、この中には含まれていないがポラロイドフィルムは乳剤中のBrの吸収端を利用して、発生したPXRのエネルギー測定に用いられている。

表.1 PXRの利用実績

利用装置		利用日数
イメージング	ポラロイド	13
	X線用CCD	17
	IP	9
一次元回折装置		13
高次回折装置		6
集光系アライメント		8

3. イメージング

3.1 イメージング装置

主に3種類の装置を使い分けている。一番初期からのデバイスとしてポラロイドフィルム(ポラロイド57、ASA3000、視野4×5inch)がある。その後X線用ビデオカメラ(浜松ホトニクス製XCUBE H8480、空間分解能50 μ m平方、視野 Φ 25mm)とX線用CCD(浜松ホトニクス製 C4880、空間分解能24 μ m平方、視野12mm平方)を順次導入し整備してきた。

現在、ダイナミックレンジが狭いが全体像の見えるポラロイドフィルムは全体の配置の確認に、視野が狭いがダイナミックレンジが広く分解能の高いX線CCDは細かい撮影に用いている。またX線用ビデオカメラは集光系のアライメントなどの確認作業に用いている。また、来年以降の導入をめざし、Denoptecs製及び吉田製作所製のイメージングプレート(IP)のテストも行った。

将来的にはダイナミックレンジ及び視野が広く分解能の高いIPと視野が狭いが空間分解能が6 μ m平方と言われているAPDの導入を考えており、撮影の目的に合わせて有効なイメージング装置を使えるようにすることを目指している。

3.2 PXRを用いたイメージングの特徴

PXRによるイメージングの特徴としては以下の4点が上げられる。

a) ビームの広がり小さい

水平方向：46[μ rad]、垂直方向240[μ rad]の広がり角しかないため、ボケの少ない細かいイメージングが可能である。

b) 位相がそろっている

位相コントラスト、回折イメージング、エッジエフェクトを用いたイメージングなどを行うことが可能である。

c) エネルギーが可変である

2波長によるイメージング(特にK吸収端を挟んだ)による物質の同定が可能である。

d) 水平方向にエネルギー勾配を持っている

K吸収端やL吸収端の測定及びイメージングによるXAFS(XANES&EXAFS)解析を行うことが可能である。特にEXAFSをワンショットで取れる可能性を有して

おり、化学反応の時間的な変化を追いかける可能性も有している。

4. 回折装置と集光系の現状

回折装置としては1次元回折装置、高次構造X線回折装置及び微小部X線回折装置が用意されている。

4.1 1次元回折装置

PXRは非常に広がり角が小さいのでスリットを置かないでも利用可能なほど高分解能である。Si(111)を用いたときの半値幅は $1/1000^\circ$ であった。

反射させる向きによる影響が有り格子係数がSi(111)に近い結晶では強度が強く、角度幅の狭いピークをとる特徴がある。問題点としては電離箱をdetectorに用いているため感度が悪いこと、及びステージの角度分解能が $1/1000^\circ$ しか無いことが上げられる。

4.2 高次構造X線回折装置

現在調整中である。X線の透過散乱による回折像より結晶解析を行う装置であり、PXRの場合エネルギーがそろっており広がりが少なくシャープな像が獲られると考えられる。調整に苦労している問題点としてはPXRの発生以前の設計でPXRの線の特徴にあった設計がなされてなく、調整が困難なことが上げられ、調整機構の再検討が必要と考えている。

4.3 微小部X線回折装置

X線の散乱による回折像を半円柱状のIPで測定する装置。PXRの場合シャープな像が獲られると考えられるが未だ調整にいたっていない。現状で考えられる問題点としては高次構造X線回折装置と同様PXRの発生以前の設計でPXRの線の特徴にあった設計がなされていない調整が困難なことが上げられる。

4.4 集光系の現状

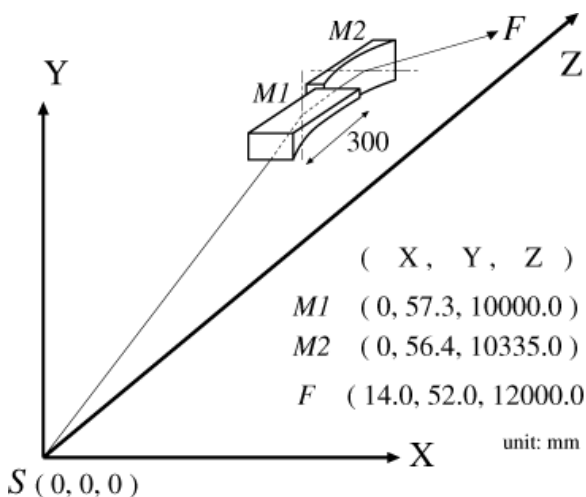


Fig.1 集光光学系の設計 (K-B光学系)

PXRの出力強度分布がドーナツ型をしているためビーム中心を用いることが不可能であった。よって、水平方向はビーム中心、垂直方向は中心からずれたところを使用することとし、2枚のRhコートSi楕円鏡を用いたKirkpatrick-Baez (K-B) 光学系を設計した(Fig. 1)。

ガイドレーザによるアライメントの後実際に調整したところ、水平方向で $100\mu\text{m}$ 、垂直方向で $500\mu\text{m}$ に集光(設計値は双方ビームサイズの $1/5$)。そのイメージング結果をFig. 2に示す。垂直方向は中心でないため、発散角度がありアライメントが難しいこと、及び偏光面が垂直方向であり現在対応を検討している。

5. エネルギーの測定及びX線の検出

初期に於いて発生したPXRの特性はシミュレーションで導出された値に頼っており、実際にエネルギーの測定を行いキャリブレーションすると共に、どの程度の光子数が発生しているかを知る必要がある。

5.1 エネルギーのキャリブレーション

均質な薄膜素材(主にBrを含有するポラロイドフィルム)のイメージングを行い、その吸収端のエネルギーから推測している。これはPXRのニアなエネルギー広がりを利用した特徴的な方法といえる。現在発生している7keVから20keVの間では、K吸収端(FeからMo)、L吸収端(EuからFm)を用いることが可能であると言える。イメージングで求めた吸収端の位置を基準に、目的の波長になるようにターゲット結晶の角度を調整している。

5.2 光子数の測定

PXRの出力は計算上 $104[\text{個}/\text{mm}^2]$ オーダーと見積もられるがバースト的にパルスで発生する線源のため測定できていない。SSDではパイルアップが、電離

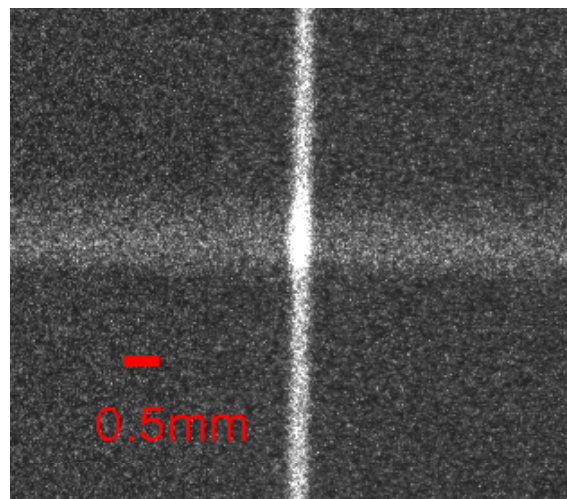


Fig.2 X線CCDによる集光点の撮影結果

箱ではバックグラウンドやデッドスペースの問題があり現在検討中である。そのため、X線の出力は電離箱などの出力信号による相対値での比較しか行えていない。

5.3 X線検出器

主に3種類の検出器をその目的に対して使い分けられている。

a) イオンチェンバー

X線の透過による封入気体の電離作用を利用する検出器である。電離して発生した電荷を高電圧で捕集してその電流値の大きさを線量を推定する。X線の透過距離の長いもの(高エネルギーのX線でも電離が十分生じるのでバックグラウンドの測定に有効)と、短いもの(高エネルギーでは素通りしてしまい効率よく電離しないためPXRのような低エネルギーの測定に有利)を組み合わせることで線源の調整などに幅広く利用している。

b) NaIシンチレーター

X線照射によるNaIの蛍光発光を光電子倍增管で計測する検出器である。次元回折装置などで光子数の測定に用いる予定であるがバックグラウンドの中性子による光電子倍增管電極との反応やカウンターの速度不足のため現在改良中である。低エネルギーのX線に対しても感度はよいがエネルギー分解能は悪い。

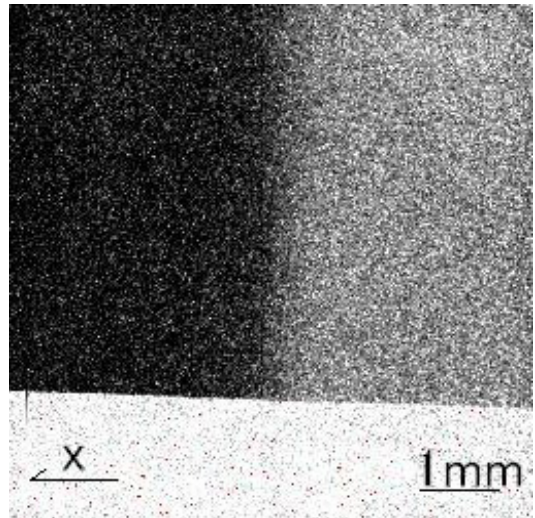
c) SSD

pinSi(測定エネルギー領域: $\sim 30\text{keV}$)とCdZnTe(測定エネルギー領域: $10\text{keV} \sim 1\text{MeV}$)の2種類がある。

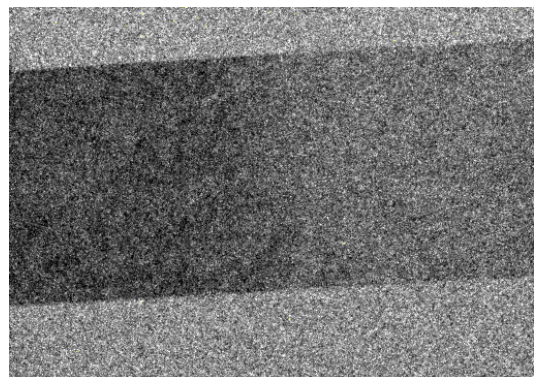
X線照射による半導体の電離作用を利用するもので、PXRのエネルギー領域における感度は非常に良く光子数の測定に向くが、バースト的な発振にはパイルアップの問題があり光子数の測定は現段階では出来ていない。

6. 結言

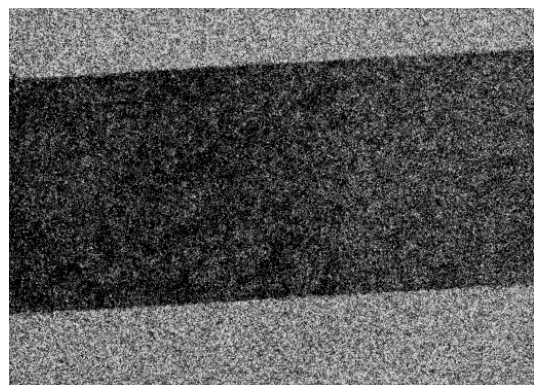
First Lightの確認から約10ヶ月の間に利用者の要望に応えながら急ピッチでデバイスを設置・調整してきた結果、イメージングにおいてはそれなりの成果が出るようになった。また集光系を用いない1次元回折装置でも結果が出始めた。しかし、集光系及び集光系を用いるX線回折装置においては調整中である。中にはアライメントの設計を大幅に変えないといけないものもあり今後大きな検討課題となっている。また、エネルギーの測定は順調なもの光子数の測定は困難を呈しており相対値での比較にとどまっており、こちらの検討も急がれている。



(a) 銅のK吸収端(8.98keV)撮影像
横幅のエネルギー差は50eV



(b) 金のL3吸収端(11.918keV)撮影像
横幅のエネルギー差は118eV



(c) 金のL2吸収端(13.8keV)撮影像
横幅のエネルギー差は159eV

Fig.3 各種金属の吸収端の撮影例

LEBRA-PXR を使った X 線回折像について
Application of LEBRA-PXR to Diffraction Analysis of Minerals
- Influence of Crystallinity -

寒河江登志朗¹、早川 徹²、岡田 裕之³、中田 浩史⁴、早川 恭史⁵、田中 俊成⁵、
早川 建⁵、森 啓⁵、桑田 隆生⁵、野上 杏子⁵、境 武志⁵、佐藤 勇⁵

Toshiro Sakae¹, Tohru Hayakawa², Hiroyuki Okada³, Hiroshi Nakada⁴, Yasushi Hayakawa⁵, Toshinari Tanaka⁵, Ken Hayakawa⁵, Akira Mori⁵, Takao Kuwada⁵, Kyoko Nogami⁵, Takeshi Sakai⁵, Isamu Sato⁵ Departments of ¹Anatomy, ²Dental Materials, ³Oral Pathology, ⁴Dental Materials, ²Dental Prosthesis, Nihon University School of Dentistry at Matsudo, Chiba, 271-8587, Japan

⁵LEBRA, Laboratory for Electron Beam Research and Application, Institute of Quantum Science, Nihon University, Narashino-dai, Funabashi, 274-8501, Japan

Abstract

Parametric X-ray, PXR, is a new type of X-ray which generated by crystal-electron interaction. LEBRA at Nihon University generates PXR by the double-crystal system using electrons from a 100 MeV class LINAC. LEBRA-PXR has some potentials such as wavelength tunable, ultra-high bright X-ray with macro-pulse/micro-pulse structure. At present, LEBRA-PXR has an energy-dispersion in the horizontal axis, assumed to be 2 % in the experimental window, but can be used as monochromatic X-ray for diffraction use. Application of 11 KeV, or 1.1273 Å, LEBRA-PXR to diffraction experiment was successfully carried out.

Perfect, or highly crystallized, crystal such as graphite and silicon crystals showed the sharp diffraction peaks. Mineral quartz and apatite clear transparent crystals also showed the sharp peaks. Mineral calcite clear transparent crystal, however, did not show the diffraction peaks. This might be due to be the microscopically low-perfection of the calcite which showed many cleavages though transparent.

This study showed that LEBRA-PXR is very sensitive for crystallinity of the material in interest and therefore expected to be a useful tool for crystal-perfection analysis.

Introduction

Parametric X-ray, PXR, was first discovered at TOMSK in 1985. PXR is emitted by relativistic charged particle passing through a crystal. Linear electron accelerators, LINACs, are usually used to generate PXR. They can provide short, high-current, electron beam pulses. Such electron beam can generate short PXR pulses at a power of about MW per steradian. LEBRA at Nihon University generates PXR by the

double-crystal system using electrons from a 100 MeV class LINAC

This paper is the first report on the PXR diffractions from the crystals in interest. And we report in this paper that PXR diffraction is crystal-perfection sensitive and therefore expected to be a useful tool for crystal-perfection analysis.

Generation of LEBRA-PXR and X-ray Diffraction Counting System

The geometry and systematic constructions of LEBRA-PXR with the two-crystal system was described in the report by Hayakawa et al. in this issue (Fig. 1). The specifications of LEBRA-PXR were listed in Table 1. Using the LEBRA-PXR, X-ray diffraction counting system was built as shown in Figures.

Results and Discussion

LEBRA-PXR diffraction experiment was successfully carried out. A number of reports regarding to PXR has been published after Didenko et al. (1985) and Voroviev et al. (1985), almost all of these were dealing with production technique and theory of PXR. Among 32 reports dealing with PXR found by ISI CrossSearch, ISI, using the terms of parametric and x-ray, there was no report for diffraction application of PXR. In this context this study was the first report of diffraction application of PXR. In the preliminary study, it was empirically known that LEBRA-PXR diffraction was very sensitive to crystal perfection. Trial using a mineral mica large flat crystal did not show any trace of reflections, whilst mica was used to find the first X-ray diffraction phenomena by Bragg (1912) and then he developed a theory known as “Bragg reflection” (Bragg, 1913). This may be due to the layered structure of mica having usually macroscopically imperfection in that direction and also flexibility of mica causing the crystal could be bent.

Using natural crystal surface of mineral crystal, the diffraction peaks could be traced for the mineral “Quartz” and mineral “Fluorapatite”, but failed to trace for mineral “Calcite”. The reason for the no diffraction peaks for mineral “Calcite” might be due to the cleavages inside the crystal. Though macroscopically the mineral “Calcite” was clear and transparent, there should be plenty of cleavages from macroscopic to atomic scale inside the crystal as general features for calcite. These cleavages affect the diffraction peak profiles and then being the reason for making no appreciable diffraction.

X-ray diffraction has been applied to analysis of Crystallinity of materials. In general, the peak profile or the full-width at half maximum, FWHM, are the good indicators for

degree of Crystallinity (Hammond and Hammond, 2001). In this study using LEBRA-PXR and q-scan mode, the observed diffraction intensities of the materials were not correlated to the expected intensities, especially for “Calcite” which did not show any diffraction at all. It may be useful in PXR diffraction study for Crystallinity analysis by measuring the peak intensity that is a kind of Crystallinity index (Alexander, 1979).

Trial using a silicon powder also failed to make diffraction. This fact indicated that LEBRA-PXR requires a macroscopically large and perfect crystal for diffraction analysis at present. We are developing a powder diffraction system using LEBRA-PXR. The diffraction intensities by LEBRA-PXR were very weak as shown in Table 2. This may be partly due to the ultra short pulse structure of the LEBRA-PXR; in the 20 ms 2 Hz macro pulse duration the electron bunch length was about 2 ps with 350 ps micro pulse cycle. This means the net radiation duration was only about 0.2 ms per 1 sec. In other words, LEBRA-PXR is a high brilliant short pulse X-ray source. This study showed LEBRA-PXR is a useful tool for diffraction analysis. The results in this study indicated that PXR diffraction study is able to carry out and is very sensitive for crystallinity of the material in interest and therefore expected to be a useful tool for crystal-perfection analysis.

Conclusion

LEBRA-PXR has some potentials such as wavelength tunable, ultra-high bright X-ray with macro-pulse/micro-pulse structure. At present, LEBRA-PXR has an energy-dispersion in the horizontal axis, assumed to be 2 %. Application of 11 KeV, or 1.1273 Å, LEBRA-PXR to diffraction experiment was successfully carried out.

Perfect, or highly crystallized, crystal such as graphite and silicon crystals showed the sharp diffraction peaks. Mineral quartz and apatite clear transparent crystals also showed the sharp peaks. Mineral calcite clear transparent crystal, however, did not show the diffraction peaks. This might be due to be the microscopically low-perfection of the calcite which showed many cleavages though transparent.

This study showed that LEBRA-PXR is very sensitive for crystallinity of the material in interest and therefore expected to be a useful tool for crystal-perfection analysis.

Acknowledgements

This study was carried out at LEBRA, Nihon University, with help of many staffs and assistances. The authors thank to all colleague in LEBRA. The authors also thank to Prof. R.Z. LeGeros, New York University, and Prof. I. Nakai, Tokyo University of

Science, for their helpful discussion. This study was supported by Academic Frontier Project at LEBRA, Nihon University and the Grant-in-Aid for Scientific Research from Nihon University (Sogo:04-019, TS).

Figures and Tables

Smart Generation of LEBRA-PXR by Two Crystals

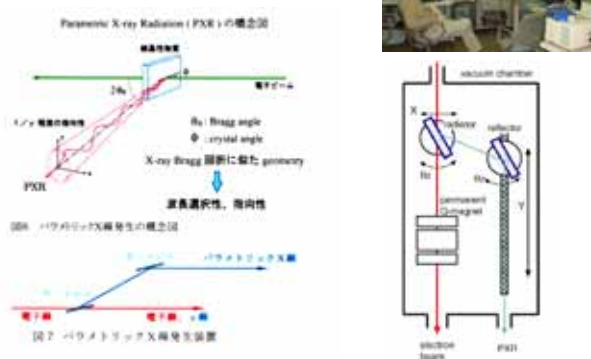


Fig. 1. Smart Generation of LEBRA-PXR by Two Crystals

Novel Recording System

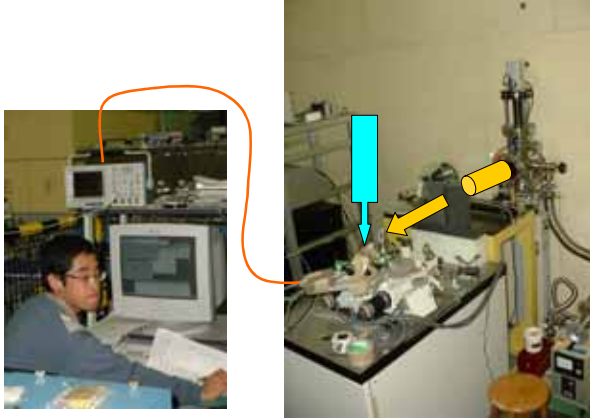


Fig. 2. Right: X-ray diffraction counting system. Left: Recording system.

Materials

Graphite, Quartz, Fluorapatite, Calcite

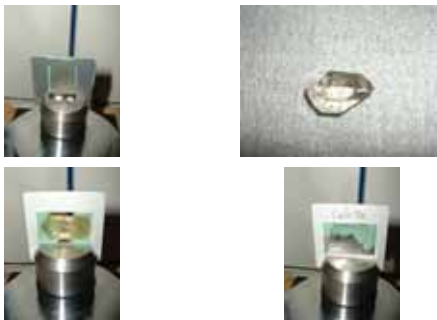


Fig. 3. Setting of the materials.

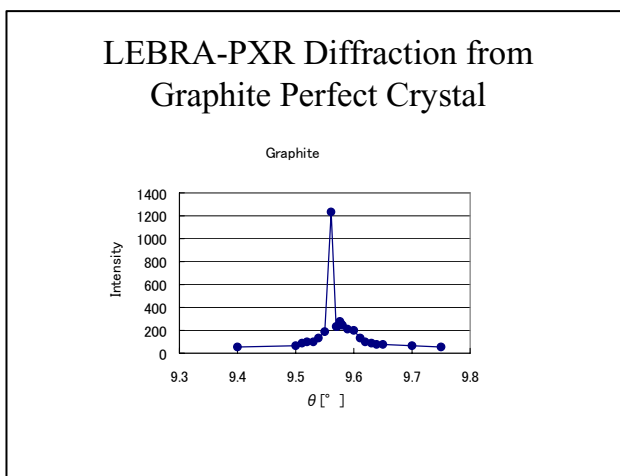


Fig. 4. LEBRA-PXR Diffraction Pattern for the Graphite Crystal.

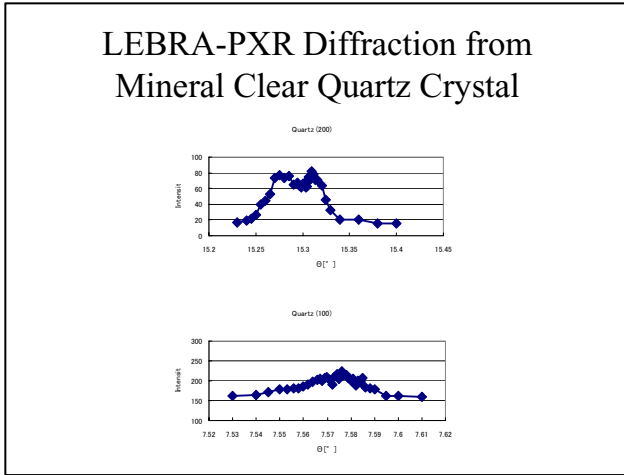


Fig. 5. LEBRA-PXR Diffraction Pattern for the Quartz Crystal.

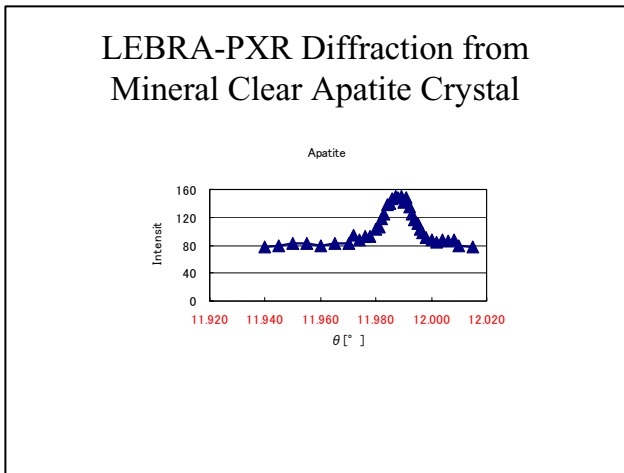


Fig. 6. LEBRA-PXR Diffraction Pattern for the Apatite Crystal.

Table 1. Specification of LEBRA-LINAC

Beam energy	50 – 125 MeV
Acceleration frequency	2856 MHz
DC gun voltage	-100 kV
Beam pulse duration	20 ns
Bunch length	<10 ps
Beam current	200 mA
Repetition rate	12.5 Hz
Average current	50 mA
Normalized emittance (rms)	<20 p mm mrad

Table 2. LEBRA-PXR Diffraction Data.

	Graphite	Quartz	Quartz	Fluorapatite	Calcite
Diffraction					
hkl	0 0 2	1 0 0	2 0 0	3 1 1	1 0 4
d-value	3.3756	4.2550	2.1277	2.1400	3.035
$2\theta_{\text{calc}}$	19.22	15.22	30.12	30.54	21.41
θ_{calc}	9.61	7.61	15.06	15.27	10.71
maximum θ_{obs}	9.55	7.575	15.3	15.3	n.d.
Intensity	1150	70	60	70	n.d.
Expected Intensity based on Graphite	1150	80	30	13	296
JCPDS card #	41-1487	46-1045		15-0876	05-0586
I/I ₀ (RIR)	7.78	3.41		1.5	2.0
I hkl /I ₀	100.0	16.0	6.0	6.0	100.0

パラメトリック X 線による多波長観測と画像解析

佐藤昌憲¹、渡邊雄一¹、鈴木 薫²、早川恭史³、森 啓³、佐藤 勇³

- 1) 駒澤大学医療健康科学部 東京都世田谷区駒沢 1-23-1
- 2) 日本大学理工学部 東京都千代田区神田駿河台 1-8-14
- 3) 日本大学量子科学研究所 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

目的

X 線の応用技術でもっとも重要な技術の一つに、X 線回折を利用して物質の原子・分子レベルでの構造解析がある。これが可能なのは X 線の波長が物質中の原子間隔と同程度だからである。今回使用した X 線源はパラメトリック X 線(以下 PXR)で、波長は 1.7\AA から 6.2\AA 程度の領域の電磁波を発生することができ、単色で指向性があり、X 線構造解析に有力な X 線源である。そこで、我々はマンモ用フィルムとイメージングプレート(以下 IP)を用いて PXR ラジオグラフィの画像取得条件の算出と多波長観測を試み、基礎的なデータが得られたので報告する。

実験方法

PXR は、自由電子レーザー用の電子線(125MeV)をベースとしている。PXR ビームラインは、真空層に収められた 2 台のゴニオメータで制御される 2 つの Si(111)単結晶で構成され、その Bragg 角を変えることで連続的に X 線エネルギーを 7keV から 20keV まで変えることができる。[1, 2]

PXR の X 線は、パルス幅が $20\mu\text{sec}$ で繰り返し照射ができるパルス X 線源である。今回は、X 線エネルギーが 20keV における 1 パルス当りの線量は蛍光ガラス線量計(FGD-1000)を用いて測定した。次にマンモ用 X 線フィルムシステムを用いて、 20keV におけるアクリルステップを撮影し、露光量と写真濃度の特性曲線を測定した。さらに、マイクロデンシトメータにより画像の鮮鋭度を求め画像取得条件を確定した。また、IP についても、同様の実験を行い画像取得の最適条件を求めた。

次に、多波長観測は IP を用い PXR ラジオグラフィによって、試料の K 吸収端および L₃ 吸収端のイメー

ジングを試みた。使用した試料は X 線用フィルタで、 Y_2O_3 、 Pb_3O_4 、 Gd_2O_3 の 3 種類である。その吸収端のイメージングにより X 線吸収微細構造 (以下 XAFS) が直接観測される可能性を求めた。

結果

1. 蛍光ガラス線量計による線量評価

PXR の照射野は、軟 X 線とわずかであるが速中性子による γ 線とが混在した場である。また、X 線のパルス幅は $20\mu\text{sec}$ で、繰り返し照射の周波数は 2Hz である。今回、使用した蛍光ガラス素子(GD-352M, 千代田テクノル製)は、低エネルギー X 線補正のために Sn フィルタを使用し、照射条件の X 線エネルギーは 20keV で照射時間は 15 分、20 分、30 分で測定した。実験結果より 1 パルス ($20\mu\text{sec}$) 当たりの吸収線量は、外挿法により約 $1.25\mu\text{Gy}$ の結果が得られた。

2. Ar ガス電離箱によるフィルムと IP の X 線吸収

画像取得の検出器は、鮮鋭度の高いマンモ用フィルムと増感紙(AD-MAHC, AD MAMO FINE、富士フィルム製)システムと IP(MS2525, 富士フィルム製)を用い、X 線エネルギーが 20keV における X 線吸収特性を求めた。図 1 にはフィルムと IP における X 線吸収を、2 台の Ar ガス電離箱により 1 パルス当たりの X 線吸収量をパルス波形で示している。

1 台目の電離箱は軟 X 線測定用で、2 台目の電離箱は高エネルギーの γ 線測定用である。PXR の X 線出力は 1.93×10^{-4} [Vsec]、フィルムシステム透過後の X 線出力は 1.48×10^{-4} [Vsec]、IP 透過後の X 線出力は 1.27×10^{-4} [Vsec] であった。したがって、マンモ用フィルムシステムでは約 23.3% の X 線吸収が画像

に寄与している。また、IPでの画像では約 33.8%の X線吸収であった。さらに、 γ 線の吸収は、フィルムとIPともに差は無くほとんど画像形成に寄与していない事がわかった。

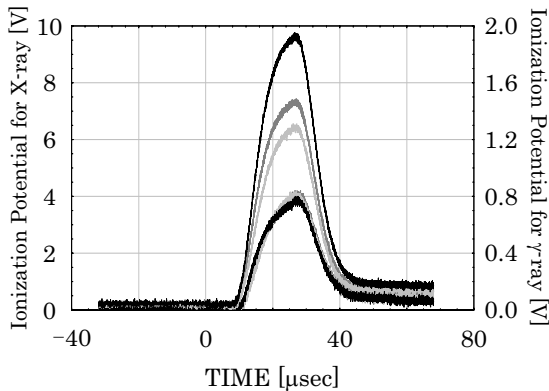


図1 X線エネルギー20keVにおけるPXRのX線出力波形。上の波形から①X線出力波、②フィルム吸収波形、③IPの吸収波形、④⑤ γ 線の出力波形

3. マンモ用フィルムによる画像解析

マンモ用フィルムシステムは、増感紙(AD MAMMO FINE、富士フィルム製)との組み合わせで使用される。このシステムでは鮮鋭度を高めるためにフィルムの下に増感紙が設置されている。

フィルムの特性曲線から濃度の直線性は濃度 1.0 から 3.0 までの範囲である。その条件で撮影するためには、1 時間以上の照射時間が必要であった。これは PXR がパルス X 線照射のためフィルムの濃度の低下を示した。これは間欠効果によるものである。この原因は、パルス照射のために光化学反応の効率が一定でなく、生成する銀の量は露光量に比例しないからである。図2には、矩形波チャートによるプロファイルを示した。アパーチャが $50 \times 50 \mu\text{m}$ のマイクロデンシトメータにより測定した。

その結果をコルトマンの補正したのが正弦波レスポンス関数 (MTF) で図3に示した。画像取得システム全体の鮮鋭度(MTF)は、画像のシャープさの程度を表し、画質特性の一つである。フィルム自体の鮮鋭度と比較してみるとまだまだ改善する余地がある。

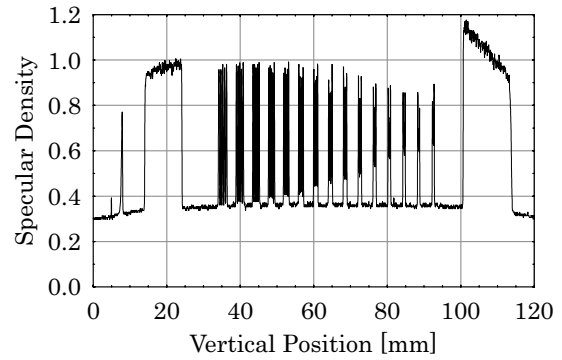


図2 X線エネルギー20keV、照射時間45分におけるX線矩形波チャートの出力である。

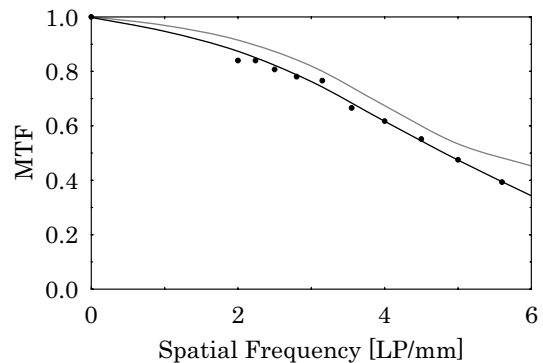


図3 正弦波レスポンス関数 (MTF)、上のラインはフィルムと増感紙の MTF、下のラインは画像取得システム全体の MTF である。

4. IP による画像解析と多波長観測

4-1. IP による画像取得

用いた IP は X 線用の IP(MS2585)と中性子用 (ND1316)の2タイプである。IP の特徴として、線量直線性は 7 桁で階調は 16bit、空間分解能は $50 \mu\text{m}$ である。IP の読み取りは BAS-1800 を用いた。画像解析は専用解析ソフト(イメージゲージ)を用いた。X 線エネルギーが 20keV の時の最適な X 線照射時間は約 20 分である。この照射時間は画像のヒストグラムから求め最大感度の PSL 値 (Photo Stimulated Luminescence)で決定した。

図4は、20keVにおけるX軸方向のX線プロファイルである。PXRのX線ビーム幅は約40mmでX線強度の勾配は約0.3で直線的である。しかし、X線エネルギー勾配の幅は約2keVで右上がりであるのに対し、強度の勾配は右下がりであるエネルギー勾配とは逆になっている。このPXRの空間モードは

電子ビームの軸と分光結晶のなす角度に敏感であるために生ずるものと思われる。

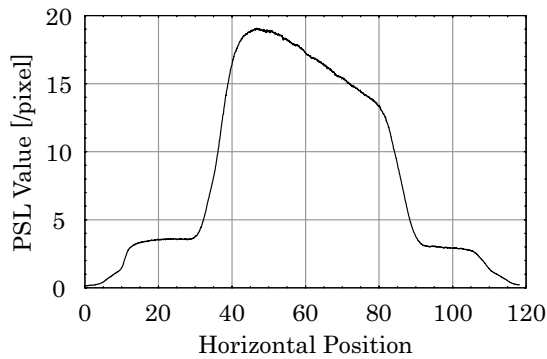


図4 X線エネルギー20keVのX軸プロファイルである。PXRのビーム幅は40mmである。

4-2. 矩形波チャートによる解像度の測定

図5は、X線用矩形波チャートをIPで撮影してプロファイルを求めた。縦軸はPSL値である。空間分解能は50 μ mで測定した。チャートのスリッド幅のLPは2LP/mmから10LP/mmである。IPでの解像力はフィルムよりも悪く、5LP/mm程度までである。この原因にはPXRの強度勾配にも影響されていると思われる。

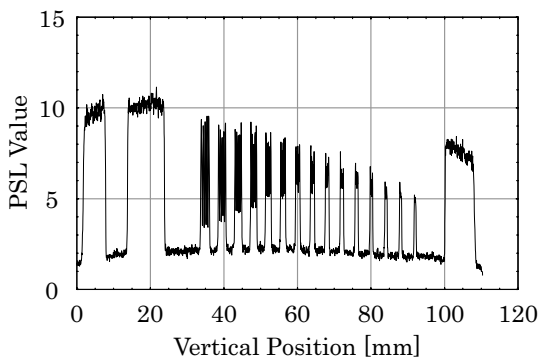


図5 IPにより矩形波チャートの測定、X線エネルギー20keV、照射時間20分である。

4-3. 中性子用IPによる画像解析

中性子IPは輝尽性蛍光体(BaF(Br,F)Eu)に中性子コンバータ(Gd)を均一に混入させた積分型エリア中性子検出器である。ダイナミックレンジは5桁、位置分解能は50 μ m、中性子検出効率は50から100%の性能を有し、1mm以下厚の柔軟でフィルム状の

ものである。中性子IPの原理は中性子がコンバータに捕獲されると、二次荷電粒子がPSL体中にカラーセンターを生成する。このカラーセンターは準安定で、He-Neレーザー(波長633nm)の照射で紫色発光(波長390nm)し、初期安定状態に戻る。その光量が入射中性子数に比例する。そこで、PXRのビームを2mm厚のPb板と10mm厚のLiFタイルのフィルタを用いることで、20keVの軟X線と中性子線の混在する割合を求めた。その結果を表1に示している。

画像のPSL値に寄与する割合は、軟X線では57.4%で中性子線や γ 線では49.1%である。したがって、画像解析に当たっては、高エネルギー成分による画像も考慮しなくてはならない。

表1 各ROIにおけるPSL値

Object	PSL	Area [mm ²]	PSL/mm ²	Ratio
Pb	9.709E+03	100	97.09	49.08
None	1.980E+04	100	197.81	100.00
LiF	1.140E+04	100	113.57	57.41

4-4. IPによるK吸収端及びL3吸収端の測定

X線による物質の研究では、X線吸収分光曲線の微細構造(XAFS:X-ray Absorption Fine Structures)をフーリエ変換することにより、吸収を起こした特定の重原子を中心として、その周囲にある諸原子までの局所的動径分布が得られる。

横軸はX線エネルギー、縦軸はX線吸収量の相対値で示すと、X線エネルギーが E_c (電子の基底状態のエネルギー)になると吸収が急に増える。この点が吸収端である。この吸収端から高エネルギー側では、吸収量がエネルギー増加とともに波をうって減衰していく。これが微細構造である。

吸収端の測定では、被写体は4個の試料を用いた。図6は、試料がIP(BaFBr:Eu²⁺)でBrのK吸収端(13.4737keV)を示している。図7は、試料がY₂O₃でYのK吸収端(17.038keV)を示している。YのK吸収端(17.038keV)の高エネルギー側にXAFS(微細構造)が

観測された。図8は、試料が Pb_3O_4 でPbのL3吸収端(13.035keV)を示している。図9は、試料が Gd_2O_3 でGdのL3吸収端(7.2428keV)を示している。また、試料 Pb_3O_4 や Gd_2O_3 でもL3吸収端の高エネルギー側にXAFS(微細構造)が観測された。

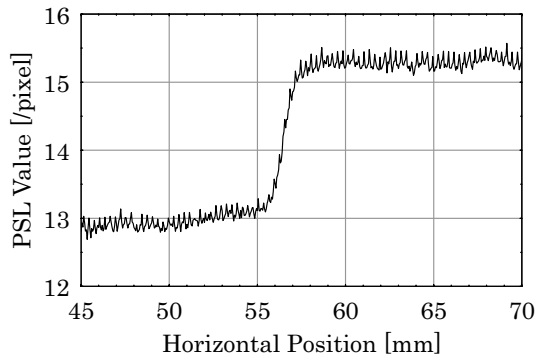


図6 試料が $\text{IP}(\text{BaFBr}:\text{Eu}^{2+})$ でBrのK吸収端(13.4737keV)である。

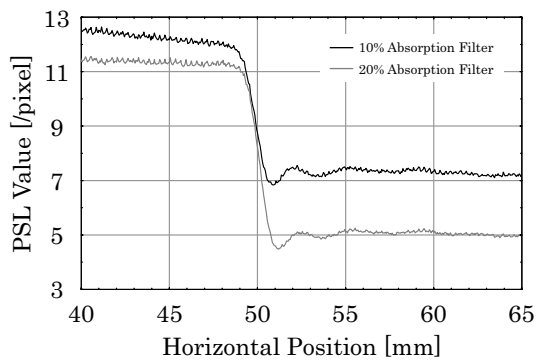


図7 試料が Y_2O_3 でYのK吸収端(17.038keV)、管電圧40kVでX線強度を10%と20%吸収する平板。

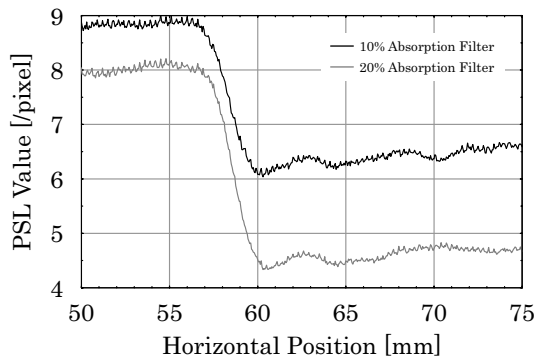


図8 試料が Pb_3O_4 でPbのL3吸収端(13.035keV)、管電圧40kVでX線強度を10%と20%吸収する平板。

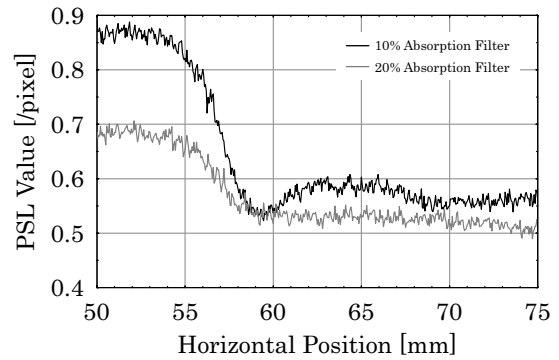


図9 試料が Gd_2O_3 でGdのL3吸収端(7.2428keV)、管電圧40kVでX線強度を10%と20%吸収する平板。

結論

以上の実験結果より下記のことが解った。

PXR ラジオグラフィにおけるマンモ用フィルムとIPとの比較では、解像力ではフィルムの方がIPよりも約2倍良いが、濃度では間欠効果があるのでフィルムでの画像取得時間が1時間以上の照射が必要である。IPの照射時間は20分程度であった。また、IPにより各種フィルタのKやL吸収端からXAFS(微細構造)が観測される。このX線用フィルタを用いれば、X線エネルギーの確認ができる。

参考文献

- [1] Y.Hayakawa et al., Proc. of the 12th Symposium on Accelerator Science and Technology, (1999) 391.
- [2] Y.Hayakawa et al., Proc. of the 26rd Linear Accelerator Meeting in Japan, (2001) 110.

酸化物のカラーフォトメモリー現象

望月章介¹, 藤代史²

1. 日本大学文理学部 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)

2. 日本大学大学院総合基礎科学研究科 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)

最近, 光で情報を記録させる事ができる「光メモリー材料」が基礎科学と応用の観点から注目を集めている. 特に, 特定の波長の光照射により局所構造が変化したり, 光化学反応したりして光吸収・発光特性が大きく変わる物質の探索が内外で盛んに行われている. 本研究代表者は最近, 希土類金属酸化物(Eu_2O_3)のクラスター, ナノメートル粒子・薄膜等の試料が, 右の写真の如く, 室温・真空中での紫外レーザー光照射で赤色フォトルミネッセンス(PL)状態から白色PL状態に変化し, この状態が, 空気に曝してもレーザー光を照射しなければ, これまでの数年以上の長期間保持される事(光情報の書き込み・保存に対応)を世界に先駆けて発見した. また, この白色PL状態は空气中または酸素中で紫外レーザー光照射で元の橙・赤色PL状態に可逆的に戻せる事(書き込まれた光情報の消去に対応)も発見した. 現時点で, これらの現象は希土類金属酸化物の表面近傍でのレーザー光子場による酸素吸着・脱離に由来する希土類イオンの価数変化と酸素欠陥生成・消滅に起因していると考えている. また, ごく最近, 石英ガラス, Sm_2O_3 他での青色-白色転移や他の物質でもPL色の可逆的变化を発見している. この研究では光の色の自由度をも利用して更なる高密度光情報記録を世界に先駆けて行おうとしている点が特色・独創的である.



紫外レーザー光照射で起こる Eu_2O_3 の赤色-白色発光転移(室温実験)

本研究はこれらの研究を基礎にして, 室温で安定に起こる可逆(消去可能)なレーザー光誘起物性変化現象を示す物質の探索及び創製とこれら物質表面へのナノメートルサイズのカラードット記録を目標にして, 以下の研究を行った.

(1) 希土類金属酸化物のカラーフォトメモリー現象のダイナミクスの研究

酸化ユーロピウム Eu_2O_3 , 酸化サマリウム Sm_2O_3 について, これまでの研究に続いてフォトルミネッセンススペクトルとラマン散乱スペクトルを詳細に測定し, レーザー光子場と物質との励起エネルギーのやり取りとしてカラーフォトメモリー現象のダイナミクスを研究した. この研究成果の一部は本年5月にフランス国 Rennes University 1 で開催される光誘起相転移に関する国際会議 the Second International Conference on Photo-Induced Phase Transitions Cooperative, non-linear and functional properties で下記の論文として公表する予定である.

Shosuke Mochizuki, Fumito Fujishiro, Ken'ichiro Ishiwata

Photo-induced valence-number changes and defects in Eu_2O_3

(2) 超イオン導電体 AgI-anatase TiO_2 , AgI-ZrO₂ のフォトメモリー現象の研究

すでに超イオン導電体 AgI-anatase TiO_2 の光誘起スペクトル変化の発見については論文で公表してあるが, 今年度の研究ではこの詳細について実験すると共に, 同じ超イオン導電体の AgI-ZrO₂ を作製し, 光メモリー性を研究した. この物質は室温で真空中にて 325nm レーザー光で照射されると, 2.6eV を中心とする幅広い発光帯がその発光幅を増大させる. この幅広い発光状態はレーザー光の照射が無ければ, 室内灯の下で

如何なる雰囲気でも長期間保存される。試料雰囲気を酸素ガスにすると、かかる紫外レーザー光の下で、元の発光状態に戻る。このようなレーザー光誘起現象は低温 13K でも観測され、現象は純粹に ZrO_2 の電子系の励起に関係したものであることを示している。

これらの研究結果の一部は下記の論文として公表した。

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Photoluminescence studies on AgI-ZrO₂ composites"

Journal of Luminescence **112** (2005) 71-74.

また、この超イオン導電体の基礎材料の AgI の薄膜成長過程について、蒸着膜形成中およびアニール過程で光吸収スペクトル・フォトルミネッセンススペクトルの測定を行った。これらの研究の一部は下記の論文として公表した。

S. Mochizuki and F. Fujishiro

"*In situ* real time optical study of films grown on low temperature substrates by vacuum evaporation of iodine and silver iodide: spectral transitions during deposition and annealing processes"

Journal of Physics: Condensed Matter **16** (2004) 3239-3256.

この研究テーマについて現在、AgI-SrTiO₃系の試料を作製し、フォトルミネッセンス特性を調べている。

量子常誘電体 SrTiO₃ のフォトルミネッセンス

望月章介¹, 藤代史², 山田篤¹

1. 日本大学文理学部 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)

2. 日本大学大学院総合基礎科学研究科 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)

量子常誘電体チタン酸ストロンチウム SrTiO₃ において紫外レーザー光に誘起された局所的構造変化・欠陥生成とフォトメモリー現象を発見した。併せて、この SrTiO₃ に見られる 2.4 eV 可視光発光の起源と新たに 3.2 eV, 2.9 eV 紫外発光を発見した。これらの概要は以下のとおりである。

(1) SrTiO₃ の紫外レーザー光に誘起された局所的構造変化・欠陥生成とフォトメモリー現象の研究

真空中で SrTiO₃ 結晶に 325nm 紫外レーザー光を照射しながらフォトルミネッセンススペクトルを観測していると、2.4eV 発光の強度が時間とともに大きく増加する。この増強した発光状態は、レーザー光を当てなければ、室内灯下で空気中でも長い期間にわたって保存される(フォトメモリーに対応)。そして、この増強した発光状態は再び酸素中や空気中でレーザー光を照射すると元の状態に戻る(メモリーされた光情報の消去に対応)。

(2) SrTiO₃ のフォトルミネッセンスの研究

SrTiO₃ は量子常誘電体と知られ、2.4eV 発光はこの量子常誘電性と密接に関連した真性自己束縛励起子によるものとして信じられてきた。SrTiO₃ 結晶はベルヌイ法で濃青色の as-grown 結晶として育成され、それを還元雰囲気の高温中でアニール・脱色して無色透明結晶として研究者に提供されてきた。我々の研究では、as-grown 結晶から無色透明結晶について、フォトルミネッセンス特性を種々の測定法によりきわめて詳細に研究した。その結果、以下の事柄が明らかになり、従来多くの研究者に信じられてきた SrTiO₃ のフォトルミネッセンスについての見解に訂正を加えた。

- 2.4eV 発光は結晶欠陥を起源とする発光で、量子常誘電性とは無関係な外来型発光である。
- 新たに発見した 3.2eV 発光と 2.9eV 発光はやはり欠陥に誘起された間接励起子の輻射消滅に伴う発光か、局在中心の光励起状態の消滅に伴う発光である。
- よく研究者が購入して試料として使用する無色透明結晶には as-grown 結晶の欠陥構造、化学的組成のヘテロ構造が痕跡としてあり、これが発光の原因となっている。

これらの研究成果の一部は下記の論文として公表した。

S. Mochizuki, F. Fujishiro and S. Minami

"Photoluminescence and reversible photo-induced spectral change of SrTiO₃"
Journal of Physics: Condensed Matter **17** (2005) 923-948.

S. Mochizuki, S. Minami and F. Fujishiro

"The reversible UV-laser-light-induced spectral change and origin of the 2.4 eV luminescence band in SrTiO₃"
Journal of Luminescence **112** (2005) 267-270.

[P1-16]

日本大学自由電子レーザーによる近赤外・赤外領域散乱分光とレーザーアブレーション
—将来計画：感光性物質の研究への応用—

望月章介¹，藤代史²，石渡謙一郎³

1. 日本大学文理学部 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)
2. 日本大学大学院総合基礎科学研究科 (〒156-8550 東京都世田谷区桜上水 3-25-40)
3. 日本大学大学院理工学研究科 (〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1)

ラマン散乱分光法をはじめとする光散乱分光法は、可視レーザー光を光源として行われることが多いが、この可視光は対象とする試料物質に感光作用や蛍光を誘起せしめたりすることがある。特に、応用上重要な物質である、銀ハライド結晶やヨウ化銀 AgI をベースとした超イオン導電物質の感光性物質では、この感光作用・蛍光作用に影響されて、格子振動・イオン導電機構の研究が遅滞した状況にある。また、応用的観点からこれら物質をレーザーアブレーション法により感光することなく成膜する方法の技術開発も望まれている。かかる場合には、感光現象を含む光化学反応性が低い近赤外や赤外領域のレーザー光を利用することにより、研究の飛躍的發展が期待できる。

この研究では、日本大学自由電子レーザーより放射される近赤外・赤外レーザー光を用いて、超イオン導電体について、

- (1) 光散乱分光：格子振動によるラマン散乱，イオニックラマン散乱
- (2) 反応性レーザーアブレーション

を行う。

なお、この研究で対象にする超イオン導電体の作製・電導度・光学的研究についての我々の論文を以下に掲げる。

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Photoluminescence studies on AgI-ZrO₂ composites"

Journal of Luminescence 112(2005) 71-74.

S. Mochizuki and F. Fujishiro

"In situ real time optical study of films grown on low temperature substrates by vacuum evaporation of iodine and silver iodide: spectral transitions during deposition and annealing processes"

Journal of Physics: Condensed Matter 16 (2004) 3239-3256.

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Excitons in AgI-based-glasses and -composites"

(accepted).

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"Structural- and optical studies on mesoscopic defect structure in highly conductive AgI-ZnO composites"

Physica B 340-342 (2003) 216-220.

S. Mochizuki, T. Shimizu and F. Fujishiro

"Photoluminescence study on defects in pristine anatase and anatase-based composites"

Physica B 340-342 (2003) 956-959.

S. Mochizuki and F. Fujishiro

"Structural, electrical and optical studies on AgI-anatase composites"

Journal of Physics: Condensed Matter 15 (2003) 5057-5072.

S. Mochizuki and F. Fujishiro

"Shallow and deep excited states of mesoscopic structure in AgI- γ -Al₂O₃ composites"

physica status solidi (c) 0 (2002) 763-766.

S. Mochizuki and F. Fujishiro

"Shallow- and deep- luminescence centers in AgI- based superionic conductor glass"

physica status solidi (c) 0 (2002) 767-770.

F. Fujishiro and S. Mochizuki

"The photoexcitation and relaxation of high ionic conductivity glasses (AgI)_x(AgPO₃)_{1-x}"

Nonlinear Optics 29 (2002) 443-449.

S. Mochizuki

"Stacking faults and excitons in AgI"

Physica B 308-310 (2001) 1042-1045.

S. Mochizuki and Y. Ohta

"Excitons in AgI"

Journal of Luminescence 87-89 (2000) 299-301.

光励起によるスーパーダイヤモンド合成

橋本 亮二¹⁾、石川 貴之¹⁾、岩田 展幸²⁾、山本 寛²⁾¹⁾日本大学大学院理工学研究科電子工学専攻

〒 274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎

²⁾日本大学理工学部電子情報工学科

〒 274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎

1. はじめに

本研究の目的はマクロスケールに及ぶ 3 次元 C₆₀ ポリマー (スーパーダイヤモンド) を合成するところにある。

C₆₀ がポリマーを形成すると超硬質材料となる可能性があるため、高温高压処理をメインに研究がなされている。しかし、バルキーな単相 3 次元でのポリマー化は未だ確認されていない。そこで、我々はホルドーピングによる効果に注目した。ホールをドーピングすることで、C₆₀ の炭素原子のエネルギー状態は、超高压下 (数 GPa) における状況と同一視することができる^[1]。アクセプタ元素と C₆₀ 混合物にレーザー照射することで、電子励起・移動させ、ポリマー化反応の促進を計った。光源には、可変波長特性と大出力を有する自由電子レーザー (Free Electron Laser) を採用した。

2. スーパーダイヤモンド

図 1 にスーパーダイヤモンドの合成原理を示す。1 つの炭素原子は二重結合を含む sp² 的な結合で存在している。その二重結合を光エネルギーで打ち切り、余った電子を隣接する C₆₀ 分子との共有結合に使う。これを連続かつ 3 次元的に進めることでスーパーダイヤモンドは合成される。それは C₆₀ の性質上、超硬質・超軽量・超柔軟という 3 つの驚異的特徴を示すものと考えている。元々硬い C₆₀ がダイヤモンドに代表される sp³ 的結合で稠密構造をとると、ダイヤモンド級の硬度に加えて、内部空洞により低密度かつ軽量となる。また、C₆₀ 分子が接点でのみ結合した非晶質構造は、弾性・粘性に富むと考える。これらの性質から、スーパーダイヤモンドはマイクロ・ナノデバイス、航空宇宙や建築、自動車の新しい構造材料、医療インプラントなど、様々な分野で活躍できると期待される。

3. 実験

試料は真空中で加圧・紫外線照射することにより作製した。C₆₀ 粉末のみのサンプルと、アクセプタとして I₂ を重量比 1 : 1 で混入した 2 パターンを使用し、I₂ の有無による違いでホルドーピングの効果を評価した。レーザー波長は基本波 1450nm と 3 倍高調波の 450nm を照射した。これはベンゼン環の結合エネルギーより見積った、C₆₀ の二重結合

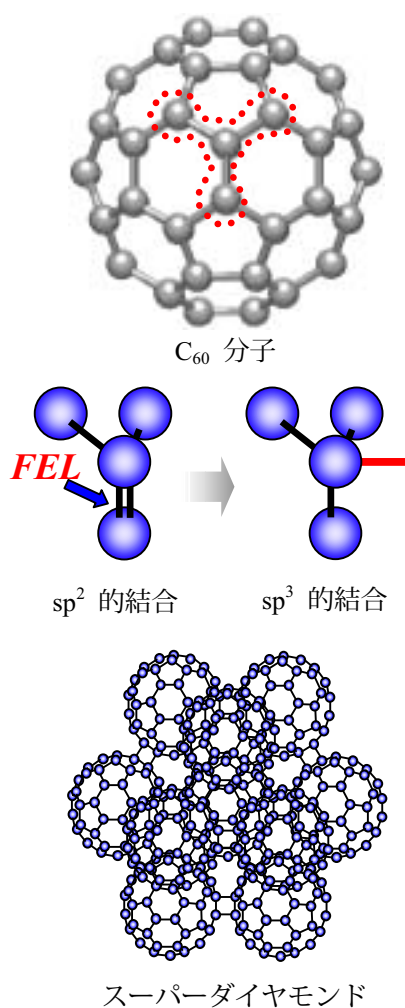


図 1. スーパーダイヤモンド合成原理と分子集合イメージ図

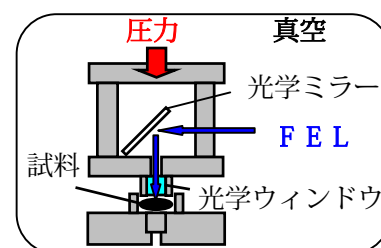


図 2. 実験装置図

を打ち切るのに必要なエネルギーをもった波長である。レーザ強度は 数 $10 \mu\text{J/Pulse}$ 、繰り返し照射周波数 2Hz で 300min 照射した。評価装置にはラマン分光、XRD を使用した。

4. 結果・考察

図 2 に XRD パターンを示す。FEL 照射により各々の面において回折角の増加、 I_2 混合サンプルでは (111)、(222) 面をはじめ、各ピーク強度の著しい減少とピーク強度比の変化を確認した。また、 $\text{C}_{60}(\text{I}_2)_x$ と見られるピーク (図中矢印) も現れた。

回折角の増加は面間隔の縮小を意味し、ピーク強度の変化は結晶性の低下を示す。サンプルが完全に層間化合物 $\text{C}_{60}(\text{I}_2)_x$ を形成している場合、本来 C_{60} のもっている (111) 面のピークは消失するはずであり、結果グラフとは一致しない。このことから、 I_2 はホルドナーとして振舞う一方、一部で C_{60} と層間化合物を形成したと考える。

図 3 にラマン分光の測定結果を示す。FEL 照射により $\text{Ag}(2)$ 振動モードの波数が 3.2cm^{-1} マイナス側にシフトし、 I_2 混入サンプルにおいては 7.5cm^{-1} の大きなシフトを確認した。

$\text{Ag}(2)$ モードとは、グラフに示すように、各炭素原子が五員環の中心に集まるように振動するモードである。 C_{60} がポリマー化すると分子間に発生する結合によって C_{60} を構成する炭素原子間の距離が若干変化し、それに伴い振動が制限され、結果として振動数の変化につながる。二量体 (ダイマー) を形成するとこの $\text{Ag}(2)$ モードが 10cm^{-1} マイナス側へシフトするとの報告^[2]があるが、 C_{60} が 3 次元的にポリマー化した場合程度シフトするのか明確な値は明らかになっていない。ただ、ダイマー化より複雑に結合する 3 次元ポリマー化は、その振動制限も激しく、シフトも大きいと予想される。このことから、 I_2 を混入しホルドープしたことで、より大きなシフトを確認したことは、ホルドープがポリマー化に有効であることを示唆している。

5. まとめ

XRD より、結晶性の低下、一部で層間化合物 $\text{C}_{60}(\text{I}_2)_x$ の形成を確認した。ラマン分光により、 $\text{Ag}(2)$ モードが 7.5cm^{-1} シフトすることを確認し、ホルドープがポリマー化を促進したことを確認した。今回、我々の所望するスーパーダイヤモンドを得るには至らなかったが、光励起ホルドープというアプローチで C_{60} の物性が変化することを確認した。これはスーパーダイヤモンドが合成可能であることを示唆している。

6. 参考文献

- [1] Hiroyuki Nakayama and Hiroshi Katayama, Jan.J.Appl.Phys, **41**(2002)817
- [2] G. B. Adams et al., Phys. Rev. B, **50**(1994)15

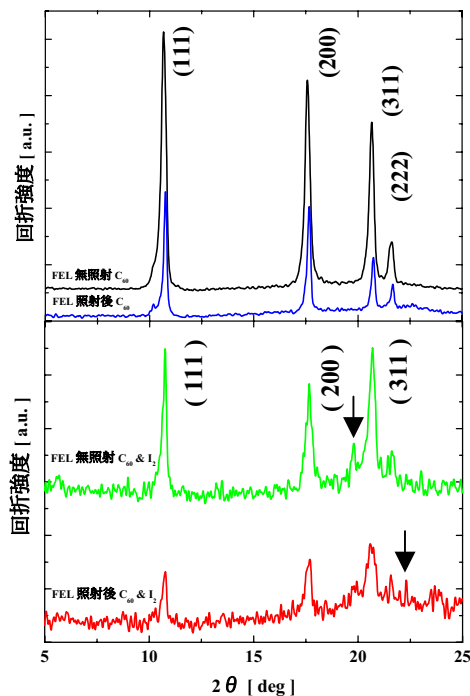


図 3. XRD パターン

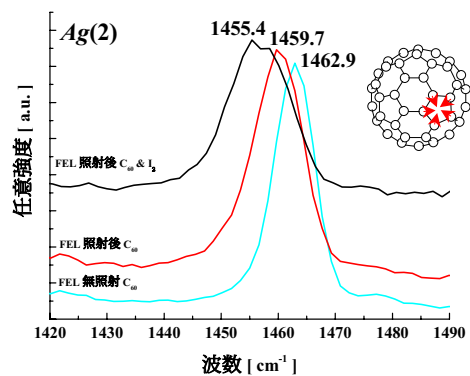


図 4. ラマン分光

自由電子レーザーアブレーション法による DLC 太陽電池の作製

田中慶彦*, 鈴木 薫** (日大院理工電気工*, 日大理工**)

1. まえがき

近年、地球温暖化の原因として二酸化炭素の排出が問題視され、直接太陽光を電気変換できる太陽電池の開発が行われている。その中で、透明で高硬度といったダイヤモンドの特性と、アモルファス半導体特性を有するダイヤモンド状炭素¹⁾ (Diamond-like Carbon : DLC) を使い太陽電池作製の研究を行った。従来のシリコン太陽電池は可視光吸収のため不透明であるのに対し、DLC を使用することで透明太陽電池の作製が期待できる。また、シリコン太陽電池では原料やドーパントガスに引火・爆発性の高いシランやジボラン及び毒性があるフォスフィンを使用する。レーザーアブレーション法¹²⁾を用いることにより固体であるグラファイトやボロン結晶や、冷却し固体化することで溶剤も利用でき安全な成膜方法が可能となる。

2. 実験装置及び方法

図1に DLC 成膜装置の概略図を示す。チャンパー内は、常に排気され DLC 成膜時には気圧 10mTorr 一定としている。周波数 13.56MHz の高周波電源(ENI 社製 ACG-5)を使用し、誘導結合型放電によりプラズマを発生させ、放電管を通じ基板に導入している。ターゲットは、P₂O₅1%混合グラファイト粉末、冷却固体化した C₆H₆+P(OCH₃)₃溶液を使用し、45 度の角度でレーザー光を照射した。成膜基板は、シリコン(Si)ウエハー20mm×

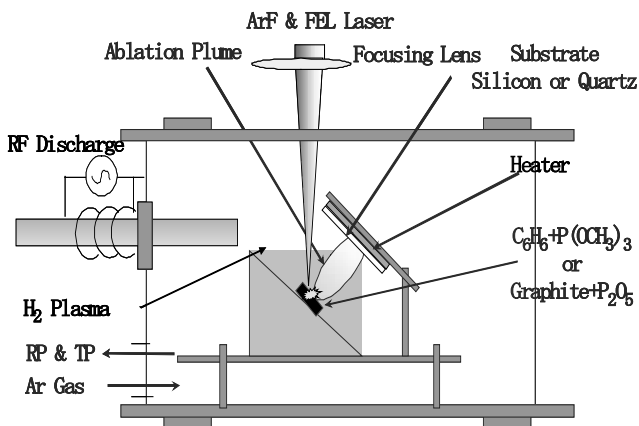


図1 レーザーアブレーション装置

20mm(p 型 $\rho=10\Omega\cdot\text{cm}$, $d=625\mu\text{m}$)の 100 面を使用し、成膜基板はフッ化アンモニウム水溶液(10%希釈)で 5 分間酸化膜除去を行った後、ターゲットに対向させて設置する。放電電力 100W にて水素プラズマ発生させ、基板表面の酸化膜を除去した後、ArF エキシマレーザー (Lambda 社製, COMPex201, $\lambda=193\text{nm}$, フルエンス $20\text{J}/\text{cm}^2$, パルス幅 20nsec, 繰り返し周波数 10Hz)、FEL レーザ(日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設, $\lambda=2.4\mu$)を照射し、発生した粒子群を成膜基板上に堆積・成膜する。物性評価は、吸光光度計(島津製作所社製, UV-3150)による透過率、顕微ラマン (Raman, RENYSHOW, Ramanscope System-1000)による定性分析、擬似太陽光源のキセノンランプ(溝尻光学工業所社製 2kW)と微小電流計(ADVANTEST 社製 R8340)を使用して電圧-電流特性測定を行った。

3. 結果

図2に、C₆H₆と C₆H₆+P(OCH₃)₃それぞれの吸光光度計による透過率測定の結果を示す。双方の溶液ともに 1600nm-1800nm にかけて C-H 結合に起因する吸収、また 300nm 以下においても光の吸収が確認された。このことから、紫外側の 200nm 以下の吸収を利用し、ArF 使用したアブレーションが可能となり、また、C-H 結合の分子振動に起因する吸収帯域では、FEL レーザを使用して波長を変化させることにより効果的にアブレーションが行えると予想できる。実際に FEL レーザ

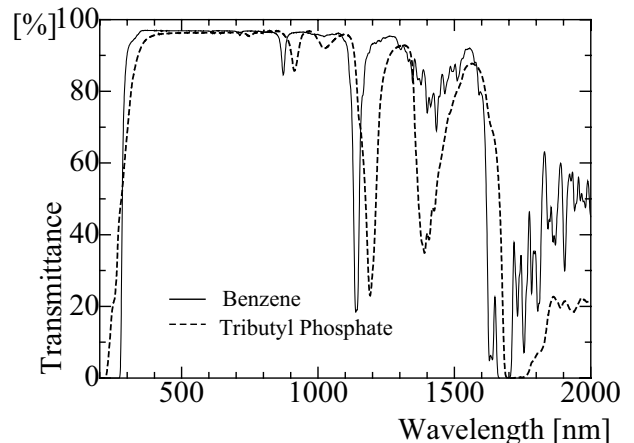


図2 吸光光度計による透過率測定

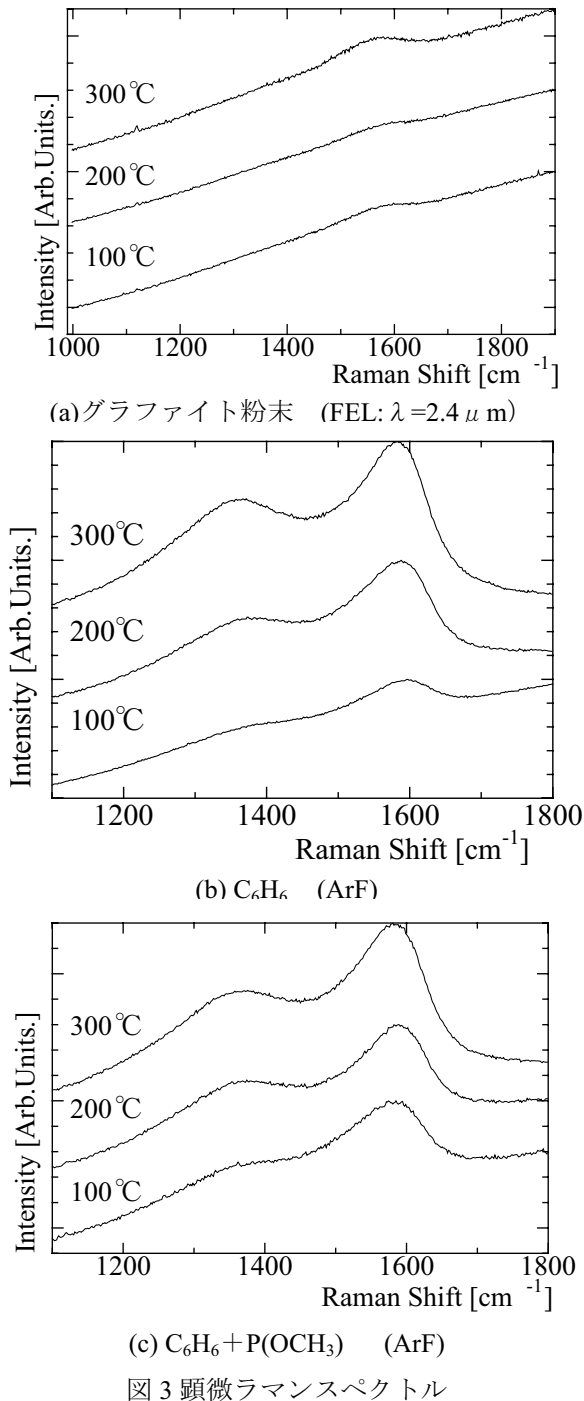


図3 顕微ラマンスペクトル

波長をC-H結合の吸収帯域である $2.4 \mu\text{m}$ に選択してグラファイト粉末と冷却固体化した $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{P}(\text{OCH}_3)$ に照射した。粉末ターゲット使用時には基板表面に膜が形成されたが、溶液ターゲット使用時にはターゲット表面にアブレートされた痕が確認されたが、成膜基板上に膜の形成は確認できなかった。図3(a)は粉末ターゲットをFELで、図3(b)は C_6H_6 、図3(c)は $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{P}(\text{OCH}_3)$ をArFでそれぞれ基板温度を変化させてアブレーションし成膜したDLC膜の顕微ラマンスペクトルである。

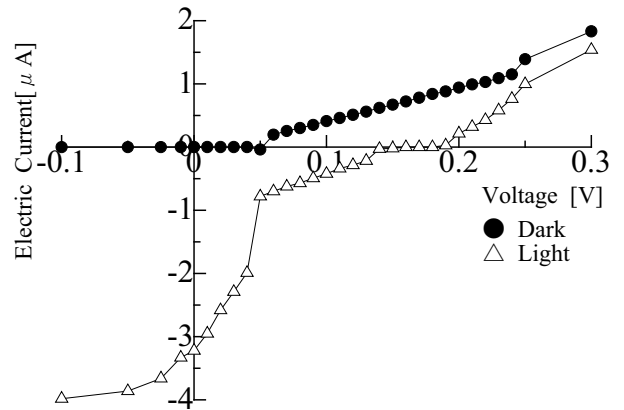


図4 電圧-電流特性

(a)のFELで作製した膜は膜厚 100nm であり、 1580cm^{-1} にgraphitic (-G) bandが確認された。(b)(c)では 1580cm^{-1} にgraphitic (-G) band、 1360cm^{-1} にdisordered (-D) bandが確認され、G/D強度比は基板温度が上がると下がることが確認された。また、 C_6H_6 を使用したDLC膜ではG-bandがケミカルシフトする事が確認された。図4は $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{P}(\text{OCH}_3)$ ターゲットをArFで基板温度 200°C 成膜した試料の電圧-電流特性である。短絡電流 $3.22 \mu\text{A}$ 開放電圧 0.17V 発電効率 $8 \times 10^{-5}\%$ の出力が確認され、n型DLC/p型Si太陽電池ができたといえる。

4. まとめ

FELを使用し C_6H_6 をアブレーションするとターゲット表面の破壊は確認されたが、成膜基板上に膜の形成は確認されなかった。 $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{P}(\text{OCH}_3)$ をArFにより基板温度 200°C で成膜したのもでは短絡電流 $3.22 \mu\text{A}$ 開放電圧 0.17V 発電効率 $8 \times 10^{-5}\%$ の出力が得られるn型DLC/p型Si太陽電池ができた。

5. 謝辞 本研究の一部は文部省ハイテク・リサーチ・センター整備事業「ナノサイエンス研究プロジェクト」及び学術フロンティア推進事業「可変波長高光度単色光源の高度利用に関する研究」による研究結果である。

参考文献

- 1) 田中 慶彦, 鈴木 薫「RF放電支援レーザアブレーション法によるDLC太陽電池の成膜」電気学会研究会資料, 光・量子デバイス研究会, OQD-04-8, pp.41-46 (2004-3)
- 2) M.ITOH, Y.SUDA, M.A.BRATESCU, Y.SAKAI, K.SUZUKI「Amorphous carbon nitride film preparation by plasma-assisted pulsed laser deposition method」Appl. Phys., A79, pp.1575-1578 (2004)

レーザーアブレーション法による酸化チタンの成膜

益田 恵太¹、鈴木 薫²、日本大学大学院¹、日本大学理工学部²

1. まえがき

今日、地球の化石エネルギー資源枯渇問題、環境に対する人々の関心は次第に大きくなり光電変換素子の研究開発が活発に行われている。従来は、シリコン系太陽電池が実用化されているが普及拡大には低価格化とシリコン原料の調達問題等の課題が予想される。そこでシリコン以外の材料での研究が注目され、ワイドバンドギャップ($E_g=3.0\sim 3.2\text{eV}$)で紫外領域に吸収端を持つ酸化チタン(TiO_2)を用いる太陽電池に期待がもたれている。シリコン太陽電池などのpn接合型光電変換素子とは異なり、植物の光電変換プロセスに似た TiO_2 の光触媒機能を用いているため、光電変換効率が高い利点がある。 TiO_2 の成膜方法として一般的には、ゾル-ゲル法、スプレーコロイド焼付け法、スキージ法などが用いられている。しかしこれらの方法では基板への融着に高温での熱処理が必要なため、フレキシブルかつ軽量で携帯に有利なプラスチック等の有機材料へ成膜するにあたり材料への変形・変質といった問題が生じる。そこで基板への熱的影響を軽減できるレーザーアブレーション法によってアナターゼ型 TiO_2 を低温成膜し、色素増感型太陽電池を作製する方法を検討した。

2. 実験方法

波長 193.2nm の ArF エキシマレーザ (Lambda 社製、COMPex201: エネルギー 20J/cm² 繰り返し周波数 10Hz パルス幅 20ns) を焦点距離 300mm で集光し、

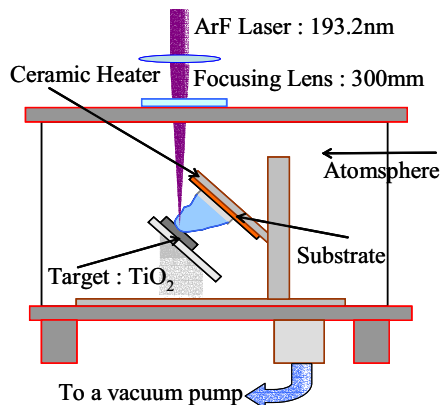


図1 レーザアブレーション装置

ターゲットとしたアナターゼ型 TiO_2 (石原産業製、ST-01) のバルクに 45 度で照射する。この時に発生するアブレーションプラズマを成膜源とし、基板間距離 20mm で対向する成膜基板に微粒子を堆積させる。図 1 に示すように基板は後方からセラミックヒータを用い 100~400°C に加熱し、チャンバー内は 10^{-5} Torr 程度まで十分排気した後、雰囲気としてアルゴン(Ar)や酸素(O_2) ガス(0.01~1.0 Torr)を封入し、成膜基板を ITO ガラス (甲子光学工業社製、 $10\Omega/\text{cm}^2$)、石英ガラス (フルウチ化学株式会社製) を用いて成膜を行った。スキージ法による成膜方法は TiO_2 溶液 (石原産業製、STS-21) を塗り電気炉 (400°C) で 60 分間加熱し焼成して薄膜化¹⁾²⁾させている。上記の条件で作製した試料を X 線回折装置(理学電機社製、RINT-2100:X-ray diffraction:XRD)による定性分析、吸光光度計(SHIMAZU 社製、UV-3150)による吸光度測定、エネルギー分散型 X 線装置(Kevev Sigma 社製、EDS Ver.3.2:Enrgy Dispersive X-ray:EDX)による定量分、Ultra High Resistance Meter (ADVANTEST 社製、R8340A)による擬似太陽光源であるキセノンランプ(溝尻光学工業所製 2kW)照射時における電流-電圧特性を行った。

3. 結果と検討

表 1 に示す条件で基板温度を変化させたときの XRD 結果を図 2 に示す。100、200°C で成膜した薄膜でアナターゼ型 TiO_2 に特徴的な結晶面のピークは確認でき、温度上昇に伴い XRD ピークの強度が大きくなり結晶成長していることが分かる。しかし 300、400°C で成膜した薄膜でこのピークは確認できずアモルファスな膜質を示すブロードな特性となった。

表 1 成膜条件

雰囲気	O_2
雰囲気圧 [Torr]	0.1
基板温度 [°C]	100, 200, 300, 400

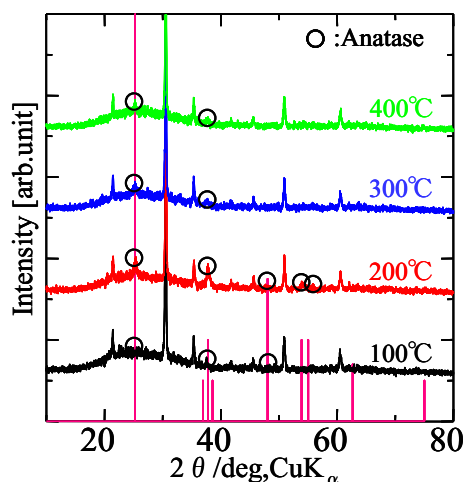


図2 X線回折による定性分析

表2 エネルギー分散型X線回折による定量分析
吸光光度計によるバンドギャップ測定

基板温度 [°C]	Ti (Atomic%)	O (Atomic%)	バンドギャップ [eV]
100	39.28	60.72	2.9
200	37.76	62.23	2.9
300	32.25	67.75	3.0
400	33.88	66.12	3.1

次にEDX結果を表2に示す。基板温度を100~400°Cへ上昇させることにより酸素濃度が増加していることが確認できる。そして100、200°Cにおいては薄膜中の酸素が欠陥していることがわかり、300、400°CでTiO₂の理想的な組成比であるTi:Oが1:2になっていることが確認できる。またバンドギャップ測定より基板温度の上昇に伴い2.9~3.1eVへ上昇しアナターゼ型TiO₂の3.2eVに近づいていくことが確認できる。以上の薄膜を用いてTiO₂色素増感型太陽電池を作製する。ルテニウム(Ru)金属(ソラロニクス社製、Ruthenium 535-bis TBA) 35.6mgをエタノール(関東化学株式会社製、Ethanol(95) C₂H₅OH) 100mlに入れ超音波洗浄器で攪拌してRu色素溶液を作り、薄膜を60分間浸してRu色素をTiO₂薄膜に吸着させる。対極には白金(Pt)をスパッタ法で成膜した電極を用いて電解液(ソラロニクス社製、Iodolyte TG-50)を吸収させて太陽電池³⁾とする。電圧-電流特性の結果を図3、表3に示す。光を照射することにより短

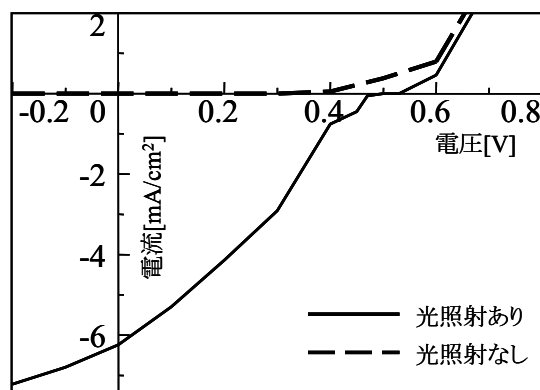


図3 電圧-電流特性

表3 電圧-電流特性

基板温度 [°C]	短絡電流 [A/cm²]	開放電圧 [V]	効率 [%]
100	2.50×10^{-3}	0.56	2.38×10^{-1}
200	6.24×10^{-3}	0.53	5.10×10^{-1}
300	2.53×10^{-3}	0.36	9.07×10^{-2}
400	4.21×10^{-3}	0.39	1.70×10^{-1}

絡電流値が増加し太陽電池として光電変換していることが確認できる。100°Cから200°Cと温度上昇により出力の向上に伴い光電変換効率が向上していることが確認できる。

4. まとめ

以上の結果より薄膜中の酸素濃度を増やすことにより、出力の向上は増大すること確認できた。しかし、過度の増加は短絡電流の減少をまねくことが判明した。最大でTi:Oが1:1.7の時に開放電圧0.53V、短絡電流6.24 mA/cm²、効率0.51%のTiO₂色素増感型太陽電池を作製した。

参考文献

- 1) 益田恵太, 風戸亮一, 鈴木薫:「ArF レーザアブレーション法による酸化チタン太陽電池の創製」, レーザ学会学術講演会第24回年次大会 講演予稿集, 29a-5, p.140(2004-1)
- 2) 益田恵太, 鈴木薫:「レーザアブレーション法による酸化チタン太陽電池作製」, 電気学会研究会 光・量子デバイス研究会, OQD-04-10, pp.51-55(2004-3)
- 3) H.Saito, K.Takayama, H.Sugata, S.Ohshio, H.Takada, Y.Yamazaki, Y.Yamaguti, Y.Ono: "Nanoarchitecture of Titania Designed for Ruthenium Dye-Sensitized Photoelectrochemical Cells" Jpn.J.Appl.Phys., Vol.41, pp.L1250-L1252(2002)

レーザアブレーションによる発光材料(LaO)CuS の成膜 清水 洋平 (日本大学理工学部電気工学専攻)

1. はじめに

オキシサルファイド(LaO)CuS はイオン結合からなる LaO 層と共有結合からなる CuS 層が交互に積層した特徴的構造(Fig.1)を有しており、室温におけるバンドギャップが 3.2eV の透明酸化物半導体である。また、電気伝導性に適した層構造を有していること、材料の置換により特性の制御が可能であるといったことから透明 P 型半導体デバイス、熱電素子、光触媒素子、透明電極などへの応用が期待されている。特に、発光波長特性において約 380nm 付近に励起子に起因する紫外発光と可視光域の約 600nm 付近に欠陥や不純物によるブロードな発光が確認されていることから新しい発光素子としての応用を検討している。可視光域の発光は (LaO)CuS の組成比を制御することで可変となることが考えられ、紫外発光と可視領域の発光により白色 LED の実現も可能となると考えられる。そこで、組成比の制御を容易に行えることができるレーザアブレーション法により成膜を行った。本稿では、レーザ光源として YAG レーザ(波長: 1064nm)と ArF エキシマレーザ(波長: 193nm)の 2 種類のレーザを用い、レーザアブレーション法により作成した薄膜とプラズマ支援を行って作成した薄膜について比較検討する。また、チャンバ内雰囲気を変化させた場合および基板温度を変化させた場合により最適な成膜条件の検討を物性及びフォトルミネッセンス(PL)測定から評価する。PL 測定は He-Cd レーザ(金門製作製 IK5251R-C)を光源とし、発光を分光光度計(島津製作所 UV-1350)で測定した。物性の評価方法としては、組成比をエネルギー分散型 X 線分析(keveX Sigma)、膜構造を X 線回折分析(RIGAKU RINT2000)、表面形状を電界放射型走査電子顕微鏡(日立製作所 S4500)で行った。

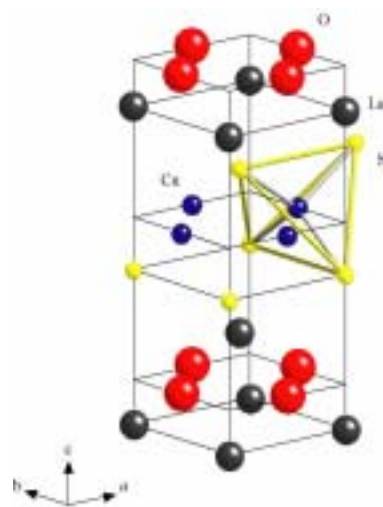


図 1 (LaO)CuS の結晶構造

Fig.1 Crystal structure of (LaO)CuS

2.実験及び検討

薄膜作製に用いた実験装置図を Fig.2 に示す。外部より波長 1064nm の Nd-YAG レーザ(東芝製 LAY-616C、エネルギー; 1.35mJ/Pulse、パルス幅; 65nsec、繰り返し周波数; 500Hz)と波長 193nm の ArF エキシマレーザ(Lambda 社製 COMPex201、エネルギー; 300 mJ/Pulse、パルス幅; 20nsec、繰り返し周波数; 10Hz)を照射し、焦点距離 20mm のレンズで集光する。雰囲気条件を変化させたチャンバ内の焦点位置にターゲットとして(LaO)CuS バルクを設置し、放出されたアブレーションプラズマ

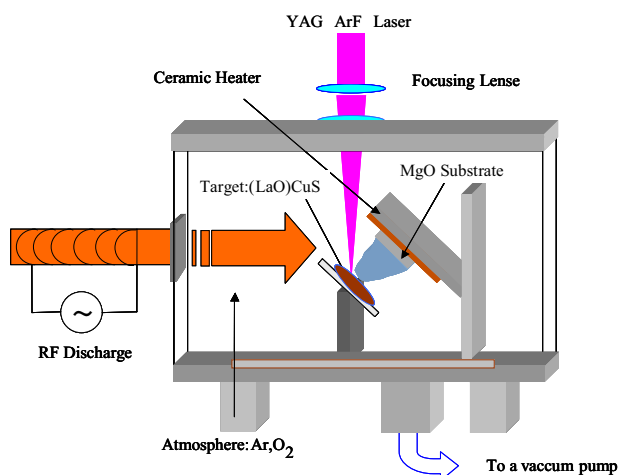


図 2 実験装置図

Fig.2 Experiment Setup

を対向させた MgO(100)基板に設置する。ターゲットである (LaO)CuS バルクは原材料である $\text{La}_2\text{O}_3, \text{La}_2\text{S}_3, \text{Cu}_2\text{S}$ を化学量論比に従い固相反応法により混合し、石英管で 10^{-2}Torr まで排気し、真空封入した後、 900°C で 40 時間、電気炉を用いて熱処理を施し結晶化させた。また、セラミックヒーターを用いて基板温度を制御し、プラズマ支援を行うときは誘導結合による RF 放電を周波数 13.56MHz 、放電電力を 200W としてチャンバの外部より石英管を用いて基板に向けて導入をした。これらの条件で作製した薄膜はアモルファスであるため、(LaO)CuS バルク作成時と同様の条件で電気炉にて結晶化させた。

3. 実験結果及び考察

YAG レーザで作製した薄膜のフォトルミネセンス(PL)測定結果を Fig.3 に示す。Ar 雰囲気で作成した薄膜において、(LaO)CuS バルクと同様に、 380nm 付近にエキシトン発光によるピーク、 600nm に欠陥や不純物によるブロードのピークが得られた。 O_2 雰囲気で作成した薄膜は、薄膜が酸化され黒くなり発光強度は減少したが、 600nm 付近に見られるブロードなピークは 680nm 付近へレッドシフトした。これに対して、 O_2 プラズマアシストを行って作成した薄膜では、 540nm 付近にブルーシフトし、半値幅 23.8nm 程度のシャープなピークとして

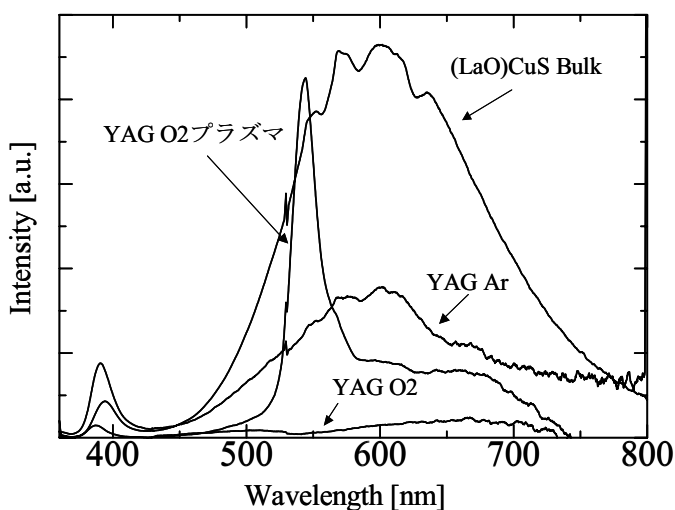


図3 フォトルミネセンス測定

Fig.3 Measurement of Photo luminescence

確認された。シャープなピークが得られた理由としては、欠陥および不純物が結晶化され、単一の発光のみのピークが得られたこと及び不純物が少ないことがあげられる。

ArF エキシマレーザで作製した薄膜のフォトルミネセンス(PL)測定結果を Fig.4 に示す。すべての成膜条件において 380nm のエキシトン発光が確認された。Ar 雰囲気で作成した薄膜において、基板温度を上昇させていくにつれて 600nm 付近に見られた不純物や欠陥によるブロードのピークが 100°C の場合は、 700nm 付近にレッドシフトしたピークとして確認された。Ar が成膜に及ぼす影響は現在検討中である。

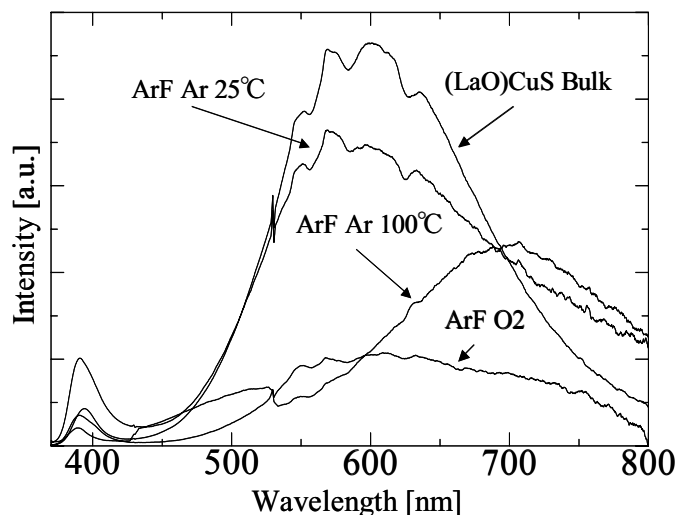


図4 フォトルミネセンス測定

Fig.4 Measurement of Photo luminescence

4.まとめ

YAG レーザを光源とし、 O_2 プラズマアシストを行うことで不純物のピークがブルーシフトしシャープなピークとなった。また、基板温度の上昇や O_2 雰囲気での成膜によって PL のスペクトルはバルクに比べてレッドシフトしていることがわかる。以上より、組成比の制御によって PL 発光の波長は可変となることが明らかとなり、これを積層することによって広い領域での可視光発光が可能であると考えられる。

[P2-5]

紫外線励起アンモニアガスによるシリコン窒化膜の作製及び評価

稲野正 海老原司 福岡大樹 高橋芳浩 大西一功

日本大学 〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

【序論】

シリコン窒化膜は酸化膜に比べて高誘電率・高密度であり、ボロン突き抜けの抑止力もあるため、トランジスタのゲート絶縁膜をはじめ広く応用研究が行われている。一般にシリコン窒化膜は熱 CVD 法 (LPCVD) により作製されておりその温度は高温で、ウエハの大口径化や素子構造の微細化に伴い、プロセスの低温化が望まれている。CVD プロセスの低温化にはプラズマ CVD 法や光 CVD 法があるが、高エネルギーのプラズマによる損傷や、良好な界面特性が得られないといった問題がある。界面特性等を考えると直接窒化が優位である。しかし、そのプロセスは 1000°C 以上と非常に高温であるので、我々は光エネルギーを用いることにより、低温下でシリコン基板に直接窒化膜を成長させる紫外線励起直接窒化に着目した。

これまでアンモニアを材料ガスとし、紫外線励起による直接窒化が可能であることを確認した。本研究では膜質改善を目的にアンモニアの励起時間を長くし、また基板への励起ガスの噴射速度を上げるため、上下を合成石英で挟まれた空間 (以下励起管と呼ぶ) にアンモニアガスを導入し、紫外線励起により直接窒化を行う方法について検討を行った。

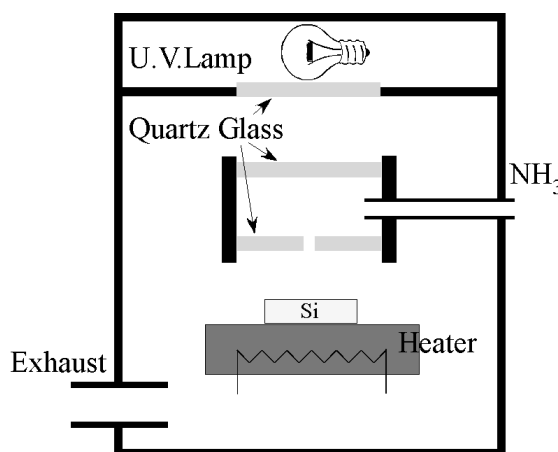


図1 紫外線励起窒化装置

【実験方法】

図1に実験で使用した紫外線励起窒化装置の概略を示す。アンモニアガスは上下を合成石英で挟まれた励起管に導入される。また、上側石英ガラス上部から低圧水銀灯(185,254nm)の紫外線を照射した。励起管は直径100mm、高さ20mm (内寸) であり、ガス流量100ccmの場合、ガスは励起管内部で1分以上と長時間の紫外線照射を受ける。一方、下側の石英ガラス中心には0.5mmφの穴を開け、素子上へ励起ガスの導入を行った。この径の小径化は励起管からのガス噴射速度の高速化をもたらし、ガス流量100ccmの場合、830cm/sと見積もられる。ガス噴射速度の高速化は、成長速度の低下をもたらす一方、強い結合のみを残すため、膜特性の改善につながるものと考えた。図2に作製工程を示す。n形Si基板をRCA洗浄し、紫外線励起アンモニアガスによる直接窒化を行った。真空槽の真空度300Pa、ヒーター温度180°C、アンモニア流量100ccm、窒素流量50ccmで60分の窒化を行った。なお基板はヒーター上および励起管内にそれぞれ置いて実験を行なった。窒化後、エリプソメータによる膜厚測定とXPSによる組成分析を行い、真空蒸着法により両面にアルミ薄膜を形成した。その後、フォトリソグラフィにより基板表面に電極を作製し、電気的特性を測定した。

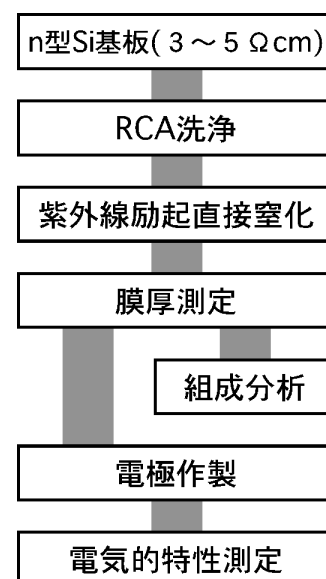


図2 作製工程

【結果・検討】

製膜後エリプソメータにより膜厚測定したところ、励起管内基板の平均膜厚 15.5 Å 平均屈折率 2.19、

ヒーター上基板の平均膜厚 13.0\AA 平均屈折率 2.31 であった。図 3 に XPS による N-1s スペクトル測定結果を示す。励起管内、ヒーター上共に窒素ピークが観測され窒化されていることがわかった。また、図 3 はエッチング時間 0.2[min] の深さ方向分析の結果である。エッチング毎に波形のピークが小さくなっていることから、作製された窒化膜は非常に薄いことが予想される。ただし、図 4 のように MIS 構造特有の CV 曲線が観測され作製した膜の絶縁性が確認された。図 4 からわかるように、ゲート電圧が 0.5[V] 以上において容量値の減少が観測できる。これはゲート絶縁膜が非常に薄く、漏れ電流が増大してしまったため、容量の観測が困難になったことを示している。確認のため図 4 の最大容量値 (=絶縁膜容量) により比誘電率を求めた。その結果 1.8 と非常に小さい値となってしまった。これは蓄積状態における容量が観測困難であることを裏付けるものである。また、理想 MIS 曲線との比較によりフラットバンド容量約 1.6[pF] を算出した。従ってフラットバンド電圧は約 -0.6[V] であった。これより絶縁膜とシリコン基板界面に固定表面電荷は少ないことが予想される。

【まとめ】

紫外線励起アンモニアガスを用いたシリコン基板の低温直接窒化における膜質改善を目的に実験を行った。その結果 180°C という低温で窒化できた。

【今後の方針】

紫外線励起により直接窒化が可能であることを示してきた。しかし、さらなる膜質改善のため光パワー及びエネルギーの最適化などの実験方法の改良が必要である。その解決策として現在、LEBRA 所有の自由電子レーザーを光源に用いるための図 5 のような新しい実験装置の構築中である。図 5 のように自由電子レーザーは光導入窓より照射される。ヒーター表面にはネジ穴が切っており、試料取り付けの治具作製することにより基板への光照射角度を変化させることが出来る。また、ヒーターには支持棒がついておりフランジまでの距離を変化させることが出来る設計とした。現在、自由電子レーザーの波長は紫外線に比べて長いものの、高調波成分によりアンモニアを励起できるものと考えている。波長が可変であることから、より最適なガス励起波長を選択することができ出力も大きいため石英ガラスによる減衰もかなり低減できるものと考えている。また、エキシマレーザーとの混合光源を用いた実験も計画中である。

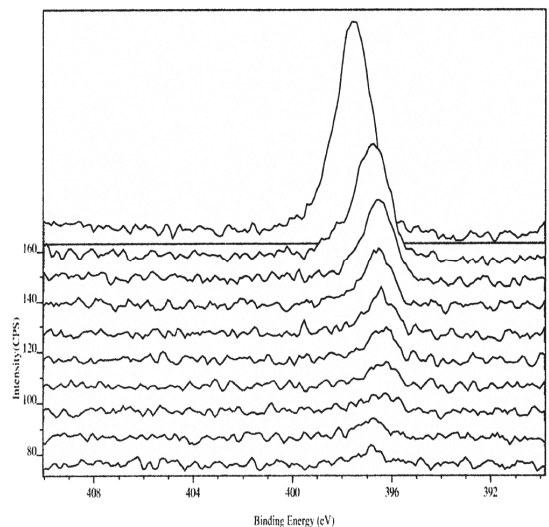


図 3 XPS のスペクトル[N-1s]
(励起管内基板)

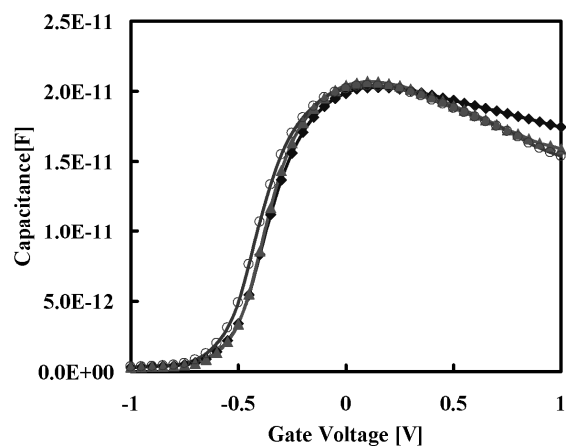


図 4 容量電圧特性
(励起管内基板)

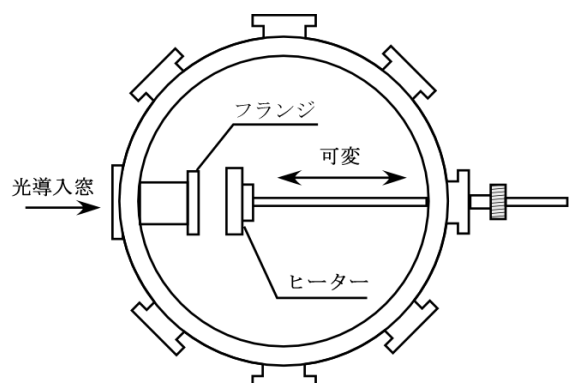


図 5 新実験装置概略図

陽極酸化法による純水中でのSiO₂膜の作製と評価

藤田明良 菅沼卓仁 藤岡州次 新垣久 高橋芳浩 大西一功

日本大学 〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1

【序論】

SiO₂膜はLSIを作製する際に、トランジスタのゲート絶縁膜、不純物拡散防止マスクなどに用いられ重要な役割を果たしている。また、近年ではマイクロマシーニングでの犠牲層としても用いられている。SiO₂膜の代表的な作製方法としては熱酸化法、熱CVD法がある。しかし、いずれも高温雰囲気中で作製されるため、熱による基板の反りや不純物の再拡散などの問題が指摘されている。一般的に陽極酸化法によって作製されたSiO₂膜は、絶縁性などの電気的特性が熱酸化膜に比べて劣る。しかし、陽極酸化法は室温で製膜が可能であり、真空排気装置等が不要である。また本研究では溶液として純水を用いることにより、低コストで簡便に製膜が可能である。このことから不純物拡散防止マスクや犠牲層など電気的特性を主目的としないものについては有益であると考えられる。また、電気的特性が改善されれば新たなプロセスとしても期待できる。

陽極酸化法のみかメカニズムについてはいまだ未解明な部分が多い。そこで、本研究では酸化メカニズムの解明及び電気的特性の改善を目的として、各種プロセス条件に対する特性の変化について検討を行った。

【実験方法】

図1に示すように純水中でSi基板を対向(間隔3cm)させ電圧(交番又は直流)を印加することで酸化膜を製膜した。Si基板をRCA洗浄し陽極酸化を行った後、膜厚およびMOSキャパシタの電気的特性の測定、FT-IRによる赤外線吸収スペクトルの測定を行い、SiO₂膜の評価を行った。また、基板中のキャリア数増加による成長特性の変化を確認するため自由電子レーザを照射しながら陽極酸化を行った。

【結果】

図2に熱酸化法により膜厚370Åの酸化膜を製膜した後、陽極酸化を行った酸化膜のエッチングレート特性を示す。この結果から、陽極酸化膜は熱酸化膜に比べてエッチングレートが大きいことがわかる。また、本来熱酸化膜であったところが陽極酸化膜に変わっており、酸化膜の両界面からSiイオンならびに酸化種(O²⁻,OH)が移動し酸化反応が起きていると考えられる。図3にSi表面での酸化反応モデルを示す。Si表面は蓄積状態となり正に帯電する。そこへ極性を持つ水分子(酸素にδ-)が吸着・拡散またはドリフトしSi-H,Si-OHを形成していくと考えられる。

陽極酸化法での酸化膜成長特性を図4に示す。これから、印加電圧、周波数が一定であれば膜厚は総電荷量に比例することがわかる。また、印加電圧を高くするにつれて酸化膜厚は薄くなり、周波数を

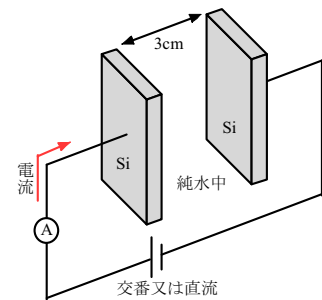


図1 陽極酸化法

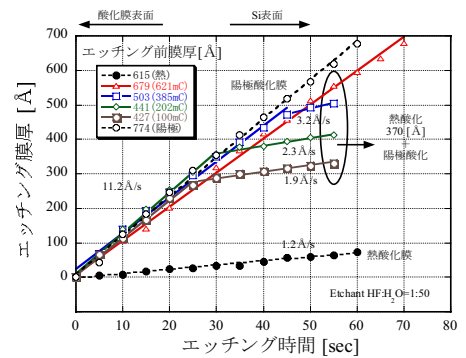


図2 エッチングレート特性

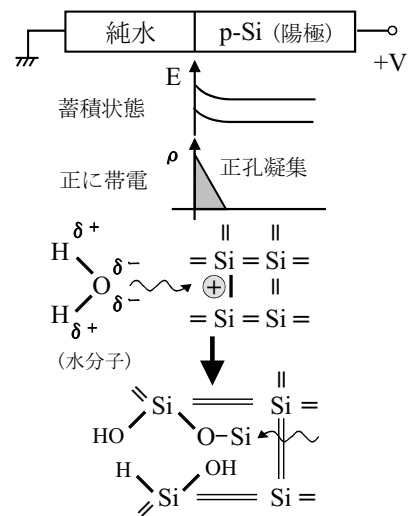


図3 酸化メカニズム

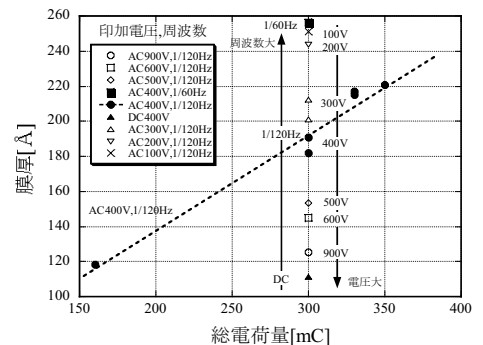


図4 酸化膜成長特性

高くするにつれて酸化膜厚は厚くなるのがわかる。

図 5 に陽極酸化膜ならびに熱酸化膜の高周波 C-V 特性を示す。陽極酸化膜の C-V 曲線は熱酸化膜に比べて負側へ大きくシフトしていることがわかる。これは、陽極酸化膜中に多くの固定正電荷が存在していることを示している。しかし、熱処理することにより固定正電荷が減少し熱酸化膜に近づくことがわかる。

図 6 に陽極酸化膜ならびに熱酸化膜のリーク電流特性を示す。陽極酸化膜は熱酸化膜に比べて低電界領域で大きなリーク電流が観測される。陽極酸化膜は、熱酸化膜に比べ密度が低いこと、また陽極酸化膜の表面観測の結果、微細孔の存在が確認されていることから絶縁性劣化が起きていると考えられる。しかし、熱処理によりリーク電流を制御できることがわかり、特に 800°C の熱処理により熱酸化膜に劣らぬ特性を得られることがわかった。

陽極酸化膜の結合状態を調べるために FT-IR による測定を行った。その結果を図 7 に示す。これより、陽極酸化膜には Si-O のほかに Si-OH 結合が含まれており、熱処理を行うことで Si-OH 結合が減少することがわかった。

図 8 に基板抵抗率を変化させたときの酸化膜成長特性を示す。n-Si, $\rho=4-6 \Omega \text{ cm}$ では、総電荷量が約 200mC 以上で総電荷量が等しくても他の基板に比べて膜厚が薄いことがわかる。n-Si 基板に SiO₂ 膜が成長すると Si-SiO₂ 界面に空乏層が生じ、酸化膜中にかかっていた電圧が空乏層に分圧される。そのため、イオン泳動を促進する酸化膜中の電界が弱められ、膜成長が遅くなったと考えられる。しかし、n-Si, $\rho=0.0134-0.0178 \Omega \text{ cm}$ は p-Si と同等の膜成長特性が得られている。低抵抗場合、空乏層幅が狭くなることでほとんど影響を及ぼさなかったと考えられる。

基板中のキャリア数を増加させることでの膜成長速度の向上をねらい、自由電子レーザを Si 基板裏面に照射しながら陽極酸化を行った。図 9 に酸化反応中の回路電流を示す。この結果から波長 1.1 μm および 1.0 μm では電流が他のものに比べて大きくなっており、膜成長速度の向上が見られた。しかし、これがレーザの及ぼす影響であるかはわかっておらず現在検討中である。

【まとめ】

陽極酸化法では Si イオンならびに酸化種が移動し、酸化反応が起きる。その電気的特性は熱酸化膜に比べて劣るが、熱処理を行うことで、水素が脱理し熱酸化膜に劣らぬ特性が得られることがわかった。n-Si, 高抵抗の基板では、p-Si に比べて酸化膜の成長が遅くなるが低抵抗の基板では、p-Si と同様に成長することがわかった。

自由電子レーザを Si 基板に照射しながら陽極酸化を行ったが、レーザの及ぼす影響については、まだわかっておらず、今後更なる研究が必要である。

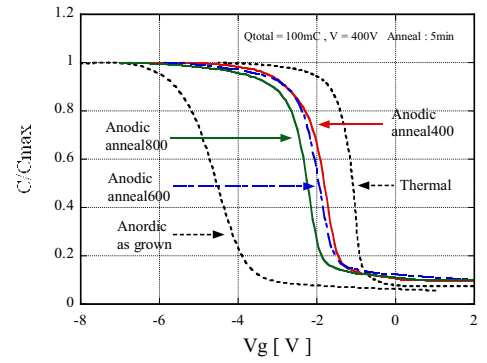


図 5 高周波 C-V 特性

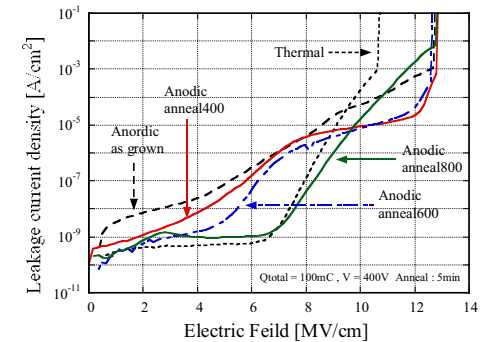


図 6 リーク電流特性

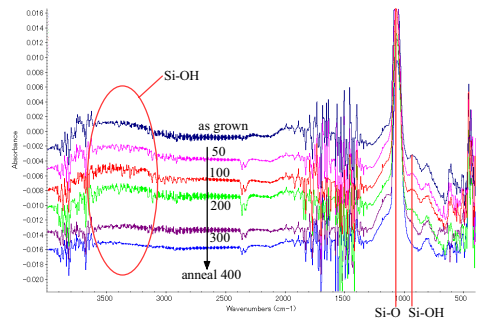


図 7 赤外線吸収スペクトル

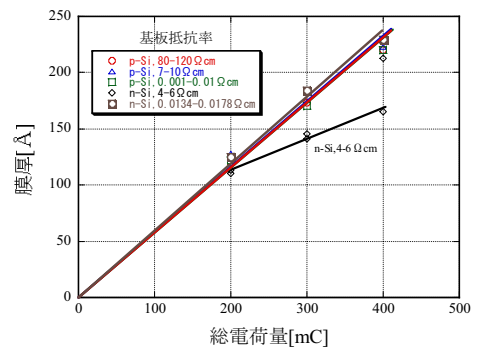


図 8 酸化膜成長特性

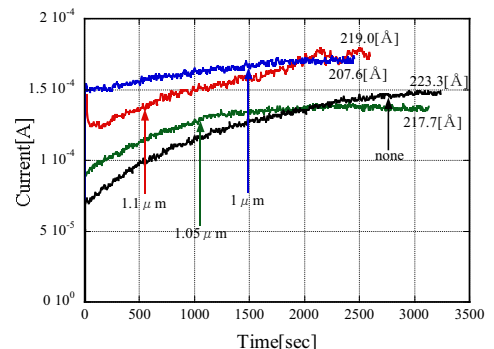


図 9 回路電流

FEL 波長 2.94 μ m の歯質削除効果について

○岩井啓寿¹、福嶋千春²、神谷直孝³、佐藤 勇⁴、池見宅司³

日本大学松戸歯学研究科¹、日本大学松戸歯学部附属歯科病院²、日本大学松戸歯学部保存学I講座³、日本大学量子科学研究所⁴

【緒言】

近年、歯科領域において各種レーザーが市販されるようになり、臨床でレーザーを使用する頻度が高くなっている。現在、本邦において高出力レーザーは15%以上の診療室で用いられているといわれている。周知のことではあるが、レーザーは波長の違いによって被照射体に与える影響は異なり、一般的には被照射体の吸収波長を調べ、その目的に応じた波長を有するレーザー機器を使用しなければならない。したがって、歯科臨床では波長別にすると4種類のレーザーが主に用いられており、それらの種類と用途は、波長480nmのアルゴンレーザーがコンポジットレジンの重合や歯質の漂白に、840nmの半導体レーザーは軟組織の切除に、1.06 μ mのネオジウムヤグレーザーは口腔内での金属の溶接や硬組織削除、2.94 μ mのエルビウムヤグ (Er-YAG) レーザーは硬組織削除、そして10.6 μ mの炭酸ガスレーザーは軟組織の切除や硬組織の強化に主に用いられている。

自由電子レーザー (FEL) はそれらの波長を自由に選択することができる利点を有しており、近未来的にはこのような生体の硬組織、軟組織さらには金属と幅広い応用が求められる分野において、重要な役割を果たすものと予想される。

Er-YAG レーザーの波長 2.94 μ m は歯質の主成分であるハイドロキシアパタイトの水成分に作用して、歯質を削除すると報告されており、市販されているレーザーの中で最も歯質削除能に優れていることから、主として窩洞形成に用いられている。

一方、自由電子レーザーは任意の波長を選択して発振できるが、パルス幅等も市販のEr-YAG レーザーとは異なり、歯質に与える影響は異なるものと考えられる。そこで、今回、演者らは日本大学理工学部所有のFELを使用する機会を得たので、ウシの歯を使用して、市販のEr-YAG レーザーとFELの照射総エネルギー量を1.5Jとした際のエナメル質と象牙質に与える歯質削除深さと削除面の性状を調べることを目的として実験を行った。

【材料および方法】

ウシの歯を用い、唇面のエナメル質および象牙質を平坦に削除してインペリアルラッピングフィルム1 μ m (3M) にて最終研磨し、健全エナメル質 (SE) と健全象牙質 (SD) を得た。さらに、それらを10%ギ酸に2時間浸漬して人工的に脱灰した脱灰エナメル質 (DE) と脱灰象牙質 (DD) を作製し、これらの4種類を被照射体として実験に供した。

市販のEr-YAG レーザーはアドベールTM (モリタ) を用い、照射条件は30、50、100、250mJ/pulse、3Hzにて総エネルギー量が1.5Jとなるように、無注水で被照射体に接触させながら照射した。

FELに関しては、波長2.94 μ m、8mJ/pulse、2Hzにて前述と同様に総エネルギー量が1.5Jとなるようにして被照射体に非接触で照射した。削除深さは精密表面形状測定器 (LT-8010: キーエンス) にて測定し、削除深さを比較検討した。被照射体の削除面の観察はイオンコーター (E-1030: 日立) にて金蒸着後、走査電子顕微鏡 (SEM S-2150: 日立) で行った。

【結果ならびに考察】

本実験条件において、Er-YAG ではエナメル質の削除はほとんど測定されず、象牙質の削除に有効であることが示され、1pulse 当たりの照射エネルギーが大きくなるほど深い削除深さが得られた。特に、DD において削除深さが深くなる傾向を示した。これは象牙質の脱灰では、コラーゲン等の有機質が表面に多く存在して保水されていると同時に脆弱になったハイドロキシアパタイトが存在しているために、このような現象が生じたものと考えられ、脱灰された病的な象牙質を有効に除去できる可能性が示唆された。FEL に関しても、DD において Er-YAG の 30mJ/pulse と同程度の削除深さが得られ、FEL では 8mJ/pulse であることを勘案すると、ピーク出力や照射エネルギー密度の違いによって、照射エネルギーが低くても Er-YAG の 30mJ/pulse と同等の削除が認められたものと推測された。

FEL では DE において最も削除深さが深くなった。特に、DE に関しては Er-YAG で削除が認められず、FEL との違いが顕著に示された。Er-YAG がハイドロキシアパタイトを破壊する過程は、その水成分が急激に熱せられて膨張し、冷却することによる急激な収縮で爆発的に破壊されると報告されており、脱灰によりチョーク状となったエナメル質の状態ではこの様な膨張と収縮が周囲のハイドロキシアパタイトに影響を及ぼすことが少なかったのではないかと考えられる。一方、FEL に関しては、前述と同様にピーク出力が高いために脱灰エナメル質の深部までレーザー光が到達して削除深さが深くなったものと推測された。

SEM 写真においては、FEL に関して全ての試料で鋭利な削除形態が観察されたが、Er-YAG ではエナメル質の表層に亀裂が観察され、象牙質においては熱変性により生じたと考えられる鱗片状の構造が観察された。特に、DE の照射痕の周囲には溶岩状の構造物が観察された。これらのことは、Er-YAG では歯質の削除時に波長特性だけでなく、熱の影響についても考える必要があるものと考えられ、FEL では被照射体に与える影響は波長特性が主として現れたものと考えられた。これらのことは、両者のパルス幅の違いが考えられ、それに伴うピーク出力の違いが歯質に影響したものと推測され、同一の波長を有するレーザーでもマイクロパルスの性状で被照射体に与える影響が異なることが判明した。

【結論】

1. Er-YAG レーザーでは本実験条件において、エナメル質に対する削除能がほとんど認められず、特に脱灰エナメル質では削除深さが得られなかった。象牙質では 1 パルス当たりの照射エネルギーが大きくなるほど高い削除能が得られた。
2. FEL では Er-YAG レーザーと逆に脱灰エナメル質において、高い削除能が得られ、健全エナメル質においても 60 μ m 程度の削除深さが得られた。
3. Er-YAG レーザーの SEM 所見では、エナメル質表面において削除された辺縁に亀裂が観察され、象牙質の照射面には熱変性したと考えられる鱗片状の構造物が観察された。
4. FEL の SEM 所見では、エナメル質ならびに象牙質の健全あるいは脱灰試料において、熱変性と考えられる構造物は観察されず、いずれの辺縁も鋭利に削除された痕が観察された。

本研究の一部は平成 12 年度学術フロンティアの補助により行った。

LEBRA-FEL 照射による歯のエナメル質と象牙質の変化

Changes in Crystals of Dental Enamel and Dentin by Laser Irradiation of LEBRA-FEL

佐藤由紀江, 寒河江登志朗, 谷本安浩(日本大学松戸歯学部),
早川恭史, 田中俊成, 早川 建, 森 啓, 桑田隆生, 野上杏子, 境 武志, 佐藤 勇
(日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設 LEBRA)

はじめに

歯科医療におけるレーザーの利用は急速に拡大している。歯科治療のひとつにう蝕の切削があるが、2.94 μm の Er:YAG レーザー照射で効果的にう蝕を削除できると言われている。従来、歯の切削はエアータービンによる回転切削が主流になっていたが、レーザーの出現により、痛みの軽減、不快感な音の削減により、患者の心身的な負担が減ると期待されたが、未だ、エナメル質、象牙質に与える影響も明確にされておらず、また切削に適した条件も明らかにされていない。FEL(自由電子レーザー)は固体レーザーあるいは EXIMA レーザーなどとは違った特性を有するレーザーで、レーザーと物質の ablation 作用を研究するうえで重要な情報を与えてくれる可能性があり、近年多分野で利用研究が進んでいる。LEBRA-FEL の特徴のひとつに 6 μm ~1 μm の広帯域の波長可変があげられる。今回の実験では、2.94 μm の同波長に調整した LEBRA-FEL と Er:YAG レーザーの照射実験を行い、レーザー性質による ablation 効果を形成された pit の大きさの計測ならびに微小部X線回折法で比較した。また、LEBRA-FEL の波長を 2.94 μm から長波長側と短波長側にそれぞれずらしたときの ablation 効果を比較した。

材料と方法

LEBRA-FEL の照射実験には 10%ホルマリン液に浸漬したヒトの抜去歯を low speed diamond saw, Isomet, Buhler Co., USA, で約 1.5 mm の厚さに縦断薄切し、中砥石、仕上砥石により歯面を研磨・滑沢にしたものを用いた。LEBRA-FEL は 125 MeV の加速器から出てくる電子線を undulator を通過させて自由電子レーザー(FEL)を発振させている。加速電圧と Undulator のピッチを変更することで、波長を 0.87 μm から 6.0 μm の短波長側のレーザーを出すことができる。LEBRA-FEL の特徴ならびに発生についてはこの報告書に別掲されている報告に詳しく述べられている。照射実験は 2Hz、波長は 2.94 μm あるいは指定した波長で、エネルギー値 3~10 mJ(照射面)の条件で Fig.1 にあるような反射鏡と収束レンズを組み合わせた装置で行った。



Fig.1. LEBRA-FEL 照射実験装置。
左側部分に反射鏡と収束レンズ、試料微動装置が設置されている。右側に照射回数制御装置、照射エネルギー監視装置が置かれている。

結果と考察

Fig.2 は LEBRA-FEL 照射による歯のエナメル質と象牙質での Pit 形成を示した。照射回数に応じて形成された Pit の深さが深くなる様子が明らかである。Pit の大きさの計測をレーザー深度計、キーエンス社、を用いて行った結果を Fig.3 に示した。波長 $2.94 \mu\text{m}$ の自由電子レーザー (LEBRA-FEL) は 3mJ/pulse の微弱なエネルギーで歯に対して効果的な ablation を示した。また、エナメル質は 1 パルス照射で直径約 $100 \mu\text{m}$ 、深さ約 $50 \mu\text{m}$ の窪みが形成された。Fig. 4 に Er:YAG レーザー照射実験装置を用いた結果を示した。この場合、LEBRA-FEL 照射の場合と異なり、照射で形成された pit には“scorch(焦げ)”が認められた。一方、LEBRA-FEL 照射部位のエナメル質と象牙質には“焦げた”痕跡を認める着色物は認められなかった。

また Fig.5 に示したように、LEBRA-FEL 照射部位のエナメル質結晶にはほとんど変化が見られなかった。これらのことから、LEBRA-FEL は熱的 ablation よりも機械的 ablation が優勢であると推察された。

Fig.6 には LEBRA-FEL の特徴である波長可変を利用して、 $2.54 \mu\text{m}$ から $3.00 \mu\text{m}$ まで波長を変えた場合の照射の効果を見たものである。これまで多くの研究者の報告にあるように、波長 $3.00 \mu\text{m}$ 付近で pit 形成が最大となっているようである。波長と歯の ablation 効果については、現在さらに $2.00 \mu\text{m}$ から $4.00 \mu\text{m}$ まで波長範囲を広げて実験を行っており、やはり $3.00 \mu\text{m}$ 付近で最大の ablation 効果を示すことが明らかとなってきた。しかし、エナメル質の ablation 効果の極大をしめす波長と象牙質とでは僅かであるが異なっていることも明らかとなってきた。この問題については現在研究を進めている段階である。

まとめ

LEBRA-FEL の歯に対する ablation 効果は同波長の Er:YAG レーザーとは異なり、pit 形成能は大きい熱作用は少なかった。歯に対する ablation 効果は波長依存性のものであることを実証できた。

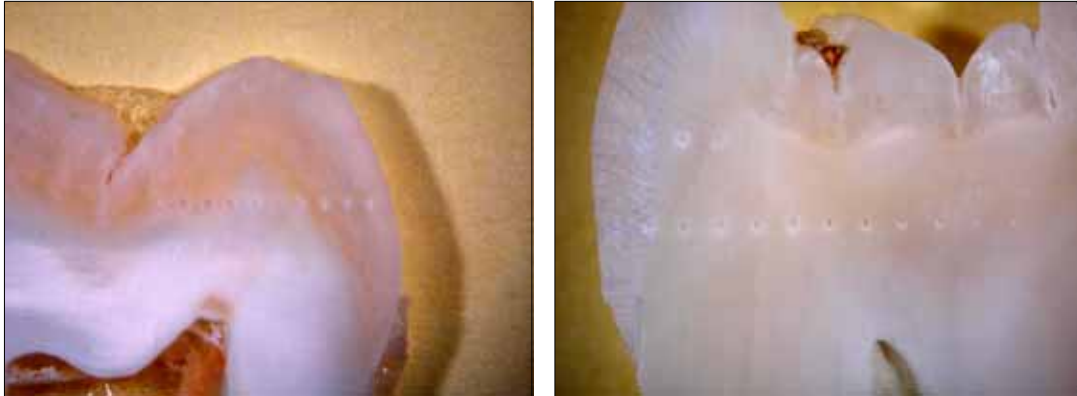


Fig.2. LEBRA-FEL レーザー照射実験(2004/3/11)、材料:ヒトの健全歯。レーザー照射回数:(左)1~19 発/spot (奇数発)、(右)エナメル質(19)~、象牙質~エナメル質(1)。5mJ/spot

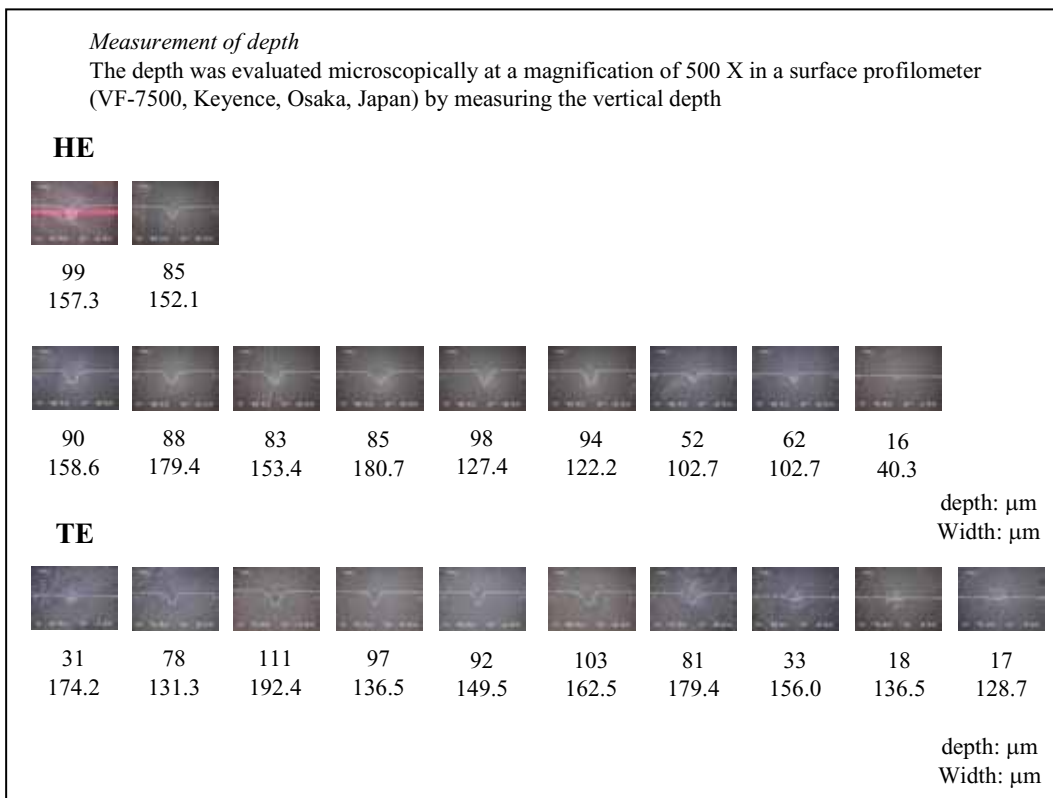


Fig.3. Fig.2 で示された LEBRA-FEL 照射で形成された Pit の計測結果。

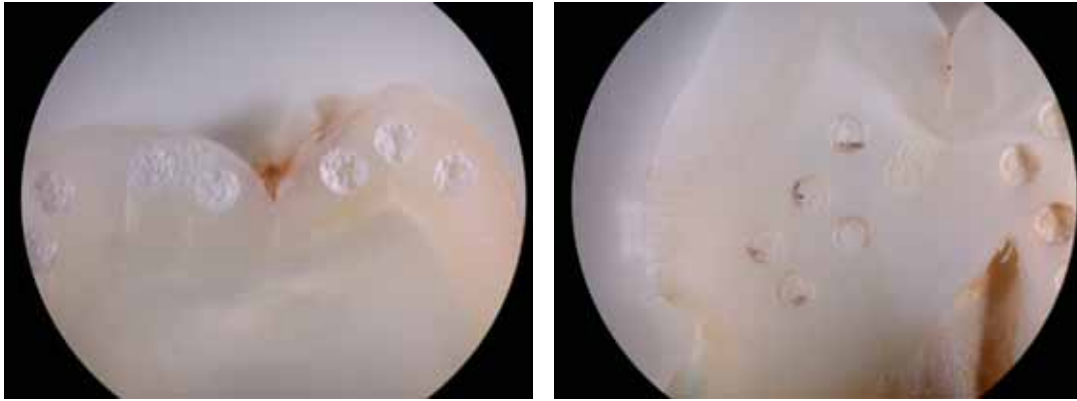


Fig. 4. 2.94mm Er:YAG Lased Human Tooth Enamel (left) and Dentin (right). Dentin showed scorch.

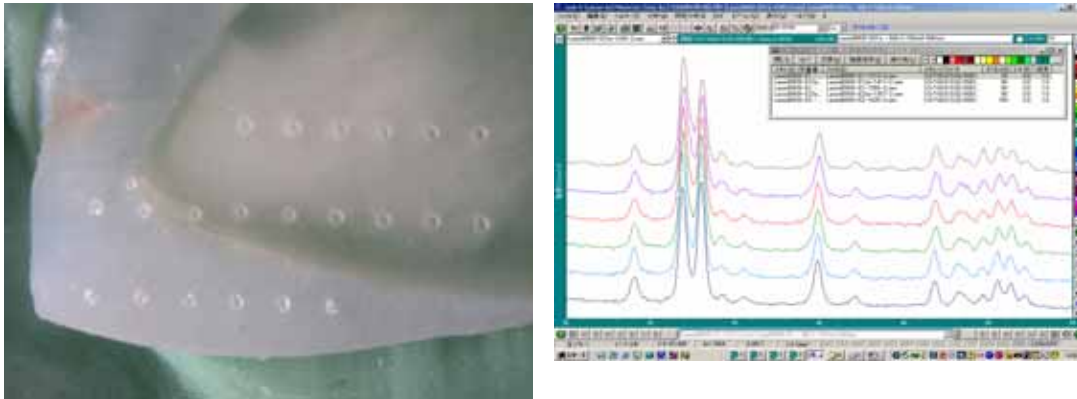


Fig. 5. Left photo showed the irradiation positions. The number of irradiation shot was on the dentin: 1, 1, 2, 2, 3, 3, at the Enamel-EDJ-Dentin: 1, 1, 1, 1, 1, 2, 2, 3, 3, and on the enamel: 1, 1, 2, 2, 3, 3. Right figure showed that there was no appreciable change in the X-ray diffraction patterns for the irradiated and un-irradiated enamel regions.

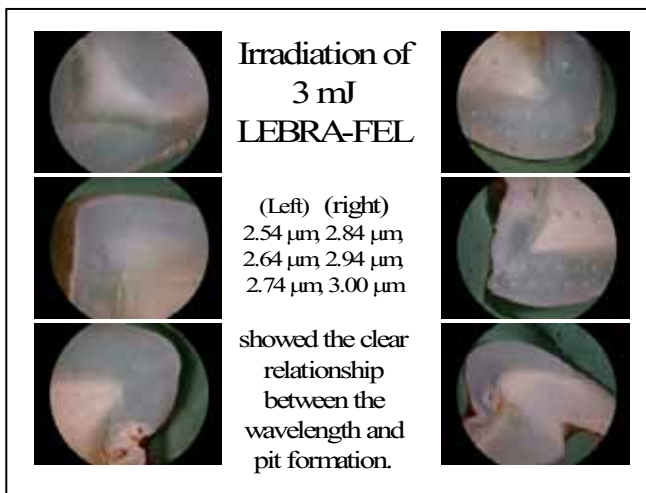


Fig.6. The irradiation effects on the human tooth surface by varying the wavelength from 2.54 μm to 3.00 μm using LEBRA-FEL.

過酸化水素処理による骨芽細胞様細胞株 MC3T3-E1の bone nodule 形成への影響

—石灰化物の結晶学的検索—

佐藤 俊紀¹・寒河江 登志朗^{2,5,6}・田中 陽子^{3,5}
安孫子 宜光^{4,5,6}・妻鹿 純一^{3,5}

¹日本大学大学院松戸歯学研究科 歯学専攻

²日本大学松戸歯学部 第Ⅱ解剖学講座

³日本大学松戸歯学部 障害者歯科学講座

⁴日本大学松戸歯学部 生化学講座

⁵日本大学松戸歯学部 口腔科学研究所

⁶日本大学量子科学研究所 電子線利用研究施設

緒言

骨組織では、胎児期から老年期まで生涯を通じて骨芽細胞による骨形成と、破骨細胞による骨吸収が常に行われている。正常な生体では骨形成と骨吸収のバランスが保たれているが、加齢とともに骨量が減退していくことはよく知られている^{1,2}。酸化ストレスによる病態研究が進み、骨量減退の原因として活性酸素による老化が関与していることが示唆されている³⁻⁵。一方老化における骨芽細胞の機能低下には、細胞外マトリックスの障害による原因⁶と、細胞自体の障害による原因⁷があり、そのメカニズムの解明が望まれている。

これまで加齢における骨量の変化についての報告として *in vivo*におけるbone mineral density (BMD)を用いた研究^{1,3,4}が盛んに行われている。これに対し、*in vitro*における報告では、骨芽細胞特有の遺伝子発現を比較解析することで、酸化ストレスと加齢による骨芽細胞の機能低下を解明する試み⁶⁻⁸が行われている。最近、Akkus^{9,10}らはラットにおいて加齢により骨の結晶性が変化することから BMDのみでなく骨の評価法として結晶性の必要性を報告している。しかしながら老化による骨の結晶性の変化についてはまだ不明な点が多い。

本研究は、Von Kossa 染色法、Micro X-ray diffraction (Micro-XRD)¹¹ およびパラメトリック X線放射 (PXR)¹²を用い、生体内で常時発生される活性酸素の一つである過酸化水素 (H₂O₂) で骨芽細胞様細胞株である MC3T3-E1細胞を処理し、細胞層に形成される Bone nodule に及ぼす影響について検討したものである。

材料および方法

細胞及び継代培養法

細胞は、Kodama らによりマウスの頭蓋骨から採取し株化され、他の細胞系への分化能をもたない骨芽細胞様細胞株である MC3T3-E1 細胞¹³を用いた。

培養は 75 cm² 組織培養フラスコ (Corning, U.S.A.) を用い、37°C に保持し、5%の CO₂ を含むインキュベーター内で行った。培地には、10%牛胎児血清 (FBS)、及び 5mM HEPES、抗生物質: 50μg/ml ゲンタマイシン硫酸塩(Sigma MO, U.S.A.), 0.3 μg/ml アンホテリシン B (Flow Laboratories, USA), 100 units/ml ペニシリン G カリウムを含むα-MEM (Gibco, NY, U.S.A.) を用い、培養液は週 3 回交換した。

H₂O₂ の濃度による影響

細胞を、24 well plate に、1 wellにつき 1 x 10⁵細胞播種した。24時間後コンフルエントに達したところで、無血清のα-MEMにて 3回 wellを洗浄したあと無血清のα-MEMで希釈した濃度300, 400, 500, 600 μMの H₂O₂ (Mitsubishi chemical, Japan)を 3時間作用させた。その後、無血清のα-MEMにて 3回 wellを洗浄したあと石灰化培地として10%FBSと抗生物質、50 μg/ml の アスכולビン酸 (VC)と 10 mM β-グリセロリン酸 (β-GP)を含む α-MEM培地にて、24時間インキュベートした。次いで、培地の 10%量の alamar blue (Serotec Ltd, UK)を各wellに添加しインキュベーター内で 2時間インキュベートしたのち、550 nm 及び630nmにお

ける吸光度を multiplate reader (MTP-32; Corona, Japan). により計測し、細胞代謝活性はこれらの吸光度から算出した¹⁴⁾。

bone nodule 形成能の検討

Von Kossa 染色

24 well plate の 1 well に細胞を 1×10^5 ずつ播種した。24 時間後コンフルエントに達したところで、前述の処理法と同様、 $400 \mu\text{M}$ の H_2O_2 を 3 時間作用させ、石灰化培地にて 30 日間培養を継続した。その後、Von Kossa 法¹⁵⁾を用いて Bone nodule を染色した。

30 日間培養後、上清を取り除き PBS(-)(Gibco, NY, U.S.A.)にて細胞を 2 回洗浄した後、10% 中性ホルマリンを 30 分間作用させ、固定した。精製水にて 3 回洗浄したのち、10 分間遮光下にて 5% 硝酸銀水溶液 (Sigma, Japan) と反応させた。さらに精製水にて 3 回洗浄した後、蛍光灯下にて 30 分間感光させた。

染色された Bone nodule は、実体顕微鏡 (Olympus, Japan) 下に倍率 40 倍にて観察し、画像はデジタルカメラにて撮影した。

Micro-XRD

細胞を、 100mm^2 細胞培養プレートに 1×10^6 ずつ播種した。24 時間後コンフルエントに達したところで、前述の方法により H_2O_2 処理を行い、石灰化培地にて 30 日間培養した。

30 日間の培養後、上清を取り除き PBS (-) にて細胞を 2 回洗浄した後、10% 中性ホルマリンを 30 分間作用させ、固定した。精製水にて 3 回洗浄した後、各 Bone nodule は以下に述べる 3 つの方法にて Micro-XRD 回折実験を行った。

第一の方法では、 100mm^2 細胞培養プレートの壁を発砲スチロールカッター (Mont Blanc, Japan) を使用して除去したのを用い、プレート上の Bone nodule に前処理を加えることなく解析した。第二の方法では、Bone nodule を慎重に培養プレートから剥がしとり、スライドガラス上に載せたのを用い解析した。第三の方法では、Bone nodule を慎重に培養プレートから剥がしとり、銀メンブレンフィルター (milipore, U.S.A) 上に載せたのを用い¹⁶⁾、銀による特異的なピークに対する Bone nodule のピークの比較を行った。

Micro-XRD は、RINT-2500 湾曲 PSPC 型微小部 X 線回折装置 (Rigaku, Japan) を用い、測定及び回折実験を行った。X 線発生装置: リガク回転対陰極型強力 X 線発生装置, 対陰極: Cu, 加速電流: 300mA, X 線モノクロメーター: グラファイト結晶, X 線波長: 1.542 \AA ($\text{CuK}\alpha$), 試料揺動; 入射 X 線方向に対する傾き (ω): 18 度固定、 ω に直交方向の傾き (χ): -20.0 度 \sim 20 度, 試料回転 (ϕ): -1.0 度 \sim 1.0 度、検出器: リガク湾曲 PSPC (Position Sensitive Proportional Counter), 測定角度範囲: 0 度 \sim 160 度 (2 θ), PHA (Pulse Height Analyzer): 標準設定, 計測時間: 20 分, データ解析ソフト: JADE Ver.5.0+ (MDI, U.S.A) を用いた。なお、 100mm^2 細胞培養プレート上の bone nodule およびスライドガラス上の bone nodule に対し、直径 $50 \mu\text{m}$ の楕円形 (X 線ビーム径 $50 \mu\text{m}$, 入射角度 18 度) の X 線ビームコリメーターを、銀メンブレンフィルター上の bone nodule の回折実験には直径 $100 \mu\text{m}$ の楕円形 (X 線ビーム径 $100 \mu\text{m}$, 入射角度 18 度) の X 線ビームコリメーターを使用した。

PXR

細胞を、 100mm^2 細胞培養プレートに、 1×10^6 ずつ播種した。前述の方法により H_2O_2 処理を行い、石灰化培地にて 30 日間培養後、細胞は上清を取り除き PBS (-) にて 2 回洗浄した後、10% 中性ホルマリンを 30 分間作用させることで固定した。精製水にて 3 回洗浄したのち、 100mm^2 細胞培養プレートの壁を前述の方法で除去することによってプレート上の Bone nodule に前処理を加えることなく解析した。PXR は、日大電子線利用研究施設 (LEBRA) にて開発された自由電子レーザー (FEL) 用 125 MeV 電子線形加速器をベースとした装置⁷⁾を用いた。

このシステムは真空層に収められた 2 台のゴニオメータで制御される Si(111)-Si(111) で構成されている。現在 7 keV から 18 keV の範囲でのイメージングに成功しているため、本実験では低出力の 7 keV と 18 keV にてイメージングを行った。

PXR ビームラインにおける電子ビームの仕様は次の通りである。

加速周波数: 2856 Mhz、最大電子エネルギー: 100 MeV、エネルギー分散: 1%、ビーム電流: 100 mA、マクロパルス幅: 20 fs、繰り返し: 2.5 Hz、平均電流: 5 fA、規格化エミッタンス: $< 20/4 \text{ mm mrad}$

結果

H₂O₂ の濃度による影響

600 μ M の H₂O₂ を 3 時間作用させた群では、細胞増殖率が有意に低くなり、細胞数の低下が認められた。しかし、300 μ M、400 μ M および 500 μ M の H₂O₂ を 3 時間作用させた群では、コントロール群との間に差は認められなかった。したがって、本実験における MC3T3-E1 細胞の機能への影響を検討するための H₂O₂ 作用濃度を、400 μ M で行うこととした。(データ未公開)

Von Kossa 染色

Von Kossa 法を用いて染色された Bone nodule 像を Fig1 に示した。Bone nodule は、H₂O₂ 作用群およびコントロール群ともに形成が認められた。しかし、H₂O₂ 作用群において、コントロール群と比較し Bone nodule 数の少ないことが認められた。

Micro-XRD

本実験における H₂O₂ 作用群とコントロール群の bone nodule の X 線回折パターンにみられるピークは、すべて生体骨の X 線回折パターン¹⁷⁾ と一致していた。しかし、H₂O₂ 作用群とコントロール群には、出現したアパタイトの回折ピークに強度の違いが認められた。

Fig.2 に、100mm² 細胞培養プレート上の bone nodule を前処理無しでそのまま用いたときのサンプル画像、及び Fig.3 に Micro-XRD 回折パターンを示した。26° (002)、32° (211、112、300)、37° (222)、40° (310) はハイドロキシアパタイト結晶の特異的な回折ピーク¹⁸⁾ である。コントロール群に比べ、H₂O₂ 作用群の 26° の回折ピークは、不明瞭である。また、コントロール群に比べ、H₂O₂ 作用群の 32°、40°、37° 付近のピークは、低いことが認められた。

Fig.4 に、スライドガラス上の bone nodule における Micro-XRD パターンを示した。Fig.2 に示した Micro-XRD 回折パターンよりも明確にハイドロキシアパタイトのピークが認められた。しかし、コントロール群に比べ、H₂O₂ 作用群の 26° の回折ピークは、不明瞭であったことがより明確となった。また、コントロール群に比べ、H₂O₂ 作用群の 32°、40°、37° の回折ピークは、低い傾向を示した。

さらに、銀メンブレンフィルター上の bone nodule における Micro-XRD 回折パターンを解析した。まず、銀に特有のピークである 38°、44°、64° のピークが、コントロール群に比べ H₂O₂ 作用群において減少しているのが認められた。さらに、コントロール群に比べ、H₂O₂ 作用群の 26° の回折ピークは、不明瞭であり、32°、40°、37° の回折ピークは、低いことが認められた。よって、H₂O₂ 作用群の Bone nodule はコントロール群に比べ、成熟度が高いことが示された。

PXR

Fig.5 に、7 keV 及び 13 keV の電圧にてイメージングしたときの PXR 像を示した。コントロール群の Bone nodule は、13 keV では像として確認することができなかった。しかし PXR の電圧を 7 keV まで下げることによって、Bone nodule の像をとらえることに成功した。

考察

本研究は老化の過程において作用すると考えられている酸化ストレスの骨形成に対する影響を解明するために行ったものであり、骨芽細胞様細胞株である MC3T3-E1 細胞を用いて、Bone nodule 形成能に H₂O₂ 処理が及ぼす影響を検討した。

細胞培養実験において骨芽細胞の形成する bone nodule は、動物実験に比べると微小である。Bone nodule の定量は、Von Kossa 法を用いて行われてきた¹⁹⁻²¹⁾。しかし、最近 Bonewald ら²²⁾ は、石灰化物の判定として Von Kossa 法のみでは不十分であると報告している。Von Kossa 法は不溶性のカルシウム、特にリン酸カルシウムの検出法であるが、硝酸銀水溶液を加えることで、カルシウムがカルシウムイオンとして溶出し、銀で置換され炭酸銀を生じさせることになる。次の段階で炭酸銀を、濃褐色に強く着色する金属銀の微粒子に還元させる方法である²³⁾ ため、直接的なハイドロキシアパタイト結晶の検出法ではなく、リンを検出することによる間接的な検出法である。ゆえに、この方法では Bone nodule の形成数は測定できるが、直接的に結晶性の比較をすることは困難である。そこで本実験において Micro-XRD を行うことで、前処理なく結晶の成熟度を比較することとした。

Mouse calvaria 由来の骨芽細胞様細胞株を用いた実験で形成された Bone nodule は Micro-XRD による解析結果から、コントロール群及び H₂O₂ 作用群ともに、骨様石灰化物であることを示した。しかし、コントロール群と H₂O₂ 作用群では、微小部 X 線回折パターンに回折ピークの大小及び明瞭性に違いがみられた。

X線回折パターンに反映される結晶の大きさは、X線が同時に回折を生じる領域のこと¹⁸⁾であり、回折ピークの強度として現れる。一方、微小部 X線回折パターンの明瞭性は結晶性を反映する。よって、今回の微小部 X線回折パターン結果は Bone nodule内に存在するハイドロキシアパタイト結晶の大きさ、量及び成熟性に比例するものである。また銀メンブレンフィルター上の Bone noduleの X線回折パターンは、コントロール群よりもH₂O₂ 作用群の方が銀の X線回折ピークが高く、生体アパタイトのピークが低かったこと。銀の回折 X線は銀メンブレンフィルターを透過することにより検出される。つまり、銀及び生体アパタイトの X線回折ピークの結果は、H₂O₂ 作用群における Bone nodule内の結晶性はコントロール群と比較して低下していることを示している。ゆえに、H₂O₂ を作用させることで MC3T3-E1細胞から形成される Bone noduleは形成及び成熟度が低下することを示しており、酸化ストレスが骨芽細胞の骨形成能に障害を及ぼす可能性を示唆している。

今後の課題として、両者の Bone noduleについて、アパタイトの組織、結晶性についてさらに詳細な検討および FTIR等による質的な解析が必要である。また、PXR は、単色性、指向性が良く、X線源における結晶を回転させることによりエネルギーを連続的に変えることができるという優れた特徴を持つ^{24,25)}。今回細胞培養プレートにて直接画像を得ることができた。今後、コントロール群及びH₂O₂作用群における詳細な検討を行っていく予定である。

謝辞

今回利用した微小部エックス線解析装置およびPXRは日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設(LEBRA)に設置したものである。佐藤 勇 教授,早川 建 教授, 田中 俊成 教授, 早川 恭史 講師をはじめ LEBRAの関係者各位に深く謝意を表す。

本研究費の一部は文部科学省 平成 1 3 年度学術フロンティア推進事業によった。

参考文献

1. Blain H, Vuillemin A, Blain A, Guillemain F, Talance ND, Doucet B, Jeandel C. Age-related femoral bone loss in men: evidence for hyperparathyroidism and insulin-like growth factor-1 deficiency. *J Gerontol A Biol Sci Med Sci.* 2004 Dec;59(12):1285-9.
2. Tolmasoff JM, Ono T, Cutler RG. Superoxide dismutase: correlation with life-span and specific metabolic rate in primate species *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.* 77: 2777-2781, 1980
3. Sohal RS, Allen RG. Oxidative stress as a causal factor in differentiation and aging: a unifying hypothesis, *Exp. Gerontol.* 25, 499-522, 1990
4. Blain H, Vuillemin A, Blain A, Guillemain F, Talance ND, Doucet B, Jeandel C. Age-related femoral bone loss in men: evidence for hyperparathyroidism and insulin-like growth factor-1 deficiency. *Gerontol A Biol Sci Med Sci.* 2004 Dec;59(12):1285-9.
- 5. Knopp E, Troiano N, Boussein M, Sun BH, Lostritto K, Gundberg C, Dziura J, Insogna K. The Effect of Aging on the Skeletal Response to Intermittent Treatment with PTH. *Endocrinology.* 2004 Dec 23
6. Suzuki H, Hayakawa M, Kobayashi K, Takiguchi H, Abiko Y. H₂O₂-derived free radicals treated fibronectin substratum reduces the bone nodule formation of rat calvarial osteoblast. *Mech Ageing Dev.* 1997 Nov;98(2):113-25.
7. Bai XC, Lu D, Bai J, Zheng H, Ke ZY, Li XM, Luo SQ. Oxidative stress inhibits osteoblastic differentiation of bone cells by ERK and NF-kappaB. *Biochem Biophys Res Commun.* 2004 Jan 30;314(1):197-207.
- 8) Mody N, Parhami F, Sarafian TA, Demer LL. Oxidative stress modulates osteoblastic differentiation of vascular and bone cells. *Free Radic Biol Med.* 2001 Aug 15;31(4):509-19.
9. Akkus O, Adar F, Schaffler MB. Age-related changes in physicochemical properties of mineral crystals are related to impaired mechanical function of cortical bone. *Bone.* 2004 Mar;34(3):443-53.
10. Akkus O, Polyakova-Akkus A, Adar F, Schaffler MB.

- Aging of microstructural compartments in human compact bone.
11. Heidi A. Declercq, Ronald M.H. Verbeeck, Leo I.F.J.M. De Ridder, Etienne H. Schacht, Maria J. Cornelissen
Calcification as an indicator of osteoinductive capacity of biomaterials in osteoblastic cell cultures
Biomaterials. ARTICLE IN PRESS
12. Y. Hayakawa *, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka
Simulations to the project of a PXR based X-ray source composed of an electron linac and a double-crystal system
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B. 2005; 227 32-40
13. Kodama H, Amagi Y, Sudo H, Kasai S, Yamamoto S. Establishment of clonal osteogenic cell line from newborn mouse calvaria
Jpn J Oral Biol, 23, 899-901, 1981
14. Hamid R, Rotshteyn Y, Rabadi L, Parikh R, Bullock P.
Comparison of alamar blue and MTT assays for high through-put screening.
Toxicol In Vitro. 2004 Oct;18(5):703-10.
15. Sheehan, D.C.
Theory and Practice of Histotechnology. 2nd ed.
Mosby, St. Louis, 1980.
16. Dufresne A, Loosereewanich P, Begin R, Dion C, Ecobichon D, Muir DC, Ritchie AC, Perrault G.
Tentative explanatory variable of lung dust concentration in gold miners exposed to crystalline silica.
J Expo Anal Environ Epidemiol. 1998 Jul-Sep;8(3):375-98.
- 17) □ Rogers K. D, Daniels P.
An X-ray diffraction study of the effects of heat treatment on bone mineral microstructure □
Biomaterials. 2005 Apr;26(12):1349-57.
18. Ohgushi H, Dohi Y, Katuda T, Tamai S, Tabata S, Suwa Y.
In vitro bone formation by rat marrow cell culture.
J Biomed Mater Res. 1996 Nov;32(3):333-40.
19. Itoh F, Aoyagi S, Furihata-Komatsua H, Aoki M, Kusama H, Kojima M, Kogo H
Clodronate stimulates osteoblast differentiation in ST2 and MC3T3-E1 cells and rat organ cultures
European Journal of Pharmacology 2003: 477: 9– 16
20. Maeda H, Wada N, Nakamuta H, Akamine A.
Human periapical granulation tissue contains osteogenic cells..
Cell Tissue Res. 2004 Feb;315(2):203-8. Epub 2003 Nov 26
21. Leskela HV, Risteli J, Niskanen S, Koivunen J, Ivaska KK, Lehenkari P.
Osteoblast recruitment from stem cells does not decrease by age at late adulthood.
Biochem Biophys Res Commun. 2003 Nov 28;311(4):1008-13.
22. Bonewald LF, Harris SE, Rosser J, Dallas MR, Dallas SL, Camacho NP, Boyan B, Boskey A.
von Kossa staining alone is not sufficient to confirm that mineralization in vitro represents bone formation.
Calcif Tissue Int. 2003 May;72(5):537-47.
23. Warren BE: X-ray Diffraction, 251-275, Dover Pub, New York, 1969
24. Fiorito RB, Rule DW, Piestrup MA, Maruyama XK, Silzer RM, Skopik DM, Shchagin AV..
Polarized angular distributions of parametric x radiation and vacuum-ultraviolet transition radiation from relativistic electrons.
Phys Rev E Stat Phys Plasmas Fluids Relat Interdiscip Topics. 1995 Apr;51(4):R2759-R2762.
25. Fiorito RB, Rule DW, Maruyama XK, DiNova KL, Evertson SJ, Osborne MJ, Snyder D, Rietdyk H, Piestrup MA, Ho AH.
Observation of higher order parametric x-ray spectra in mosaic graphite and single silicon crystals.
Phys Rev Lett. 1993 Aug 2;71(5):704-707.

Figures

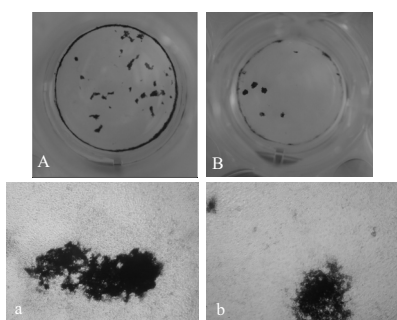


Fig.1 The bone nodule formation on H_2O_2 -treat and non-treated cells. Bone nodule formation was observed by Von Kossa staining. One –fold magnification view of (A) non-treated group and (B) H_2O_2 -treated group. And 40-fold microscopic observation view of (a) non-treated group and (b) H_2O_2 -treated group. Number of bone nodule by MC3T3-E1 cells treated with H_2O_2 was less than that in control

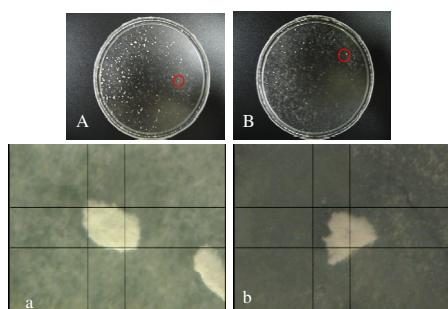


Fig.2 One –fold magnification view of (A) non-treated and (B) H_2O_2 -treated group. And microscopic observation view of (a) non-treated and (b) H_2O_2 -treated nodule.

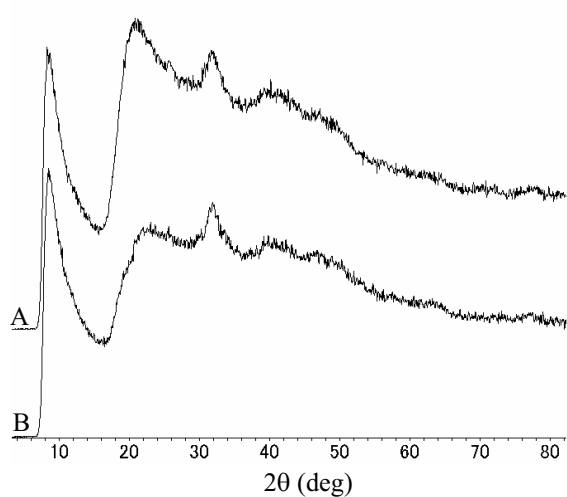


Fig.3 Micro -XRD patterns of bone nodule on the culture plate. (A) non-treated and (B) H_2O_2 -treated nodule. The horizontal axis is diffraction angle from 18 to 80 degree (2θ). The vertical axis is diffraction intensity in arbitrary scale.

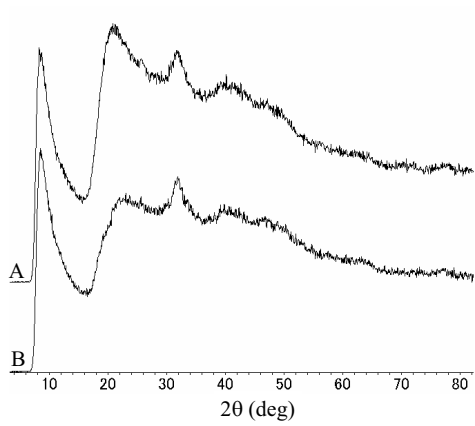


Fig.4 XRD patterns of bone nodule on the slide glass.

(A) non-treated and (B) H_2O_2 -treated nodule. The horizontal axis is diffraction angle from 18 to 80 degree (2θ). The vertical axis is diffraction intensity in arbitrary scale.

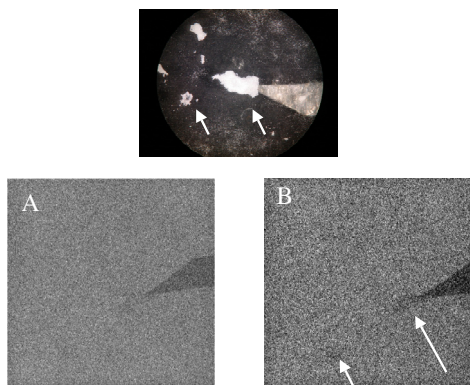


Fig.5 PXR image of bone nodule.

Upper image is microscopic observation view of Bone nodule (group of control). And lower is the PXR image; (A) 13 keV (B) 7 keV

針状粉体を出発原料とした高アスペクト比ペロブスカイト粒体の合成および評価

内木場 文男・渡辺 誠

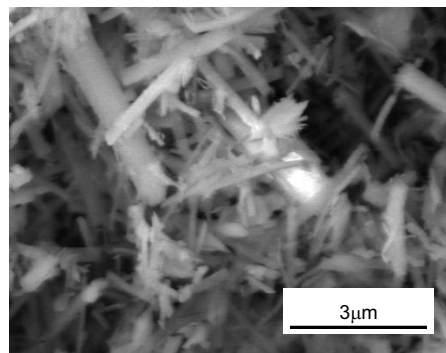
日本大学理工学部（千葉県船橋市習志野台7-24-1）

1. 緒言

$K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ はペロブスカイト型結晶構造をとり、室温では正方晶を示し誘電体、圧電体への応用が期待されている。 $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3-K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ 系においては電気機械結合係数 K_p の値はおおむね 0.3、板状晶 $Bi_4Ti_3O_{12}$ をテンプレートに用い、これを配向させた場合 0.4 程度が報告されている。著者らは、これらの研究を踏まえたうえで、テンプレート材料に $K_2Ti_4O_9$ を用いることを試みた。 $K_2Ti_4O_9$ は非常にアスペクト比の大きな針状晶として知られている物質であり、そのため、合成によって得られるペロブスカイト $K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ においても大きなアスペクト比が期待された。また、 $K_2Ti_4O_9$ に単純に当モル比の Bi_2O_3 を添加することによって反応式においては単純化されることから、 $K_2Ti_4O_9$ をテンプレートとして反応が進むこともあわせて期待された。本研究において、実際に針状粉体を合成でき、また、粉体中の配向性についても考察したのでそれらの説明をおこなう。

2. 実験手順

テンプレートに用いた $K_2Ti_4O_9$ の電子顕微鏡 (SEM) 像を図 1 に示す。非常にアスペクト比の高い針状形状が見て取れる。この粉体に Bi_2O_3 を秤量し、湿式混合を行った。その際に $K_2Ti_4O_9$ の粉砕による形状の変化を極力避けるために、粉砕メディアは用いなかった。24 時間の混合を経て、金属バット中に全量を回収し乾燥を行った。全量回収は $K_2Ti_4O_9$ のカリウムイオンの溶失を極力防ぐ目的で行った。乾燥後に白金坩堝に試料を入れ、 950°C で 2 時間の熱処理を行った。得られた試料は焼結が進んでおらず、容易に塊をほぐすことが可能な状態であった。

図 1 $K_2Ti_4O_9$ 針状晶の微細構造

この合成直後の状態での試料を一部とりおいた。次にこの試料を湿式で粉砕を行ったものも評価に供した。さらに、合成直後の試料を用いて、ドクターブレード法によって、シート成形を行った。シート成形は、有機溶剤、PVB バインダー、粉体を適当な組成比で混合スラリーを得ることから行った。その際にはやはり粉体が粉砕されないように配慮して混合を施した。このスラリーを PET フィルム上に展開して、ブレードのギャップを通過させることで一定厚みのシートを得た。

これらの 3 試料について、微細構造を SEM を用いて、また、結晶構造を粉末 X 線回折法によってそれぞれ調べた。

3. 結果および考察

SEM による微細構造の観察結果を図 2 に示す。(a) は合成直後の粉体、(b) は合成粉を湿式粉砕したものの、(c) は合成直後の粉体をシート成形したものにそれぞれ対応する。針状の粉体が合成されたことがわかる。また、合成粉はテンプレートとなっている $K_2Ti_4O_9$ の形状と比較してその径が増加していることも観察

された。より詳しい解析が必要とされるが、Bi イオンが拡散して $\text{K}_2\text{Ti}_4\text{O}_9$ に取りこまれたことが示唆される。(c) においてブレードは、図の下から上に向けて通り抜けたことに対応している。粉体はブレードの移動方向にそって配向していることが観察される。

X 線回折においては、粉体試料についてはガラスホルダーに圧粉体にして固定した。また、シート成形体はホルダーにシートを数枚重ねて観測面を形成した。観測においてはほぼ単相のペロブスカイトが得られたが、異相であるチタン酸ビスマスも微弱ではあるが観測された。 Bi_2O_3 、 $\text{K}_2\text{Ti}_4\text{O}_9$ などのピークは観測されなかった。(200) に注目したものを図3に示す。(a) (b) (c) は同様に合成直後、粉碎後、シート成形後の試料にそれぞれ対応する。まず、いずれの試料においても低角度側に(002)面のピークが観測され、正方晶であることが確認された。粉碎を行った粉体(b)は(002)のピークがもっとも弱く、また写真からわかるように粒子配向がもっともすくない。これに対して、合成直後の粉体(a)はやや(002)に配向しており、シート成形試料(c)においてはより(002)に配向している。SEMの微細構造観察から、合成直後(a)の粉体においてはガラス試料に圧粉体として固定する際に観測面に平行に粉体が倒れていることになる。また、シート成形(c)の試料において、粉体は観察面に対して倒れている頻度がより大きくなるのが微細構造の観察からわかる。これらのことを考え合わせると、得られた針状粉体においてはペロブスカイトのC軸は、粉体の長手方向ではなく、径方向に対応していると解釈できる。

4. まとめ

$\text{K}_2\text{Ti}_4\text{O}_9$ の針状の形状をテンプレートに利用して、針状形状を有する $\text{K}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$ の合成に成功した。また、この粉体をシート成形し配向させるなどの処理を行った試料などを持ちてX線回折を行い、結晶の配向を調べた結果、結晶のC軸は粉体の長手方向ではなく径方向に配向していると解釈できた。

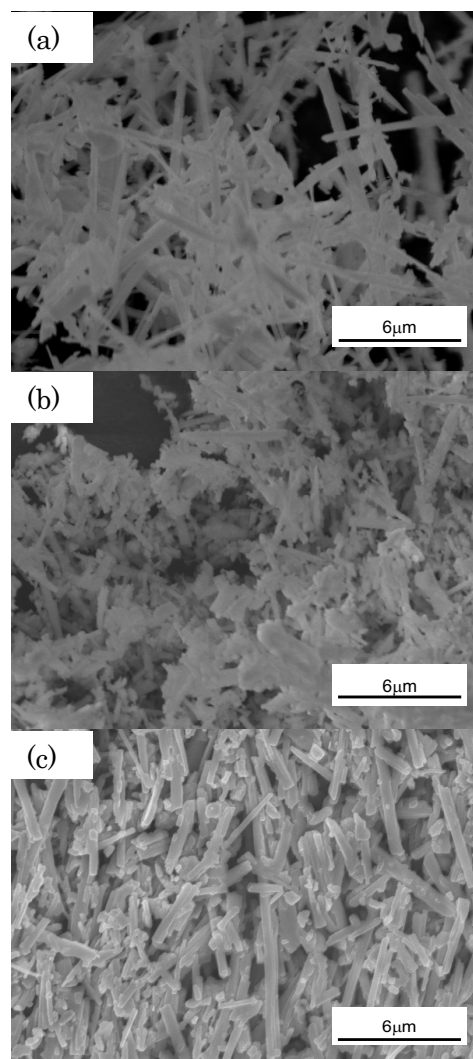


図2 $\text{K}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$ 粉体の微細構造
(a)合成直後 (b)粉碎処理後 (c)シート成形体表面

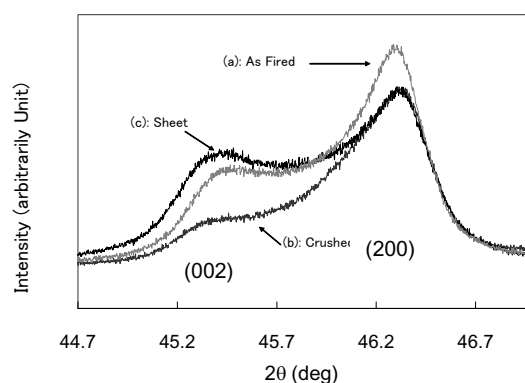


図3 $\text{K}_{1/2}\text{Bi}_{1/2}\text{TiO}_3$ 粉体の X 線回折強度
(a)合成直後 (b)粉碎処理後 (c)シート成形体表面

時分割X線回折法によるスメクティック液晶の動的構造解析
 Dynamic local layer response to electric field in smectic liquid crystals
 by time resolved x-ray micro-diffraction analysis

高橋由美子¹, 飯田厚夫², 高瀬浩一¹, 高野良紀¹, 関澤和子¹

¹ 日本大学理工学部 101-8308 千代田区神田駿河台 1-8

² 高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光研究施設 305-0801 つくば市大穂 1-1

1. はじめに

ソフトマターは従来の物理学で扱われることの少ない物質であったが、近年、非線形・非平衡物理学や新機能性物質の創成、生命現象のモデル系としての興味から注目され始めている。その特徴は多様なメゾスケールの秩序状態や外場に対する応答性の良さであるが、構造形成要因やダイナミクス、物性発現機構について未だ統一的に理解されていない。

本研究では代表的なソフトマターの一つである液晶について、動的構造解析法により構造変化の過程を実時間で直接観察することによって、その秩序形成過程、相転移機構、電場応答等を解明することを目的とする。今回は一般に強誘電性液晶(Ferroelectric liquid crystal, FLC)と呼ばれる、キラル分子によって構成されるスメクティック液晶の層構造とその電場応答について報告する。

スメクティック液晶は液晶分子の重心位置が1次元の周期構造＝層構造を持ち、層内・層間の秩序状態は温度によって多様に変化する。その中でも層内秩序が液体的な相として分子長軸が層法線に平行なスメクティック A (SmA)相、その低温相であり分子長軸が層法線から一定角度傾いたスメクティック C (SmC)相が知られている。SmC 相の中で分子がキラルで系がラセミ体でないものをキラルスメクティック C (SmC*)と呼び、SmC*相で分子長軸に垂直な双極子モーメントを持つ物が強誘電性を示す。さらに隣接層間で分子の傾く方向が逆になるような配置を取る場合には反強誘電(SmC_A*)相が現れる。FLC を薄いガラスセルに封入して交流電場をかけると電場と分子の自発分極との相互作用によって分子がスイッチングするが、同時に層構造自体も変化することが

考えられる。分子の電場応答に関しては光学的手法等により多くの研究がなされてきたが、層構造についてはこれまで静的な構造が報告されている^{1,2)}のみであり、放射光時分割マイクロビームX線回折法の開発により初めて層構造の動的挙動についての知見が得られるようになった^{3,4)}。

2. 実験方法

実験は高エネルギー加速器研究機構、放射光研究施設、BL-4Aで行った。光学系については既に報告している^{3,5)}ので詳細は省略する。

X線エネルギーは8keV(層反射測定)、14.3keV(層内分子(無)秩序測定)を用いた。試料位置でのビームサイズが約 $3 \times 4 \mu\text{m}^2$ 以下になるよう調整し、角度発散は水平、垂直方向とも1.0 mrad程度、光子フラックスは照射損傷を防ぐため 10^8 photons/s程度で使用している。試料周りの構成を図1に示す。試料セルはラビング方向をX軸(水平軸)として、Y軸(ω 回転軸)に基板面が平行となるように試料をセットし、 ω 軸回りの回転によって層法線の基板面に対する傾きを測定し(ω -強度分布)、Z軸回りの層変

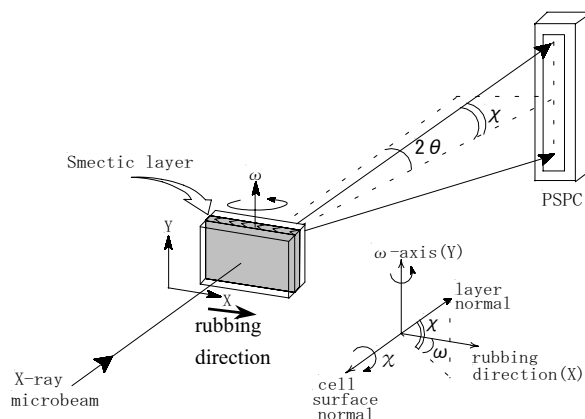


図1 マイクロビームX線回折光学系

形に対応した分布(χ -強度分布)を検出器(PSPC)上の強度分布として測定した。検出器にはイメージインテンシファイア(I.I)付き CCD カメラも併用し、広角散乱に現れる層内(無)秩序の観察に用いた。時分割測定は、試料印加電場に同期したゲート信号をPSPC出力(ADC出力)にかけたMCAモード(χ -強度分布)および同期信号をMCSのstart/stop信号としたMCSモード(ω -強度分布)で行った。MCAモードでは試料への印加波形1周期に対して16個の時間点での測定が可能である。MCSモードでは時間分解能がPSPCの遅延時間で決まり(約1 μ s)、印加波形1周期をほぼ連続的に測定できる。また、CCDを用いたときの時分割測定も同様にゲート電極制御によった。

試料はFLC、TK-C101(Chisso)を実験に用いた。150 μ m厚のガラス基板に透明電極を内側に蒸着し、さらに表面にポリイミドを塗布し、片面のみラビング法で配向処理を行ったセルに液晶を封入した。セル厚は約4–5 μ mとした。これはFLCで自発的に生じる螺旋構造を解消し、自発分極が基板上下方向を向く双安定状態とするため、表面安定化セルと呼ばれる⁶⁾。実験はSmA相では $T_c+1^\circ\text{C}$ 、SmC*相では室温で行った。ここで T_c はSmA \rightarrow SmC*転移温度(56 $^\circ\text{C}$)である。

3. SmC*相局所層構造の電場応答

図2(a)にSmC*相での電場印加前の初期状態における偏光顕微鏡像を示す。液晶分子は図の水平方向にほぼ均一に配向しており、所々に針状欠陥が見られる。この図の垂直方向に4 μ mステップでX線照射位置を移動させながら測定したX線回折プロファイルを図3(a,b)に示す。 ω -強度分布に見られる $\pm 20^\circ$ 付

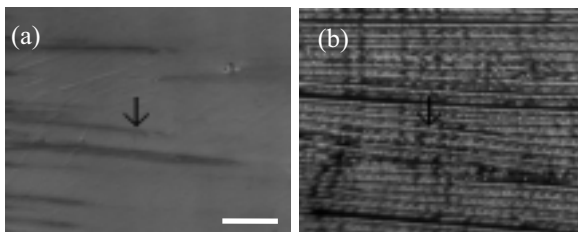


図2 FLC SmC*相の初期状態(a)、三角波 5Hz \pm 28V印加中(b)の偏光顕微鏡写真 図中のスケールは100 μ m

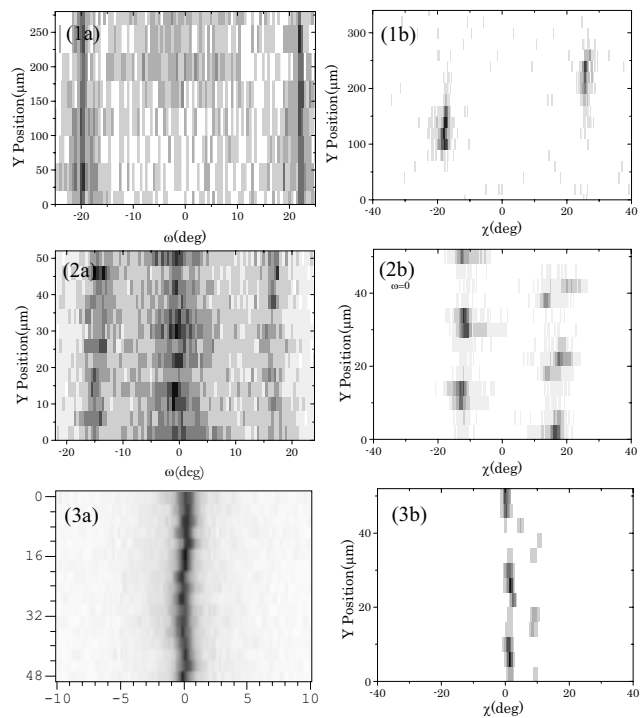


図3 SmC*相層構造の空間分布

初期状態(1), 三角波 5Hz \pm 30V(2), \pm 60V(3)印加中のマイクロビームX線回折 ω -強度分布(a)、 χ -強度分布(b)

近のピークは層が基板厚さ方向で“く”の字に折れ曲がった vertical chevron (v-chevron) 構造であることを示す。これは表面安定化セルでのSmC*相初期構造として知られており¹⁾、試料の冷却過程で初めて層構造が出現するSmA相では基板面に層が垂直に立った bookshelf 構造をとるが、さらに冷却されSmC*相に転移すると分子長軸が層法線に対して傾き、その結果層間隔が減少するので、これを補償するため層自体を変形した結果であると考えられる。 χ -強度分布のピークは欠陥位置に対応し、ここでv-chevronの折れ曲がり方向が反転している⁷⁻⁹⁾。試料に5Hzの三角波電場を印加し、電圧を徐々に増加して行くと約15Vで急激に欠陥が発達して図2(b)のようなストライプ組織になる。層構造はv-chevronのchevron角が減少し(図3-2(a))、 ω -強度分布の 0° 付近のピークに対応する χ -強度分布(図3-2(b))が基板面内で相の折れ曲がった horizontal chevron (h-chevron)構造を示している。h-chevronの周期はストライプの周期と一致している。さらに電圧を増加させるとv-chevron角、h-chevron角とも減少して

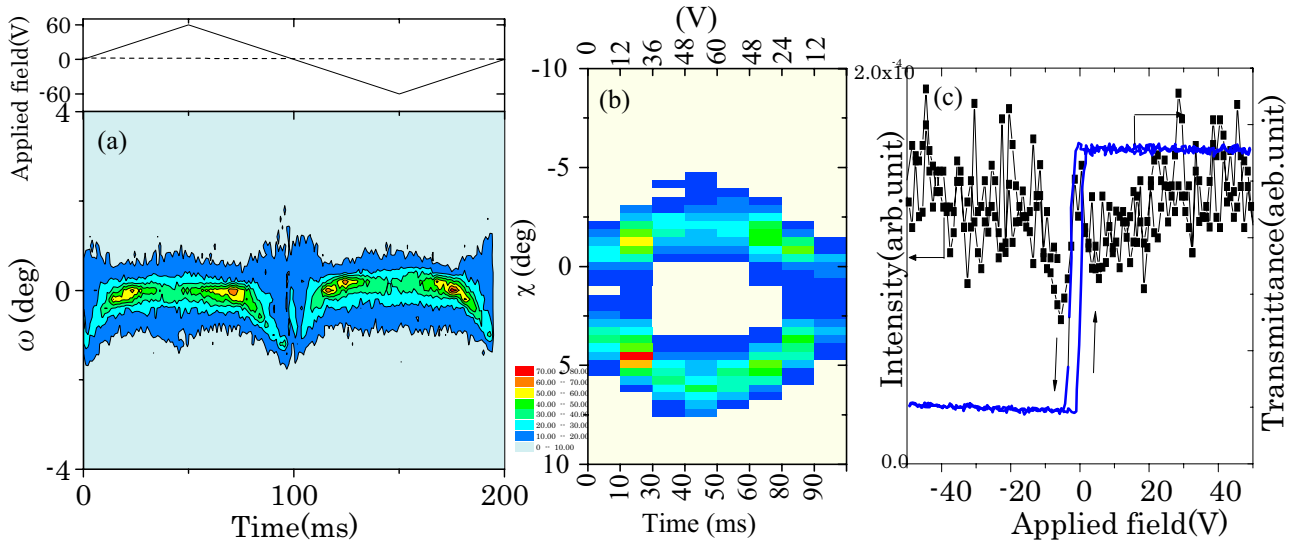


図4 時分割マイクロビームX線回折プロファイルと光学応答
 三角波 5Hz±60V 印加時の MCS モードω強度分布（時間分解能 1ms）と印加電場(a)および
 MCA モードχ強度分布（時間分解能 10ms）(b)。ω=0°の強度と光学応答(c)。

bookshelf 構造に近づく (図 3-3(a,b))。これによって SmC*相転移による層間隔の減少を補償する幾何学的条件は満たされなくなるので、電場と分子の自発分極との強い相互作用が基板界面近傍の分子をも含む分子の再配列を不可逆的に生じさせ、高電場下では界面の新たな秩序状態に束縛された安定状態が実現するものと考えられる。

この高電場下での層構造をさらに詳細に検討するため、時分割X線回折法による動的解析を行った。図4に見られるように層構造は三角波電場に追従して変化し、高電場での h-chevron 構造と低電場での ω強度分布の広がりが見出す quasi-bookshelf 構造間を可逆的に移行する。高電場では分子の自発分極を電場方向に揃えるため、層が基板に垂直な h-chevron 構造が強制され、電圧の減少とともに基板界面からの束縛と層の弾性によって v-chevron 構造に戻ろうとするが、戻りきらず quasi-bookshelf 構造になるものと考えられる。基板界面との相互作用の影響は高電場でも残存する弱い v-chevron の成分によって確認できる。興味深いことに、X線回折と同時測定した光学応答は電場の極性反転によってのみ変化する、所謂メモリー効果を示している (図 4(c))。すなわち分子は極性が反転するまで電場の変化に無関係に一定の方位を保つのにに対し、層構造は電場に依存して変化している。層構造変化過程を模式的に表した図

を図5に示す。また、試料セルに階段波電場を印加し、電場の立ち上がり、立ち下がりに対する層構造変化を時分割マイクロビームX線回折法で測定して局所層構造の過渡的応答を調査した⁴⁾。層構造の電場応答速度は電場の立ち上がりに対して 0.3-0.4 ms、立ち下がりに対して 0.1-0.2 ms とこれまで予想されていた速度よりかなり早いものであったが、分子の応答速度 (立ち上がりで 30 μs) より一桁遅いことが

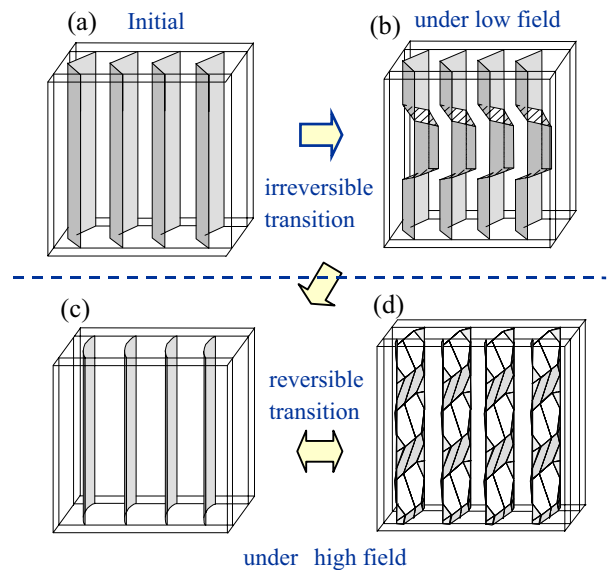


図5 SmC*相の電場下における層構造変化過程
 初期状態の v-chevron 構造(a)、低電場での構造(b)、
 高電場での v-chevron+h-chevron と quasi-bookshelf
 間の可逆的变化(c),(d)

分かった。X線回折、光学応答の両者で数 100 μs の緩やかに変化する成分も観察され、巨視的な緩和を反映していると考えられる。

4. SmA 相の電傾効果と局所層構造

SmA 相では分子は層に垂直に並び、層は bookshelf 構造をとるが、基板に垂直に電場をかけると基板面内で分子が傾く電傾効果を生じる。電傾効果は分子論的理解は進んでおり、層構造についても h-chevron を基本構造としたモデルが提案されている¹⁰⁾。しかし、時分割マイクロビーム X 線回折法による層構造変化の直接観察の結果、表面安定化セルにおいて電傾効果によって生じる局所層構造は、低電場での bookshelf 構造と高電場での v-chevron と h-chevron が空間的に交互に現れるストライプ構造間の可逆的変化であることが分かった¹¹⁾。SmC*相の層構造変化と比較すると、v-chevron が顕著である点に特徴がある。

また、このとき層間隔が電圧の増加とともに減少することを確認できた。層間隔の減少率から求まる分子の傾き角は h-chevron 角にほぼ等しい。最近の実験では層内の分子秩序を示すハローパターンの時分割測定が可能になり、三角波電場印加によって分子の正負の傾きが誘起されている様子と同時に、ストライプ組織の周期に対応した分子の傾き角の変化が観察された。

これらの結果は、電傾効果に伴う分子の傾きの結果として層の収縮が起こり、局所層構造として v-, h-chevron 構造が実現しているというモデルと定性的には一致している。しかしハローパターンから求まる分子の傾き角 (約 3°) と局所層構造から求めた chevron 角 (約 7°) との関係は、単純な幾何学的関係から予想される関係とは一致しないなどの問題も出現している。現在、データの詳細な解析を行い、検討を行っている。

5. まとめ

放射光を用いた時分割マイクロビーム X 線回折法を開発し、FLC SmA, SmC*相における局所層構造の交流電場下における変化過程を観察することがで

きた。これによって電場印加前の初期状態から高電場下における安定相への不可逆的層構造変化過程の存在、その過程における界面分子の層構造に対する影響、基板面内での層構造の空間的挙動等の新たな知見を得ることができた。

局所層構造変化過程の直接観察、層間隔変化の定量的観察等の手法は本研究において初めて実現された方法であり、これによって液晶のダイナミクスに取り組む方法が拡大した。特にハローパターン測定による局所領域の分子配向秩序に関する情報を得ることは、液晶評価法の新しい側面を拓くものと考えられる。

6. LEBRA PXR を用いたソフトマターの動的構造解析

ソフトマターのダイナミクスを調査する方法として時分割 X 線回折法が有効であることが分かった。そこで PXR のパルス性を活用した時分割 X 線回折光学系の構築を検討している。これによって液晶を初めとするソフトマターの構造変化過程を観察する手法を確立することを目標として研究を進めている。

謝辞

本研究は東工大大学院の高西陽一助手、竹添秀男教授らとの共同研究であり、多大なご助力をいただいたことに感謝します。また、PF スタッフの皆様の支援に感謝致します。

本研究は PF 共同利用実験課題 (PAC98G341、00G279、02G293) で行われたものであり、一部は文部科学省学術フロンティア推進事業 (平成 12 年度—平成 16 年度) の援助を受けて行われました。

参考文献

- 1) T. P. Rieker, N. A. Clark, G. S. Smith, D. S. Parmar, E. B. Sirota and C. R. Safinya, Phys. Rev. Lett. **59**, 2658 (1987)
- 2) Y. Ouchi, H. Takano, H. Takezoe and A. Fukuda, Jpn. J. Appl. Phys. **27**, 1 (1988)
- 3) Y. Takahashi, A. Iida, Y. Takanishi, T. Ogasawara, K. Ishikawa and H. Takezoe, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 3294

(2001)

- 4) Y. Takahashi, A. Iida, Y. Takanishi, T. Ogasawara, M. Nakata, K. Ishikawa and H. Takezoe, Phys. Rev., E **67**, 051706-1 (2003)
- 5) A. Iida, T. Noma and H. Miyata, Jpn. J. Appl. Phys. **35**, 160 (1996)
- 6) N. A. Clark and S. T. Lagerwall, Appl. Phys. Lett. **36**, 899 (1980)
- 7) A. Iida, T. Noma and H. Miyata, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 2845 (1996)
- 8) A. Iida, T. Noma and H. Miyata, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, 1345 (2001)
- 9) Y. Takanishi, A. Iida, Ishikawa, H. Takezoe and A. Fukuda, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 4132 (1999)
- 10) R.E.Geer, S.J.Singer, J.V.Selinger, B.R.Ratna and R.Shashidhar, . Phys. Rev. E **57** (1998) 3059
- 11) A. Iida, Y. Takahashi, Y. Takanishi, M. Nakata, K. Ishikawa and H. Takezoe, contributed to Liquid Crystas

緻密骨アパタイトの結晶性の変異について
—ウサギ脛骨における微小部 X 線回折法による研究—

○諏訪武利¹⁾, 寒河江登志朗²⁾, 町田 健¹⁾, 郡司敦子¹⁾, 中田浩史¹⁾, 小林喜平¹⁾
日本大学松戸歯学部第I補綴学講座¹⁾, 第II解剖学講座²⁾

Variation of Crystalline of Compact Bone Apatite : Study on Rabbit Tibia Micro X-ray Diffractometry

○SUWA T¹⁾, SAKAE T²⁾, MACHIDA T¹⁾, GUNJI A¹⁾, NAKADA H¹⁾, KOBAYASHI K¹⁾

Department of Complete Denture Prosthodontics¹⁾, Anatomy II²⁾, Nihon University School of Dentistry at Matsudo (Chiba)

I 緒言

骨の基本構造は、コラーゲンを主体とした有機基質とそこに沈着した無機相である生体アパタイト biological apatite (以下 生体 HAP) の微結晶で構成されている。このような生体 HAP 結晶の組成構造の分析は、走査型電子顕微鏡, 透過型電子顕微鏡, 走査型トンネル電子顕微鏡, エネルギー分散型 X 線分析, X 線回折 (以下 XRD), フーリエ変換赤外分光分析および X 線光電子分光分析装置で行われてきている¹⁻⁴⁾。このうち XRD における生体 HAP は特有のピークを示すことが知られており, 骨の生体 HAP の分析が報告されている^{5,6)}。しかしながら, 骨のアパタイト結晶の粒子径は小さいため, 骨における結晶レベルでの違いについて報告はみられない。

そこで, 本研究はウサギ脛骨の皮質骨を対象に微小部 X 線回折法 (以下 Micro-XRD) による結晶レベルの検索を試み, 骨の部位的な結晶性の違いを知ることができたので報告する。

II 材料および方法

1. 実験動物

プロトコル: 日本大学松戸歯学部実験動物倫理委員会による承認 (承認番号第 ECA-03-0038 号)

実験動物: 25 週齢, New Zealand White Rabbit

部位: 脛骨 (Fig. 1)

非脱灰組織標本: 厚さ 50 μ m

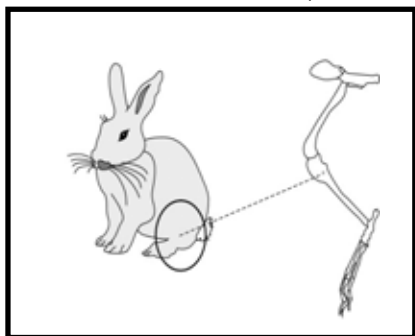


Fig. 1 Rabbit tibia.

2. Micro-XRD による分析

Micro-XRD による分析は, RINT-2500 湾曲 PSPC 型微小部 X 線回折装置 (Rigaku) を用いて測定し (Fig 2), データ解析ソフト: JADE5.0+ (米国 MDI 社) により解析を行った。



Fig. 2 Micro X-ray diffractometer.

3. 顕微フーリエ変換赤外分光イメージング分析 (以下 Micro-FTIRI)

Micro-FTIRI による組成分析は、FT/IR-6200 型フーリエ変換赤外分光光度計、IMV-4000 型マルチチャンネル赤外顕微鏡 (×16 倍カセグレイン) を用いて行った。測定は、以下の測定条件により行った (Fig. 3)。

測定方法 : 顕微反射法による IR イメージング

積算 : 16 回

分解 : 16cm-1

検出器 : 16 素子マルチチャンネル MCT

測定点数 : 48×48 点 (計 2304)

ピクセルサイズ : 12.5×12.5μm

測定時間 : 約 4min

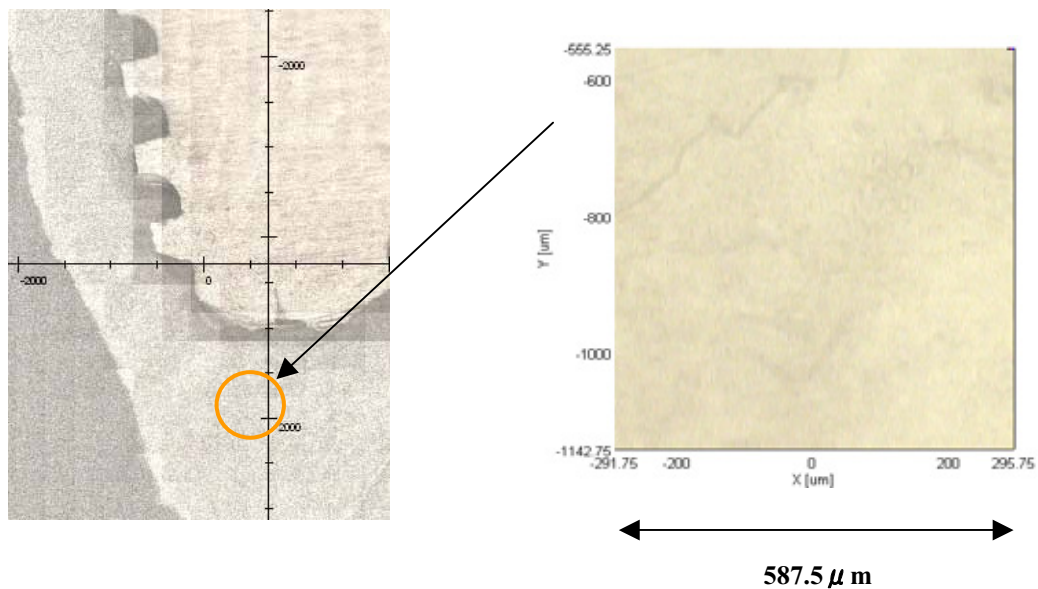


Fig. 3 Measurement region by Micro-FTIRI.

4. 偏光顕微鏡による観察

偏光顕微鏡 (OPTIPHOT2-POL[®]: Nikon, 東京) にて平行ニコル法、クロスニコル法および検板法 (Gypsum Plate) により皮質骨の観察を行った。

III 結果および考察

1. Micro-XRD による分析

XRD パターンの代表的な 2 つの例を示したように、微小部位における個々の XRD パターンには回折ピークの強度とピークの広がり (ブロードニング) にいくらかの差異を認めた。Fig. 4 中の a および b を比較すると、a は 31 度 (2 θ) 付近の出現する生体 HAP の主要な 3 つの回折ピーク (112, 211, 300) が一連のものとなっているのに対して、b では 300 回折ピークがやや分離して認められた。

ピークの広がりを測定した結果を Table 1 に示す。213 の回折ピークの広がりは、違いを認めないが、002 の回折ピークでは若干の広がりの違いを認め、004 の回折ピークでは、顕著な広がりの違いを認めた。また 004 および 213 の回折ピークは、ピーク位置の違いを認めた。生体 HAP の回折ピークの強度に違いが認められたことは皮質骨において結晶レベルでの骨の違いであると考えられる。

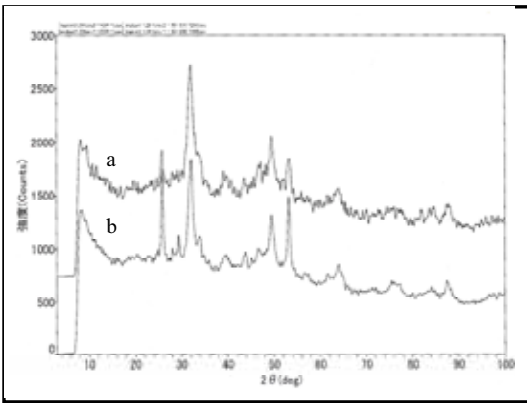


Table 1 X-ray diffraction data(Fig.3).

a				b				$\Delta=a-b$			Ref. JCPDS card.			
2 θ	d	I%	B	2 θ	d	I%	B	$\Delta 2\theta$	Δd	ΔB	2 θ	I	d	hkl
25.88	3.440	12.9	0.68	25.92	3.435	23.4	0.62	0.04	0.005	0.061	25.88	40.0	3.440	002
49.62	1.836	19.5	0.83	49.56	1.838	17.5	0.84	0.06	0.002	0.009	49.47	40.0	1.841	213
53.34	1.716	17.7	0.77	53.28	1.718	23.7	0.69	0.06	0.001	0.089	53.14	20.0	1.722	004

Fig. 4 Micro-XRD patterns for the two regions of rabbit tibia.

2. Micro-FTIR による分析

1100 cm^{-1} ではそれぞれアパタイト特有のピークを持つスペクトルを認めた。1457 cm^{-1} および 1550 cm^{-1} においては、それぞれピークの違いを持つスペクトルを認めた (Fig. 5)。これは、アパタイト中のカーボネートの違いであることから、骨の組成が異なっていると考えられる。

【KK変換スペクトル】

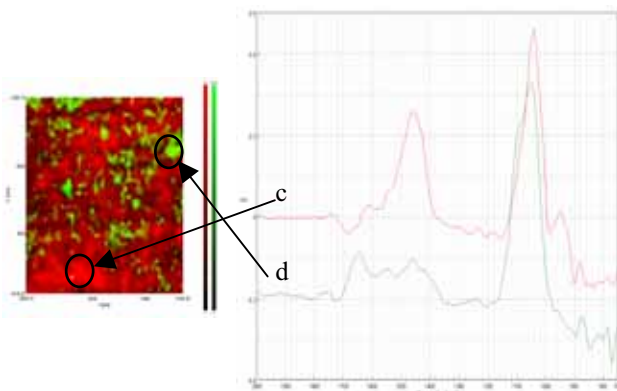


Fig. 5 Results of FTIRI.

3. 偏光顕微鏡による観察について

皮質骨においてハバース層板がみられ、また明らかな骨のコラーゲン線維の方向性および配置の違いを観察することができる (Fig. 6)。

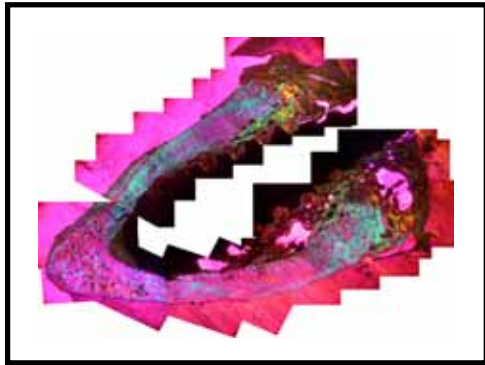


Fig.6 Polarizing microscopic image of rabbit tibia.

IV 結論

1. Micro-XRD による分析

結晶レベルでの類的な構造変化が示唆された。

2. FTIR による分析

アパタイト中のカーボネートの違いが認められた。

3. 偏光顕微鏡による観察について

組織学的にも同じ皮質骨において骨が異なっていることが示唆された。

以上のことから、骨の発育度あるいは解像度の違いであると考えられ、骨の成熟との関連が示唆された。

VII 文献

- 1) Bocciairelli DS : Morphology of crystallites in bone, *Calcif Tissue Res*, 5 : 261-269, 1970.
- 2) Pellegrino ED, Biltz RM : Mineralization in the chick embryo, *Calcif Tissue Res*, 10 : 128-135, 1972.
- 3) Brown WE, Eidelman N, Tomazic B : Octacalcium phosphate as a precursor in biomineral formation, *Adv Dent Res*, 1 : 306-313, 1987.
- 4) Roufosse AH, Landis WJ, Sabine WK et al. : Identification of brushite in newly deposited bone mineral from embryonic chicks, *J Ultrastruct Res*, 68 : 235-255, 1979.
- 5) 寒河江登志朗, 早川徹, 丸山文章ほか : リン酸カルシウムの結晶化学分析, *日大口腔科学*, 23 : 371-380, 1997.
- 6) Nakano T, Kaibara K, Tabata Y et al. : Unique Alignment and Texture of Biological Apatite Crystallites in Typical Calcified Tissues Analyzed by Microbeam X-Ray Diffractometer System, *Bone*, 31 : 479-487, 2002.

謝辞

本研究の一部は、日本大学術振興会科学研究費補助金（基盤研究費（C）（2）課題番号 15592072，代表：小林喜平）および平成 13 年度日本大学松戸歯学部学術フロンティア推進事業（代表：小林喜平）によって行われた。

LEBRA-PXRによる兔脛骨に埋入したインプラント周囲新生骨のX線透過像観察 Radiology Observation of New Bone Formation Around Implant in Tibia of Rabbit Using LEBRA-PXR

○中田浩史¹⁾, 寒河江登志朗²⁾, 諏訪武利¹⁾, 早川恭史³⁾, 田中俊成³⁾, 早川 建³⁾, 佐藤³⁾, 小林喜平¹⁾

Nakada H.¹⁾, Sakae T.²⁾, Suwa T.¹⁾, Hayakawa Y.³⁾, Tanaka T.³⁾, Hayakawa K.³⁾, Sato I.³⁾, Kobayashi K.¹⁾

日本大学松戸歯学部補綴学第 I 講座¹⁾, 解剖学第 II 講座²⁾ Department of Complete Denture Prosthodontics¹⁾, Department of Anatomy II²⁾ Nihon University School of Dentistry at Matsudo,

日本大学量子科学研究所³⁾ Laboratory for Electron Beam Research and Application Institute of Quantum Science, Nihon University³⁾

1. 緒言

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 Institute of Quantum Science, Nihon University, 以下:LEBRA)に設備されたパラメトリックX線(Parametric X-ray radiation, 以下:PXR)は世界初の恒常的なPXR発生装置であり¹⁾, 特徴の一つとして波長を任意に設定できることがあげられる。

そこで,我々は骨の創傷治癒過程において兔脛骨に埋入したインプラント周囲新生骨の判定を偏光顕微鏡,電子顕微鏡,フーリエ変換赤外分光光度計(FT-IRI),X線分析顕微鏡,LEBRA-PSPC-XRD,LEBRA-PXRによって検索し,興味ある知見を得たので報告する。

2. 材料及び方法

1) 動物実験

実験プロトコールは日本大学松戸歯学部実験動物倫理委員会の承認を受けて作成されたものである(承認番号第ECA-03-0003号)。実験動物は,16週齢,体重約3.0kgのNew Zealand White Rabbitを使用した。

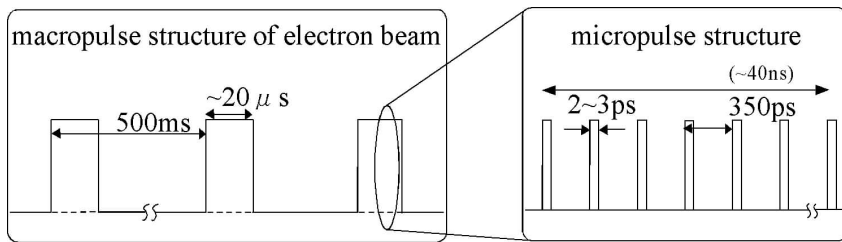
2) インプラント埋入

埋入方法は通法に準じて行い^{2,3)},左右側脛骨中枢側関節より20mm遠心側内面へ直径2.8mmの埋入窩を形成し,インプラントを埋入した。埋入後1週にて屠殺し,脛骨を摘出した。

3) インプラント材料

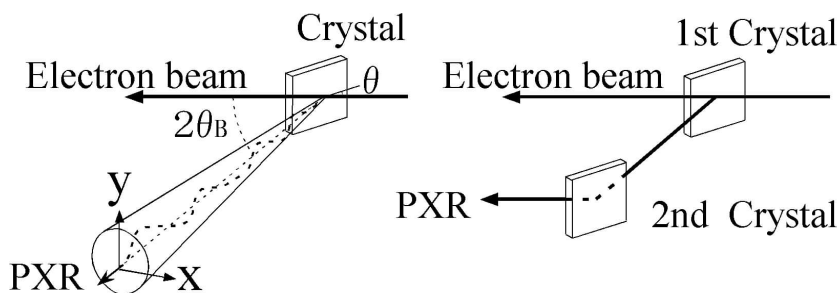
材料は直径2.8mm,高さ8.0mmのチタン合金にブラスト処理を施したインプラントとした。・LEBRA-LINACの電子線のパルス構造

マクロパルスは500ms間隔で,ひとつのパルスの幅が20 μ sで2Hzの電子線を出している。ひとつのマクロパルスは,350ps間隔で2~3psのマイクロパルス構造をしている。



・ PXR 発生装置の概念図

LINAC 加速器からの電子線は、第 1 結晶に照射され PXR を発生し発散角 x 軸方向： $46 \mu \text{ rad}$, y 軸方向： $240 \mu \text{ rad}$ のコーン型に広がる。第 1 結晶と平行に置いた第 2 結晶が PXR を回折して、出力される PXR は常に一定方向に向くよう設定されている。



-PXR の測定条件-

電子線形加速器のパラメータ：電子エネルギー： 100^{keV}

マクロパルス幅： $20 \mu \text{ s}$, マクロパルス電流： 90 mA ,

繰り返し数： 2 Hz , 平均ビーム電流： 3.6 mA ,

使用ターゲット (PXR 発生源)：シリコン単結晶 (111) 面,

X 線エネルギー： 7 keV (1.771 A) および 13 keV (0.954 A),

露光時間： 900 s ($20 \mu \text{ s} \times 1800 \text{ Shot}$: 実照射時間 36 ms),

線源-照射位置間距離：約 7.5 m ,

撮影装置：イメージングプレート (IP),

IP 読み取り装置：YCR-21XGR (株式会社吉田製作所)

(読み取り分解能： $29 \mu \text{ m} \times 29 \mu \text{ m}$)

-歯科用 X 線撮影の測定条件-

歯科用 X 線撮影装置 (SIEMENS 社製、ヘリオデント MD)

X 線エネルギー： 60 keV ,

露光時間： (0.25 s) ,

線源-照射位置間距離： 0.5 m

3. 結果

1) 偏光顕微鏡

インプラント周囲は青色と黄色の偏光特性を示しており、線維性骨により構成される。

2) 反射電子顕微鏡

新生骨は皮質骨よりインプラント方向およびインプラント周囲に形成されることが観察され

る。

(a)既存骨から伸びる新生骨 (b)インプラント周囲にできる新生骨 (c)骨髓腔よりできる新生骨

3) X線分析顕微鏡

インプラント周囲の成分分析ではCaから3倍したPを引くと多くのCaから新生骨周囲が構成していることが明らかとなった。

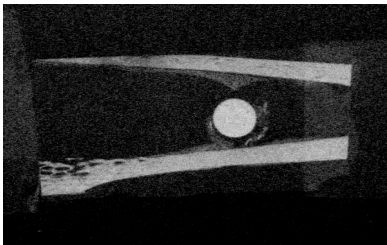
4) FT-IRI

インプラント周囲の新生骨と既存の皮質骨では、骨の結晶化度が異なることが明らかであった。

5) PSpC-XRD-1 Cortical Bone

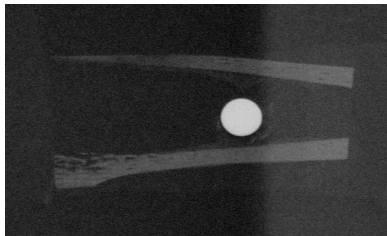
既存の緻密骨ではアパタイトのピークが明らかに見られる。

6) PSpC-XRD-2 New Bone アパタイトでない不明なピークが現れている。7)-(1) -LEBRA-PXR撮影(7KeV, 1.771Å)によるインプラント周囲の新生骨像-



埋入したインプラントの直径は2.8mmで不透過像として観察された。インプラント周囲には1層覆う新生骨が観察され、その1部は周囲皮質骨に近い石灰化像が観察された。

-(2) -LEBRA-PXR撮影(13KeV, 0.954Å)によるインプラント周囲の新生骨像-



埋入したインプラントの直径は2.8mmで不透過像として観察された。インプラント周囲の皮質骨は観察できるが、新生骨においてはぼやけた不明瞭な像が観察された。

-(3) -歯科用X線撮影装置によるインプラント周囲の新生骨像-

埋入したインプラントの直径は2.8mmで不透過像として観察された。インプラント周囲においては新生骨を含めた皮質骨までもが不明瞭な不透過像でありほとんど構造が識別できない像であった。

4. 考察

我々は骨の創傷治癒過程において、兔脛骨に埋入したインプラント周囲新生骨の判定を各種の分析方法を用いて分析を行った。インプラント周囲の新生骨は、既存の骨から形成されるもの、骨髓腔から形成されるもの、またインプラント周囲へ形成されるものと分類することができた。また、LEBRA-PXRにおいては波長13KeV, 0.954Åよりも波長7KeV, 1.771Åにおいて、皮質骨は

鮮明に写り、インプラント周囲において石灰化が未熟な新生骨の形成が確認できた。長い波長においては物質の透過性が弱く、インプラント周囲に形成された新生骨の石灰化度の強弱までもが明確に判明できた。X線の可変波長を選択できることは、物質を透過するエネルギーの違いにより撮影する画像の鮮明さに影響すると考えられる。

LEBRA-PXRは比較的小型のLINACを用いてPXR法によりほぼ任意に波長を変えることにより硬組織構造解析において従来以上の解像度で硬組織構造の撮影ができる事が明らかになった。

今後、このLEBRA-PXRを硬組織研究に用いることによって、組織構造解析および形成機構の解明へ大きく前進できると考えられた。

5. 結論

本研究は兎脛骨に埋入したインプラント周囲新生骨を観察し以下の結論を得た。

1. 各種分析結果よりインプラント周囲新生骨は3種類に分別することができた。
2. LEBRA-PXRで希望するX線波長を出力し、X線透過像撮影実験に利用した世界初の成果であった。
3. LEBRA-PXRを用いて使用するX線波長によって既存骨である皮質骨とインプラント周囲の新生骨とを明瞭に識別でき、従来以上の鮮明度で硬組織構造の解析ができた。
4. LEBRA-PXRの波長を 0.954 \AA (13KeV)および 1.771 \AA (7KeV)に変更することで、局所的に骨の透過像が変化することを確認し、骨の改造像をこの方法で追求できることを明らかにした。

6. 謝辞

本研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金(基盤研究費(C)(2)課題番号15592072, 代表:小林喜平)および平成13年度日本大学松戸歯学部学術フロンティア推進事業(代表:小林喜平)によって行われた。

7. 参考文献

- 1) 早川恭史, 佐藤勇, 早川建ほか: 日大パラメトリックX線源の現状, Proceedings of the 1st Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 29th Linear Accelerator Meeting in Japan, 60-62, 2004.
- 2) 中田浩史, 寒河江登志朗, 町田健ほか: ブラスト処理したインプラント周囲の骨形成パターン-ウサギ脛骨における反射電子像観察-, 日本口腔インプラント学会誌, 16, 477-484, 2003.
- 3) 中田浩史, 寒河江登志朗, 真辺剛史ほか: インプラント周囲骨の発生段階について偏光顕微鏡による観察, 日大口腔科学, 29, 160-163, 2003.

特異的な卵状構造をもつ唾石の結晶分析

豊田 千枝¹⁾, 寒河江 登志朗²⁾, 山本 浩嗣³⁾, 加藤 正隆⁴⁾,
浅賀 知記¹⁾, 秋元 芳明¹⁾

日本大学松戸歯学部 口腔外科学講座¹⁾, 第Ⅱ解剖学講座²⁾, 病理学講座³⁾, 放射線学講座⁴⁾

緒言

唾石は口腔領域において比較的発現頻度が高い異所性石灰化物である。

発生原因として、様々な説が論じられているが、いまだ明確な原因は不明である(1)。また、唾石の組成、構造については、広く認められた分類基準もなく、いまだ未知な点が多いのが現状ある。

本報告は、卵形で特異な構造、組成を持つ顎下腺導管より摘出された唾石の一つを用いて研究し、詳細な検討を加えたものである。

材料および方法

1. 唾石は、10%中性緩衝ホルマリン液にて固定し、実験に使用した。
2. 硬組織調整法に準じて試料調整を行い、以下の分析機器を用いて分析した。
 - ①実体顕微鏡 (Nikon SM2500) にて表面形態観察を行った。
 - ②micro-CT 測定器は(東芝 ITC 社 TOSCANER-31300 μ) を使用し、非破壊的に、唾石の内部形態構造の撮影を行い、石灰化度の測定を行った。
 - ③micro-XRD (RIGAKU RINT2000 XRD PSPC) にて 100 μ 、30 μ の微小領域で結晶分析を行った。計測ポイントは50箇所とした。
 - ④micro-FT-IR 測定器は(HORIBA FT-530) を使用し、4000 cm^{-1} から 750 cm^{-1} の範囲で赤外分光分析を行った。計測ポイントは30箇所とした。
 - ⑤表層の分析が終了後、コンパウンドに埋入し、唾石を割断した。その一片を用いて上記の①～④の方法で再度測定分析した。

結果

1. 実体顕微鏡による観察結果

試料は6×3×4mm大の卵形を呈した唾石で、中央が黄色の光沢のあるコブ状を呈し、外殻は白濁した粗造な構造がみられた。唾石内部は、白色の外層、淡黄色の中層、褐色の核と思われる中央の3層から出来た層状構造をなしていた。中心核は白色の斑点のような均一な部分と層状の混在する構造が存在し、その周囲には明瞭な層状構造がみられた。

2. micro-CTによる観察結果

中心に核の存在が確かめられ、3層構造をなしていた。各層のCT値は異なっており、核・外層・中層の順に石灰化度が強かった。

3. micro-XRDによる分析結果

XRDでは、この唾石の外殻の中でもapatiteの結晶性が違うことが示唆された。また、唾石断面各層において、結晶が明らかに違うことが示された。分析の結果、外殻ではapatite、中層ではapatiteとwhitlockite、核においては、apatiteとwhitlockiteのほか、従来、唾石で報告されている結晶に当てはまらないものがみられた。

4. micro-FT-IRによる分析結果

micro-FT-IRでは、核、中層、外殻ともに 1050cm^{-1} にphosphate ionsの吸収バンドがみられ、 $1450\sim 1550\text{cm}^{-1}$ には生体apatiteに含まれるcarbonate ionのバンドがみられた。核に相当する部位では、特徴的なショルダーがみられ、これは通常検出されapatiteにはみられないものであった。

考察

唾石症の組成はその多くがapatite、whitlockite、brushiteと報告されている(2-4)。今回の実験により他の報告(2-4)と一致した物質の他に、同じ表層であってもアパタイトの結晶性の違いが認められ、内部においては未知物質の存在を認めることが出来た。これについては今後更なる詳しい分析を行っている。大きさに関しては $5\sim 10\text{mm}$ 未満という多くの症例でみられる大きさの範囲であるが、黄色と白色の2色からなる色調および一般的な層状であることから、複雑な形成機序を示唆された。このことからこの唾石において形成過程は特異であったといえる。組成に関しても、自験例において従来にはない未知な物質という特徴的なものがみられた。今後、この唾石をより詳細な分析をし、成因もふくめ検討を行う余地があるものと思われる。

謝辞

今回利用したmicro-XRDは日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設(LEBRA)に設置されているものである。佐藤 勇 教授、早川 建 教授、田中 俊成 教授、早川 恭史 講師をはじめ、LEBRAの関係者各位に深く謝意を表す。

参考文献

1. 山本浩嗣 他：口腔疾患診断プラクティス，医学情報社，東京，168-169，1994.
2. Toshiro.Sakae, et al. : Intermittent Crystal Growth of Unusually Long Submandibular Sialolith Revealed by Micro-Focus and Selected-Area X-Ray Diffraction, J Hard Tissue Biology, 12 : 25-28, 2003.
3. A.Teymoortash, et al. : Sialolith crystals localized intraglandularly and in the Warton's duct of the human submandibular gland: an X-ray diffraction analysis. Arch of Oral Bioloby 48 : 233-236, 2003.
4. Racquel Z. LeGeros : Calcium Phosphates in Oral Biology and Medicine, KARGER, 1991.

ヘモグロビン (Hb) 構造研究の展開： 軟体動物の Hb, 環形動物の Hb, 両生類の Hb

宋倉文夫¹, 鈴木知彦², 後藤寿夫³, 竹内浩昭⁴, 長井孝紀⁵

¹ 日本大学医学部生物学教室 (〒178-8610 板橋区大谷口上町30-1)

² 高知大学理学部生化学教室 (〒780-8520 高知市曙町2-5-1)

³ 徳島大学総合科学部生命科学教室 (〒770-0814 徳島市南常三島町1-1)

⁴ 静岡大学理学部生物地球環境科学科 (〒422-8529 静岡市大谷836)

⁵ 慶応大学医学部生物学教室 (〒223-8521 横浜市港北区日吉4-1-1)

はじめに

ヘモグロビン (Hb) は、酸素を必要とする生物にとって、取り入れた酸素を生命体の組織・細胞に運搬するという極めて重要な生理機能を担っている。生物は地球上のほとんどの場所 (niche: ニッチ) に進出して、その環境に最も適した生活を営んでいる(1)。生物の生息環境に適応した生理機能を果たすために、Hb 分子を例にとっても、分子の構造に創意と工夫が読み取れる。生命の歴史の中で遺伝子にもたらされた創意と工夫 (進化あるいは多様性) の一つ一つが、これ程 Hb の多様性のなかに知られているのも少ない(2)。従って、Hb の生理機能と立体構造に見られる多様性との相関を機能と構造の両サイドから明らかにすることは、現代生物科学の知と創造の宝庫となるであろう。

日本大学生体高分子 X線結晶構造解析グループ (Nihon University Structural Research Group: NUSRG) は、古くて新しい研究課題である Hb を中心テーマに取り上げた。生体分子の相互間作用、すなわち生命化学反応を理解するには、生体分子の三次構造並び四次構造を知ることが決め手となる。生体物質の立体構造を理解するためには、同時代の生物物理化学的手法の中で最も該切な研究手法である X線結晶回折法を研究室の共有の技術にしたい。そのために学術フロンティア推進事業の資源を投入して、この技術の導入と操作法の修得を目指した(3,4)。

NUSRG は、X線結晶回折法を主要な研究手段として、平成 12 年 (実質は平成 13 年) から活動している。学術フロンティア推進事業 (平成 12 年度～平成 16 年度) の支援を得て、「酸素結合・運搬に関わるタンパク質」を研究しているわが国を代表する研究者の賛意と協力を柱に共同研究を進めている。ここでは、それらの共同研究の中から、1 軟体動物のシロウリガイ Hb の研究、2 環形動物ヤマビル Hb の研究、3 両生類アホロートル Hb の研究について、現時点までの成果と X線結晶構造解析実験の準備状況を報告したい。

共同研究の展開

1 軟体動物シロウリガイ (*Calyptogena soyogae*) の Hb

(高知大学理学部 鈴木知彦教授との共同研究)

1.1 シロウリガイの生息環境

シロウリガイは 750～1300 メートルの海底に生息している軟体動物の二枚貝の仲間である。シロウリガイの生息場所は太陽光の届かない深海である。共生する細菌の化学合成によって作られたエネルギーを獲得して生活している。このため、シロウリガイはエラ及び足から取込んだ硫化水素をこれらの共生細菌に運搬し、

その見返りに有機物を得て「もちつもたれつ」の生活をする。硫化水素は、海底泥にすむ別の細菌が海底から沸き出すメタンと海水中の硫黄を使って無酸素状態で作られる。シロウリガイは、海底泥の堆積物の下層にある硫化水素を摂取するために殻長の3分の1程度を埋め、エラと足から硫化水素を取込む。同時に、シロウリガイは自ら酸素呼吸をするため、呼吸によってエラから体内に取り入れた酸素を Hb によってからだの隅々まで運ぶ。硫化水素はシロウリガイの別のタンパク質に結合して運ばれるのであるが、硫化水素は酸素より先に Hb と結合する性質があるので、硫化水素があると硫化水素の方が Hb と結合する。その結果、酸素が運搬できなくなってシロウリガイは死んでしまう（東京大学大学博物館ホームページと池子遺跡群資料館ホームページより抜粋/5）。このような環境に棲息するシロウリガイの Hb の生理機能と構造の特徴は、すでに一次構造の分析から詳しく考察が行われている（6-8）。この共同研究では、立体構造の側面から、シロウリガイの生活の知恵を明らかにしたい。

1.2 Hb の種類

鈴木他により、シロウリガイの赤血球の Hb が調べられ、赤血球中に2種類のグロビンが同定された。これらの一次構造の特徴やタンパク質化学的性状などについては文献(6-8)を参照されたい。

1.3 Hb の X 線結晶構造解析実験

シロウリガイの2種類のグロビン鎖の X 線結晶構造実験の進捗状況については、表 - 1 を参照。共同研究者の鈴木氏から提供を受けたサンプルの結晶化を試みた。針葉状の結晶が成長することを確認したが、現在、サンプル（Hb I と Hb II の混合液）からそれぞれの Hb の精製を試みている。Hb I と Hb II の精製法は、すでに鈴木氏らによって確立されている(6)。

2 環形動物ヤマビル (*Haemadipsa zeylanica* var. *japonica*) の Hb

2.1 環形動物ヒルの Hb の特質

環形動物の主要なグループには貧毛類、多毛類、ヒル類が知られている。そのなかで、ヒル類はあらゆる大陸の淡水から汽水、海水、さらに陸上にまで生活圏を広げている。医用に使われている水棲のヒル（チスイビル：*Hirdo medicinalis* が有名）は吸血性で良く知られている。その唾液成分に含まれている血液凝固阻止物質はヒルジンとして薬用に使われる。東南アジアや日本では、陸棲のヒル（ヤマビル：*Haemadipsa zylanica*）がヒトや哺乳動物の血液を索餌するので、春先のある地方ではシカ、サル、カモシカ、タヌキなどの生息場所に近付くとヤマビルに吸い付かれることもある(9)。

環形動物の体液中には酸素結合・運搬分子として細胞外ヘモグロビン（注：ヘモグロビンが赤血球細胞内に分布していないで、赤血球の外、すなわち血漿に分布している）がある。ヒルの細胞外ヘモグロビンの分子量は300万〜500万といわれている。その構成グロビン鎖には、一般に4種類あり、2種類は単量体（M1鎖とM2鎖）、他の2種類はS-S結合を介した2量体（D1鎖とD2鎖）として存在している(10)。その他に複数のリンカー鎖（注：呼吸色素であるヘムを分子内に結合していない。レクチンという分子に類似）が介在して巨大な複合タンパク質を形成している。一次構造の比較から、4種類のグロビン鎖には2系統が示唆され、A-strain（M1鎖とD1鎖）とB-strain（M2鎖とD2鎖）とに区別されている。それぞれが2系統に区別されることは、脊椎動物の（魚類を除く）四足動物類の α -type と β -type のグロビン鎖を想起させる(10)。これらのグロビン鎖の一次構造とその構造の特徴については、文献(11,12)を参照されたい。

近年、ツリミミズ (*Lumbricus terrestris*) の巨大 Hb の結晶構造が X 線回折法により解明された(13)が、ツリミミズの Hb の分子構成は、単量体が 1 種類と S-S 結合を介して結合した 3 量体が 1 種類、それに複数のリンカー鎖を加えて巨大な複合体を形成している(1)。従って、巨大分子を構築する構造にもヒル (ヒル類) とツリミミズ (貧毛類) では違いがあるものと結晶構造の比較研究の成果が期待される。

2.2 Hb の X 線構造解析実験

ヤマビルの Hb の X 線結晶構造実験の進捗状況については、表 -1 を参照。

3 両生類アホロートル (メキシコサンショウウオ : *Ambystoma mexicanum*) の Hb

(静岡大学理学部 竹内浩昭助教授並び慶応大学医学部 長井孝紀教授との共同研究)

3.1 アホロートルの生物学的特質

両生類は、語義の通り、「水の生活から陸の生活へ、鰓や外鰓呼吸から肺や皮膚呼吸へ」と脊椎動物が新しい環境へ進出したときの最初の動物群である。この仲間には、大別して、有尾類 (イモリ) と無尾類 (カエルやヒキガエル) がいる。ライフサイクルは多様で、水中生活型の幼生から陸上生活型 (有尾類の多くは依然水中生活型が多い) の成体へ変態する。カエルやヒキガエルでは、変態に応じて、からだの中の組織が新生することが知られている。例えば、オタマジャクシ (幼生) の赤血球は変態とともに全く一新されて、総べて成体型の赤血球になってしまう(14)。近年、サンショウウオではそうとも言えない事実が報告された(15)。ともかく、カエルの Hb を例にしても、一生に発現されるグロビン鎖の遺伝子の数は α 鎖と β 鎖を合わせると 12 種類にもなる。これらの α 鎖と β 鎖で構成される Hb 4 量体が環境の変化に生理機能を適応させるには、グロビン遺伝子にどのような変異が現れ、それは Hb の立体構造にどのような変化を反映しているかなど、立体構造の全貌はまだ知られていない。

アホロートルはウーパルーパと愛称され、ペットとして愛玩されている動物である。生物学研究では幼形成熟 (ネオテニー；変態せずに幼生形のまま性的に成熟した個体) する動物として極めて有名で、その生理機能は昔から生物学者の関心を引いてきた。ホルモン的人為的投与や飼育環境を変えることによって変態を誘導できることも知られている。水の生活から陸の生活へ人為的に生理環境を変えた場合、水中生活型の Hb (あるいは幼形成熟の個体の Hb) や人為的に変態させた後の成体型のグロビン鎖の種類や生理機能と立体構造の関係など興味が尽きない。水中生活型から陸上生活型へ生理機能を大きく変化させることを可能にした原因を Hb 分子の立体構造から検討してみたい。

3.2 Hb の種類

幼形成熟した成体 (体長 20cm, 体重約 600g, オス) の赤血球から、2 種類の Hb (Hb M と Hb m) を精製した。Hb M と Hb m の比率は 5:3-3:2 である。 α 鎖はそれぞれ異なるものの、 β 鎖は共通の $\alpha\beta$ 4 量体 (Hb M= $\alpha^M_2\beta_2$, Hb m= $\alpha^m_2\beta_2$) であった(16)。これらのグロビン鎖の全一次構造は cDNA の塩基配列と部分アミノ酸配列から推定された(16)。結晶化を進めるために、溶液のまま 2 種類の Hb を精製する方法が必要だが、すでに確立されている(16)。

3.3 Hb の X 線構造解析実験

アホロートルの 2 種類の Hb (Hb M と Hb m) の X 線結晶構造実験の進捗状況については、表 - 1 を参照されたい。

おわりに

平成 12 年度～平成 16 年度の学術フロンティア推進事業の安定な支援を受けて、当初の計画を大幅に越え、現在では学内共同研究と学外共同研究を進めている。いずれも、習熟した X 線結晶構造解析技術の共有を目指して施設共同利用を主体にした利用研究である。研究者は誰でも精製したサンプルさえあれば、インデペンデントに当所で結晶化を試み（自分の実験室でも可能）、結晶さえできれば構造解析も可能である。この技術の獲得には、小規模研究室ではとてもまかないきれない多額の資源が投資された。修得した技術は日本大学や学外の研究者に還元されるべきものであり、希望があれば、操作方法や解析技術を丁寧に伝授することも可能である。これらは数名の研究者の力を合わせた努力の賜物であるが、今後、NUSRG が構築した X 線結晶構造解析実験室は、日本大学内はもちろん学外においても、国民の貴重な資源の投資に見合う発展を強く待望したい。

共同研究のチャンスを与えていただいた共著者の皆様にお礼を申し上げて、表題の結語にしたい。

文献

- 1 S. N. Vinogradov, D. A. Walz, B. Pohajdak, L. Moens, O. Kapp, H. Suzuki and C. N. A. Trotman (1993). Adventitious variability? The amino acid sequences of nonvertebrate globins. *Comp. Biochem. Physiol.* **106B**, 1-26.
- 2 M. F. Prutz (1983). Species adaptation in protein molecules. *Mol. Biol. Evol.* **1**, 1-28.
- 3 宍倉文夫 (2002). 生体高分子立体構造解析実験室の立ち上げ. *日大医誌*. **61**, 179.
- 4 宍倉文夫, 石川紘一, 奥 忠武, 杉田博昭, 高木 尚, 後藤寿夫 (2005). ヘモグロビンの構造研究と日本大学生体高分子研究グループ. 日本大学量子科学研究所 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」総合研究成果発表会報告集, .
- 5 URLs: <http://www.um.u-tokyo.ac.jp>; <http://www.city.zushi.kanagawa.jp>.
- 6 T. Suzuki, T. Takagi and S. Ohta. (1989). Primary structure of a dimeric haemoglobin form the deep-sea cold-seep clam *Calypptogena soyoae*. *Biochem. J.* **260**, 177-182.
- 7 T. Suzuki, T. Takagi and S. Ohta. (1989). Amino acid sequence of the dimeric hemoglobin (Hb I) from the deep-sea cold-seep clam *Calypptogena soyoae* and the phylogenetic relationship with other molluscan globins. *Biochim. Biophys. Acta* **993**, 254-259.
- 8 T. Suzuki and S. Ohta. (2000). The hemoglobin gene of the deep-sea clam *Calypptogena soyoae* has a novel intron in A-helix. *Int. J. Biochem. Cell Biol.* **32**, 1205-1211.
- 9 URLs: <http://hiru.jp/haemadipsa.html>, <http://www.tle.co.jp/ui/leech/summary.html>
- 10 F. Shishikura, T. Ochiai and I. Yamanaka. (1997). Leech extracellular hemoglobin: two globin strains that are akin to vertebrate hemoglobin α and β chains. *Zool. Sci.* **14**, 923-930.
- 11 F. Shishikura. (2004). The complete amino acid sequences of four globins from the land leech *Haemadipsa zeylanica* var. *japonica*. *Comp. Biochem. Physiol.* **137B**, 443-454.
- 12 F. Shishikura (2004). Leech hemoglobin: primary structures of four kinds of globins from *Haemadipsa*

zeylanica var. *japonica*. *Micron* **35** 123-125.

- 13 W. E. Royer, Jr., K. Strand, M. van Heel and W. A. Hendrickson (2000). Structural hierarchy in erythrocrucorin, the giant respiratory assemblage of annelids. *PNAS* **97**, 7107-71111.
- 14 C. C. Hentschel R. M. Kay, J. and G. Williams (1979). Analysis of *Xenopus laevis* globins during development and erythroid cell mutation and the construction of recombinant plasmid containing sequences derived from adult globin mRAN. *Dev. Biol.* **72**, 350-363.
- 15 M. Yamaguchi, H. Takahashi and M. Wakahara (2000). Erythropoiesis and unexpected expression pattern of globin genes in the salamander *Hynobius retradatus*. *Dev. Genes Evol.* **210**, 180-189.
- 16 F. Shishikura and H-a. Takeuchi. (2004). *Ambystoma mexicanum* (axolotl, Amphibia) hemoglobin: The complete amino acid sequences of two types of α globins and one β globin. *Zool. Sci.* **21**, 1327.

表 - 1 Status of the Protein Structure (Nihon University Structural Research Group, NUSRG)

No.	Target ID	Name	Soluble	Purified	Primary Sequence	Crystal Screening	Crystallized	X-ray Diffraction	Refinement & Model	Sample Collaborator	PDB ID	Published
1	HbDGG	Hemoglobin D from <i>Geochelone gigantea</i>	yes	yes	yes ¹⁾	yes	yes	yes	yes		1V75	PPL, 10(4): 422-425, 2003.)
2	HbDcGG	Hemoglobin D-crystal aggregate from <i>G. gigantea</i>	yes	yes	yes ¹⁾	yes	yes	yes	yes		1WMU	
3	HbAGG	Hemoglobin A from <i>Geochelone gigantea</i>	yes	yes	yes ³⁾							
4	HbDCOGG	Hemoglobin D-CO from <i>Geochelone gigantea</i>	yes	yes	yes ¹⁾	yes						
5	HbDGN	Hemoglobin D from <i>Geochelone nigra</i>	yes	yes	yes ¹⁾							
6	HbAGN	Hemoglobin A from <i>Geochelone nigra</i>	yes	yes	yes ³⁾							
7	HbPH	Hemoglobin from <i>Pheretima hilgendorfi</i>	yes	yes	yes ⁵⁾							
8	HbHZ	Hemoglobin from <i>Haemadysa seylanica</i>	yes	yes	yes ⁶⁾	yes						
9	HbV	Hemoglobin V from <i>Tokunagapusurika akamusi</i>	yes	yes	yes ⁷⁾	yes	yes	yes	yes	Dr. Takagi		
10	HbVII	Hemoglobin VII from <i>Tokunagapusurika akamusi</i>	yes	yes	yes ⁸⁾	yes	yes	yes	yes	Dr. Takagi		
11	HbCSI	Hemoglobin I from <i>Calypogena soyocae</i>	yes	yes	yes ⁹⁾	yes				Dr. Suzuki		
12	HbCSII	Hemoglobin II from <i>Calypogena soyocae</i>	yes	yes	yes ¹⁰⁾					Dr. Suzuki		
13	HbMAM	Hemoglobin M from <i>Ambystoma mexicanum</i>	yes	yes	yes ¹¹⁾	yes				Dr. Takeuchi		
14	HbmAM	Hemoglobin m from <i>Ambystoma mexicanum</i>	yes	yes	yes ¹²⁾	yes				Dr. Takeuchi		
15	HcTT	Hemocyanin from <i>Tachypleus tridentatus</i>	yes	yes	yes ¹³⁾	yes				Dr. Sugita		

1) AB072353, 2) P83131, P83132, P83134, P83135; 3) AB116519, AB1165120, AB1165121, AB116522, AB116523, AB116524; 4) AB116518, AB116522, AB116523, AB116524; 5) P83122; 6) AB119122, AB119123, AB119124, AB119125; 7) Q7M421; 8) Q7M422; 9) AB186047; 10) AB186048; 11) AB185144, AB185146; 12) AB185145, AB185146; 13) *Zool. Sci.*, 12, 551-667 (1995).

アルダブラゾウガメ・ヘモグロビン D(Hb D)の構造解析

桑田隆生¹、長谷川智一²、佐藤勇¹、石川紘一³、宍倉文夫⁴

1 日本大学量子科学研究所 (〒274-8501 船橋市習志野台 7-24-1)

2 リガク X 線研究所 (〒196-8666 昭島市松原町 3-9-12)

3 日本大学医学部薬理学教室 (〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

4 日本大学医学部生物学教室(〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

序論

脊椎動物の赤血球中には、生体の生理的変動に応じて、複数のヘモグロビン(Hb)が発現している。爬虫類アルダブラゾウガメ(*Geochelone gigantea*)には、脊椎動物一般に見られる Hb A (adult hemoglobin)と鳥類ではじめて発見された Hb D (definitive hemoglobin) の2種類の Hb が存在することが知られている(Shishikura and Takami, 2001)。Hb D は、哺乳類の胎生 Hb との一次構造上の類似性などが指摘されており、有羊膜類 Hb の機能・構造研究、さらに分子進化学的研究に興味深い課題を提起している(宍倉, 2002)。

アルダブラゾウガメ Hb D は分離精製～濃縮の過程で、結晶性の沈殿を生じることが明らかになった。これまでも、鳥類 Hb D や人 Hb S(sickle cell hemoglobin)で結晶性の沈殿が生じることが知られており、それらは脱酸素化により Hb 四量体が会合して形成されると考えられている。酸素結合・脱酸素化に伴う Hb 四量体の構造変化は良く知られた現象であるが、Hb D や Hb S は脱酸素化によって、より高次の構造変化(Hb 四量体の会合)を起こすため、その生化学的、構造生物学的研究に注目が集まっている。しかし、Hb D の立体構造は鳥類において酸素結合型(oxy Hb)の構造が一例報告されているに過ぎず、Hb D 四量体の会合に関する詳しい情報は明らかではない。アルダブラゾウガメ Hb D に生じた結晶性沈殿の構造解析は、Hb D 四量体の会合を知る上で、重要な情報を提供するものと期待できる。

そこで本研究では、アルダブラゾウガメ Hb D の X 線結晶構造解析を行い、結晶内における Hb D の立体構造、Hb D 四量体の会合状態、さらに Hb 四量体の会合に至る構造変化の過程を解明することを目的とする。

アルダブラゾウガメ Hb D の X 線結晶構造解析

本研究では、成長条件を変えた2種類の Hb D の結晶を作製することに成功した。一つ目は、結晶化剤(10% PEG3350, 50mM HEPES-Na, pH 7.5)を用いたハンギングドロップ蒸気拡散法(20°C)により成長した結晶である(結晶 1)(Kuwada et al., 2003)。二つ目は、結晶化剤を用いずに Hb D サンプル中に生じた結晶性沈殿をそのまま成長させた結晶である(結晶 2)。

得られた結晶を用いて X 線回折実験を行い、結晶 1 では 2.02 Å 分解能、結晶 2 では 1.65 Å 分解能の、良質の回折データを収集することに成功した。いずれの結晶も空間群 C2 に属し、非対称単位内に $\alpha^D\beta$ 二量体を含んでいた。格子定数は、結晶 1 では $a=112.1\text{ \AA}$ 、 $b=62.4\text{ \AA}$ 、 $c=54.0\text{ \AA}$ 、 $\beta=110.3^\circ$ 、結晶 2 では $a=112.0\text{ \AA}$ 、 $b=62.1\text{ \AA}$ 、 $c=53.9\text{ \AA}$ 、 $\beta=110.0^\circ$ と非常に良く似た値であった。

結晶 1 では鳥類(ガン)の Hb A(PDB ID: 1A4F)を用いた分子置換法により初期位相を決定し、構造精密化を進め立体構造を決定した。最終モデルには、非対称単位内の $\alpha^D\beta$ 二量体全 287 アミノ酸残基中 283 残基、ヘム 2 個、水分子 414 個が含まれ、結晶学的 R 値(R_{free})は 18.8(23.3)%となった。結晶 2 では、結晶 1 の解析から得られたゾウガメ Hb D の分子モデルを基に構造精密化を行い、立体構造を決定した。最終モデルには、非対称単位内の $\alpha^D\beta$ 二量体全 287 アミノ酸残基、ヘム 2 個、水分子 510 個が含まれ、結晶学的 R 値(R_{free})は 19.3(22.0)%となった。

結晶内のアルダブラゾウガメ Hb D の立体構造

Hb D の結晶 2 は、結晶化剤を用いない温和な条件下で結晶性沈殿を成長させて得られた結晶であるため、その立体構造は Hb D 四量体の会合を解明するために重要な情報を与えてくれるものと期待できる。なお、結晶 1 と結晶 2 から得られた分子モデルに構造上の違いはほとんど見られなかった。

Hb D の構造解析で得られた電子密度を確認すると、 α^D 鎖、 β 鎖共に、へムに結合するリガンドの電子密度が存在することが明らかになった。電子密度の形状や結晶化条件から、解析した Hb D はへムに水分子が結合した aquomet Hb D であることが推定される。これまで Hb D の結晶性沈殿は脱酸素化によって生じる、つまり結晶性沈殿を形成する Hb D は脱酸素型である、と考えられていた。しかし、本研究の解析からリガンド結合型(aquomet)Hb D でも結晶性沈殿が生じうるという新知見を得るに至った。

Hb D 四量体の会合部位

Hb D 四量体の会合部位は、これまでにシミュレーション(Cobb et al. 1992)や oxy Hb D の構造解析(Knapp et al., 1999)から推定されているが、未だ統一した見解は得られていない。Cobb et al. (1992)は α^D 鎖のアミノ酸残基が Hb D 四量体の会合に貢献しているとしたのに対し、Knapp et al. (1999)は β 鎖のアミノ酸残基が関与していると推定した。しかし、アルダブラゾウガメ Hb D の結晶構造の解析から、Hb D 四量体の会合には α^D 鎖のアミノ酸残基と β 鎖のアミノ酸残基が関与していること、また、Hb D 四量体の会合部位には二つのタイプが存在すること(会合部位 I と II)が明らかになった。

会合部位 I では、 α^D 鎖 CD corner 及び E helix の 3 アミノ酸残基と、 β 鎖 D helix 及び E helix の 3 アミノ酸残基が水素結合を形成し Hb 四量体の会合に関与している。会合部位 I は、Hb S などで確認された Hb 四量体の会合部位とほぼ一致している。一方、会合部位 II では、 α^D 鎖 A helix の 4 アミノ酸残基と、 β 鎖 A helix 及び B helix の 7 アミノ酸残基が水素結合を形成しており、Hb S 四量体の会合部位や推定されている Hb D 四量体の会合部位とは全く異なることが明らかになった。

Hb D 四量体会合を導く構造変化

リガンドの解離・結合によって、Hb D 四量体の会合・解離が生じるには、リガンドの解離・結合によって起こった Hb の構造変化が、Hb 四量体の会合部位に伝達される必要がある。本研究では、oxy Hb D(Knapp et al., 1999)の立体構造との比較から、その構造変化の過程を推定した。

本研究で明らかにした aquomet Hb D と oxy Hb D の構造上の相違点の一つが、 α^D 鎖 E helix のジオメトリの違いである。aquomet Hb D と oxy Hb D の α^D 鎖 E helix を比較すると、aquomet Hb D の E helix は oxy Hb D に比べて、EF corner 方向に移動していることが明らかになった。へム結合部位である E helix はリガンドの有無を認識し、構造変化を起こすことが知られている。aquomet Hb D と oxy Hb D に見られる E helix のジオメトリの違いは、へムに結合したリガンド分子の違い(水分子と酸素分子)によるものと推定される。

さらに aquomet Hb D と oxy Hb D の相違点として、 α^D 鎖 B helix のアミノ酸残基と E helix のアミノ酸残基との間の水素結合の有無があげられる。aquomet Hb D では α^D 鎖 B helix と E helix のアミノ酸残基間に水素結合が存在するのに対し、oxy Hb D にはそれらの水素結合は存在しない。この水素結合は、E helix が EF corner 方向へ移動し B helix に近づくことで形成されると考えられる。すなわち、 α^D 鎖 B helix と E helix 間の水素結合の有無は、リガンドの違いによる E helix のジオメトリの変化に由来すると推定される。

α^D 鎖のへム結合部位である E helix は、Hb D 四量体の会合部位 I に隣接した構造である。そのため、リガンド分子の結合・解離またはリガンド分子の違いによって生じた E helix の構造変化は、直接、会合部位 I の構造変化を導く可能性が高い。さらに、E helix の構造変化によって B helix との間に水素結合が生じ、B helix

の構造、さらに *B helix* に隣接した会合部位 II の構造に影響を与える可能性が考えられる。すなわち、リガンドの結合状態によって変化する *E helix* の構造が、直接あるいは間接的に会合部位 I・II の構造変化を導き、Hb D 四量体の会合・解離を引き起こすと推定される。

結論

本研究では、アルダブラゾウガメ Hb D の X 線結晶構造解析から、Hb D の立体構造を決定し Hb D 四量体の会合に関わる二つの部位を解明した。また、oxy Hb D の構造との比較から、Hb 四量体の会合に至る構造変化の過程を推定するに至った。本研究は、爬虫類 Hb の立体構造の解析としても初の試みである。

また現在、一酸化炭素結合型 Hb D(CO Hb D)の X 線結晶構造解析を進めている。CO HbD の立体構造の解析から、Hb 四量体会合に関するより詳細な情報を得られるものと期待される。

引用文献

- Cobb, J. A., Manning, D., Kolatkar, P. R., Cox, D. J. & Riggs, A. F. (1992). Deoxygenation-linked association of a tetrameric component of chicken hemoglobin. *J. Biol. Chem.* **267**, 1183-1189.
- Knapp, J. E., Oliveira, M. A., Xie, Q., Ernst, S. R., Riggs, A. F. & Hackert, M. L. (1999). The structural and functional analysis of the hemoglobin D component from chicken. *J. Biol. Chem.* **274**, 6411-6420.
- Kuwada, T., Hasegawa, T., Satoh, I., Ishikawa, K. & Shishikura, F. (2003). Crystallization and preliminary x-ray diffraction study of hemoglobin D from the Aldabra giant tortoise, *Geochelone gigantea*. *Prot. Pept. Lett.* **10**, 422-425.
- Shishikura, F. & Takami, K. (2001). The amino acid sequences of the α - and β -globin chains of hemoglobin from the Aldabra giant tortoises, *Geochelone gigantea*. *Zoolog. Sci.* **18**, 515-526.
- 宍倉文夫 (2002). 爬虫類のヘモグロビン：ゾウガメ(*Geochelone gigantea* と *Geochelone nigra*)グロビンの分子進化. 日大医学雑誌, **61**, 263-276.

カブトガニ・ヘモシアニンサブユニット(HT6)の結晶化

桑田隆生¹、長谷川智一²、杉田博昭³、宍倉文夫、佐藤勇¹

1 日本大学量子科学研究所 (〒274-8501 船橋市習志野台 7-24-1)

2 リガク X 線研究所(〒196-8666 昭島市松原町 3-9-12)

3 筑波大学生物科学系(〒305-8577 つくば市天王台 1-1-1)

4 日本大学医学部生物学教室(〒173-8610 板橋区大谷口上町 30-1)

序論

ヘモシアニン(Hemocyanin; Hcy)は、銅を含む酸素運搬蛋白質で、節足動物や軟体動物に広く存在している。節足動物の Hcy は分子量約 75k のサブユニット蛋白質から構成されており、Hcy が効率良く酸素を運搬するためには、Hcy サブユニットが 6 量体を形成する必要があると考えられている。多くの節足動物ではそれらの 6 量体が会合した多重 6 量体として体液中に溶存している。

カブトガニ類では、アミノ酸配列の異なる 6~8 種類の Hcy サブユニットが、48 量体(6 量体×8)を形成し生体中で機能している。この巨大な蛋白質複合体である Hcy の立体構造、さらに酸素の結合・解離に伴う Hcy の立体構造の変化(アロステリック効果)の解明は興味深い研究課題といえる。しかし、カブトガニ類を含む節足動物 Hcy の立体構造に関する知見は極めて少なく、カブトガニ類ではアメリカカブトガニ(*Limulus polyphemus*)において 1 種類の脱酸素型 Hcy サブユニット(LP II)の立体構造 (Hazes et al. 1993)が部分的に決定されているに過ぎない。節足動物全体でも計 2 種類の Hcy サブユニットの立体構造が報告されているのみである。

本研究は、巨大な蛋白質複合体として機能する節足動物 Hcy の立体構造について詳細な知見を得ることを目的としているが、先ずその前段階としてカブトガニ(*Tachypleus tridentatus*)の Hcy サブユニット(HT6)の結晶構造の解明に着手した。本発表では、脱酸素型 HT6 の結晶化についてその進捗状況を報告する。

カブトガニ Hcy サブユニット(HT6)の結晶化および X 線回折実験

カブトガニの Hcy サブユニット HT6 は、ゲルろ過クロマトグラフィー及びイオン交換クロマトグラフィーにより分離精製した(Sugita and Shishikura, 1995)。精製後の HT6 サンプルを限外ろ過によって濃縮し、さらに濃縮サンプルの脱酸素化を窒素雰囲気下で実施し、結晶化サンプルとした。

既知のアメリカカブトガニ Hcy サブユニットの結晶化条件(Hazes et al., 1993; Liu and Magnus, 2002)を参考に 5~30%の PEG(polyethylene glycol)を含む結晶化剤を調整し、HT6 の結晶化条件の探索を行なった。結晶化はハンギングドロップ蒸気拡散法を用い、5°C及び 20°Cの温度条件下、窒素雰囲気下で実施した。その結果、5~10% PEG、50 mM Tris-HCl (pH7.5)を結晶化剤として、微小結晶、単結晶、双晶を得ることに成功した。得られた結晶のうち、比較的形状の良かった単結晶(約 0.2×0.1×0.05mm)を用いて回折データの収集を試みた。

X 線回折実験はリガク X 線研究所にて実施し、20% Glycerol 溶液を抗凍結剤とした低温測定によって、回折データの収集を試みた。しかし、X 線回折パターンは 50~30 Å分解能程度の反射しか得られず、結晶構造の決定に必要な、良質な回折データを収集するには至らなかった。しかしながら、得られた回折データを解析すると、HT6 結晶は空間群 R32 に属し、格子定数は最長辺で 300 Åを超えると推測された。これは先行研究(Hazes et al., 1993)で明らかになっている Hcy 結晶の結晶系と良く似ている。

節足動物の Hcy は、サブユニット蛋白質の多重 6 量体として生体中に存在しているが、Hcy 結晶内でもサブユニットが 6 量体を形成していることが明らかになっている。このサブユニットの 6 量体形成は、高濃度の NaCl や二価の金属イオンの存在によって促進され、Hcy の結晶の形成に良好な影響を与えられていると考えられて

いる(Liu & Magnus, 2002)。HT6 の結晶化においても、これらの無機塩を添加することで結晶性が改善されることが期待されるため、現在、各種無機塩を加えた結晶化剤を作製し、結晶化条件の最適化を進めている。

カプトガニ Hcy サブユニット(HT6)結晶の溶解と再結晶化

PEG 溶液を結晶化剤とした HT6 の結晶化では、結晶の質に問題はあるものの、比較的短期間(～10 日程度)で結晶成長を確認できる。短期間で成長した結晶は、薄い結晶がクラスターを形成した双晶として確認されることが多いが、一度双晶として成長した結晶が溶解し、新たに別の単結晶あるいは双晶が成長するという現象が確認された。少なくとも Hcy 結晶化に関する先行研究にこのような現象は報告されていない。

一つの結晶化バッチの中に、結晶系が異なる複数の結晶が生じることは良く知られた事実であるが、成長した結晶が溶解し、新たな結晶が生じるという現象は極めて稀なことと言える。いまのところ、新たに生じた結晶の溶解は確認されていないため、より安定な結晶構造を形成していることが推測できる。HT6 において、このような現象が起こる原因や、最初に生じた結晶と新たに生じた結晶との結晶系の違いなど、いずれについても詳細は不明であるが、HT6 に見られる結晶の変化は蛋白質の結晶の成長過程を知る上でも、興味深い研究課題と考えられる。

結論

カプトガニの Hcy サブユニット(HT6)の結晶の作製に成功した。しかし、良質な回折データの収集には至らず、より良質の結晶の作製が必要と考えられるため、現在、HT6 の結晶化条件の最適化を進めている。

また、HT6 の結晶が成長する過程で、結晶が溶解し再結晶化するという現象が観察された。HT6 の結晶成長は、蛋白質結晶の成長過程を知る上でも興味深い研究課題と考えられる。

引用文献

- Hazes, B., Magnus, K. A., Bonaventura, J. B., Dauter, Z., Kalk, K. H., and Hol, W. G. J. (1993) Crystal structure of deoxygenated *Limulus polyphemus* subunit II hemocyanin at 2.18 Å resolution: Clue for a mechanism for allosteric regulation. *Prot. Sci.*, **2**, 597-619.
- Liu, S., and Magnus, K. A. (2002) Preliminary crystallographic studies of *Limulus polyphemus* hemocyanin subunits IIIa, IIIb and IV. *Biochem. Biophys. Acta*, **1596**, 177-181.
- Sugita, H., and Shishikura, F. (1995). A case of orthologous sequences of hemocyanin subunits for an evolutionary study of horseshoe crabs: Amino acid sequence comparison of immunologically identical subunits of *Carcinoscorpius totidicauda* and *Tachypleus tridentatus*. *Zool. Sci.*, **12**, 661-667

電子線形加速器におけるパルス内ビーム変動に関する研究

高崎 寛 1)、田中俊成 2)、榊 泰直 3)、佐藤 勇 2)、早川 建 2)、早川恭史 2)
野上杏子 2)、境 武志 2)、石渡謙一郎 1)、中尾圭佐 1)

1) 日本大学大学院 理工学研究科

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎物理実験 B 棟

2) 日本大学大学院 電子線利用研究施設

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎物理実験 B 棟

3) 日本原子力研究所 大強度陽子加速器施設開発センター 加速器グループ

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方 2-4

1.序論

一般にどのような加速器施設においても、加速器の運転を行なうと、何らかの機器トラブルによるビーム不安定な状況が必ず観測される^{[1][2]}。このような場合、加速粒子ビームの振舞に注目して、加速器の挙動を示す信号を計測し、その挙動の解析から原因の究明がされることが多い。

電子線利用研究施設(LEBRA)の 125MeV 電子線形加速器については、加速器の挙動を示す主な信号として

- 1) クライストロン出力 RF 電力波形
- 2) 加速器側からの RF 反射波形
- 3) クライストロン出力 RF 位相波形
- 4) 電子ビーム電流値
- 5) ビーム位置モニター(BPM)波形
- 6) 真空値

の 6 種類が挙げられる。

この 6 種類の信号を取得することで加速器全体の挙動を詳細に知ることができるが、信号数が多いことと、現在 0.5 秒に 1 回のパルス運転を行っている為、時刻を同期させて波形を詳細に計測することは従来困難であった。それを可能にするため、本研究ではニチゾウ電子制御株式会社製のウェーブエンドレスレコーダーという波形記録装置を導入した。加速器の運転ではトリガー信号を使い、各機器を同期させて電子ビームを加速しているが、ウェーブエンドレスレコーダーは、トリガー信号に対し完全に同期させながら、複数の信号を同時にデジタル量とし

て記録することができ、異常波形を検知する機能も備えたデジタルレコーダーである。

本研究においては、このレコーダーで取得した信号を元に

1) 同期したパルス内の RF 位相変動とビームエネルギー変動の相関

2) 異常波形検出時の信号と実際に起きている現象との因果関係

についての解析を行った。

2.実験装置 (ウェーブエンドレスレコーダー)

ニチゾウ電子制御株式会社で製造されたウェーブエンドレスレコーダーは、トリガー信号を検知するごとにトリガー信号を数え、トリガーに応じた番号を持つデータとして、波形を個別に記録できる装置である。装置には、4ch の BNC アナログ入力端子が用意されており、最大±10V のアナログ入力に対して、12 ビット・10MS/s(0.1μs に一点のサンプル)の分解能でデータ収集が可能である。またトリガーを検出するたびに、あらかじめ設定されたサンプル点数分サンプリングを行い、トリガー番号と共に 1 つの波形データとして記憶する。これによりパルス部分だけデータを保存できるため、データ量が従来よりも小さくなる。またトリガー番号も同時に保存させる為、データの管理も容易になった。

さらにウェーブエンドレスレコーダーにはエラーイベント監視機能があり、波形データを監視し、条件を満たさない波形を検知したときには、「チャンネル番号」、「トリガー番号」、「エラー内容」、を UDP/IP

通信で上位監視 PC へ通知する。パルス異常監視条件は「波高値の高低」、「フラットトップ異常」、「パルス幅異常」が設定可能である。

本研究では日本原子力研究所の榊氏のご好意により、3 台のウェーブエンドレスレコーダーを借用し、合計 12ch の加速器信号の常時監視を行った。

3. 加速 RF の位相変動とビームエネルギー変動との相関関係

45° 偏向電磁石を通った後のビームの軌道位置は、偏向電磁石磁場の強さと電子のエネルギーで決まる為、45° 偏向部に設置した BPM 信号の変動値の測定からパルス内でのエネルギー変動を知ることができる。位相変動がビームのエネルギー変動に与える影響を調べるため、電子ビームを 80MeV まで加速していたときの連続 15 波形のデータを使い、加速 RF の位相変動とビーム位置の相関を求めた。

図 3.1 にクライストロン 1 号機の出力 RF 位相とビーム位置との関係の例を示す。この図に見られるように、クライストロン 1 号機の出力 RF 位相波形とビーム位置には強い相関があると言える。クライストロン 2 号機の出力 RF 位相波形でも同様のことを行ったが明らかな相関は見出せなかった。

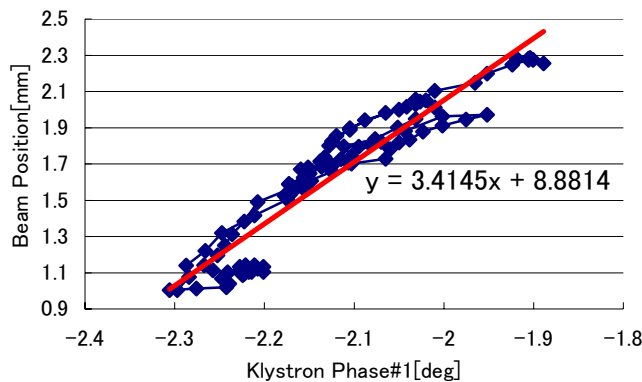


図 3.1 クライストロン 1 号機の出力 RF 位相変動とビーム位置変動の相関図

次に使用した波形ごとに最小二乗法を適用して相関関係を求めた。図 3.1 内の赤線は得られたビーム位置の位相依存性を示す。この直線の傾きは、15 波形のうちの一つについての位相依存性を示している。15 波形について傾きの平均を求めたところ 3.3[mm/deg] になった。LEBRA に設置されている 45° 偏向電磁石から BPM までの粒子軌道計算を行ない、1%

のエネルギー変動でビームは中心軌道から BPM の位置で 4.23 mm ずれることを求めた。これにより、この時の 1 号機の出力 RF 位相変動に対するビームエネルギー変動は 0.78 % / deg と求まる。

これらの結果からクライストロン 1 号機出力 RF の位相変動は、クライストロン 2 号機出力 RF 位相変動に比べて、ビームエネルギー変動との間に強い相関があることが分かった。これは 1 号機からの加速 RF は加速器のバンチャー、プリバンチャー、加速管といった加速序盤の RF のフィリングタイムが異なる機器に供給されており、電子のエネルギーも低く、加速 RF の位相変動が強く影響し、それにより電子ビーム内のバンチ位相のずれが大きく、エネルギー変動に大きく寄与しているためと考えられる。

4. イベント時におけるビーム診断

約 125 万パルスの信号に対し常時監視を行い、ウェーブエンドレスレコーダーで設定した以上の変動が起きた異常波形のデータを 1403 波形分取得した。異常時の波形の振舞から全ての波形を全 8 パターンに分類することができた。異常波形を検知した際の RF 出力電力波形の取得例を図 4.1 に示す。図 4.1 において緑色の波形が正常時の波形、赤線の波形が異常時の波形を示している。また図 4.1 の異常波形 7 では RF 出力電力波形では異常が見られないが、同時期に電子ビーム電流値が増え、それに伴うビームエネルギーの低下が起きていることを観測した。

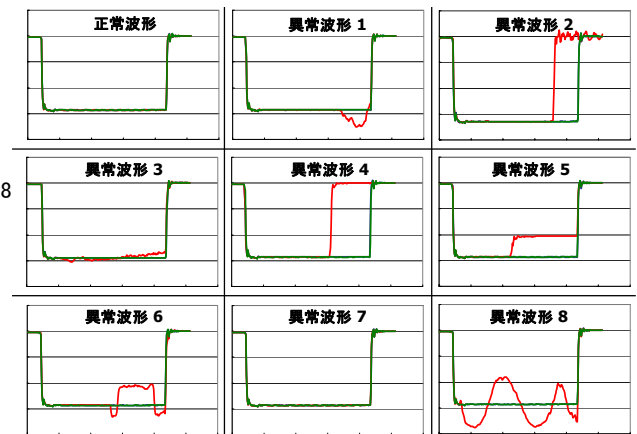


図 4.1 各イベントが起きた際の RF 出力電力波形の振舞

図 4.2 は異常信号が観測された時の各波形の取得例で、図 4.1 中の異常波形 5 が起きた時の各信号の変動を示している。同じように 8 パターンの異常波形が起きた時の各信号の変動を取得し、異常信号が

検出された際の放電音や真空度の変化から原因箇所を推察すると、各異常波形は

- 1)SF₆(六フッ化硫黄ガス)加圧部での放電
- 2)クライストロンアセンブリタンク内での放電
- 3)高周波窓付近での放電
- 4)高周波窓での現象と考えられる別の振舞
- 5)バンチャー部での放電
- 6)バンチャー部と考えられる別の現象
- 7)電子銃付近での真空悪化による現象
- 8)加速管付近での放電

が原因で起きた現象なのか推察することができた。

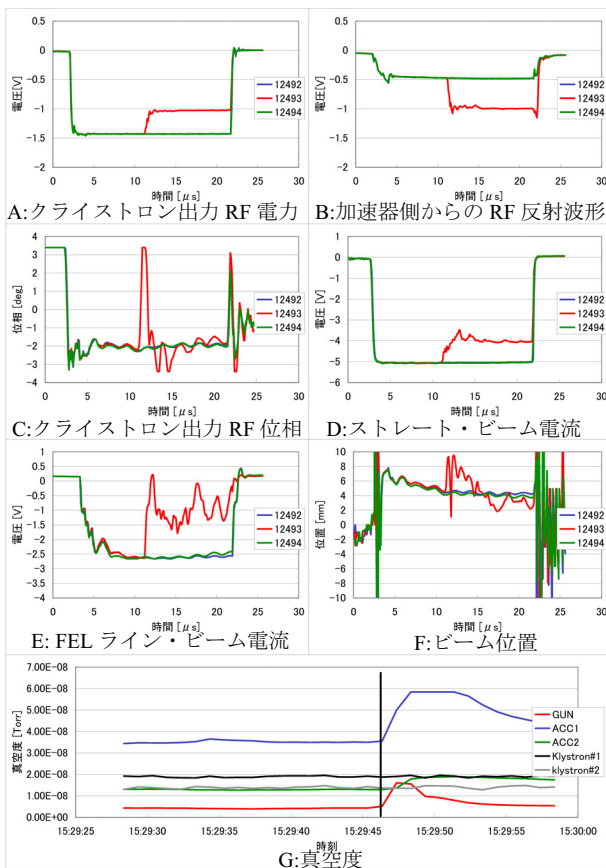


図 5.2 異常波形取得例

A から F 内の波形はそれぞれ、赤線はイベント時の波形、青線はイベントより 1 波形前の波形、緑線はイベントより 1 波形後の波形を示している。

また 8 パターンの異常波形共通で

- 1)なにか異常が起きてもビームは次のパルスでは正常に戻っている。
- 2)電子ビームが不安定な時は、他の波形でも異常が観測される。
- 3)各現象の波形にはそれぞれ明らかな特徴がある。

ということが分かり、今まで測定できた波形においては、加速 RF 出力波形と真空の信号を観測していれば、どんな異常が起きているか分かるようになった。

5.結論

本研究ではビームの振舞を知るために、時間を同期させながら計測した加速器の挙動を示す 6 種類の信号を解析し、以下の結果を得ることができた。

1. クライストロン出力 RF 位相変動とビームエネルギー変動の相関を求め、特にクライストロン 1 号機の出 RF 位相変動とビームエネルギー変動に強い相関が存在することが確認された。一方 2 号機の出 RF との明確な相関は見られなかった。

2. 加速器運転中に検出された異常波形を 8 パターンに分類することができ、その現象ごとになにが起きているかを推定することができるようになった。

参考文献

- [1] 佐藤勇, "日本大学電子線利用研究施設の現状", Proceedings of the 28th Linear Accelerator Meeting in Japan, July 30 –August 1, 2003, Tokai, Japan p1-p3
- [2] 榊泰直, "プレレコーディング機能つきパルス波形監視装置の開発", Proceedings of the 28th Linear Accelerator Meeting in Japan, July 30 –August 1, 2003, Tokai, Japan p96-p98

パラメトリック X 線のエネルギー特性に関する研究

城所明生¹, 早川恭史², 佐藤勇², 早川建², 田中俊成², 森啓², 野上杏子², 境武志²

1) 日本大学大学院理工学研究科量子理工学専攻

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎 物理実験 B 棟

2) 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学理工学部船橋校舎 物理実験 B 棟

1. 本研究の目的と背景

日本大学電子線利用研究施設(LEBRA)では、125 MeV の電子線形加速器とアンジュレーターを用いて自由電子レーザー(FEL)の発振に成功した^[1]。一方で、2004 年 4 月には、この電子線形加速器を用いてパラメトリック X 線放射(PXR)の観測に成功している^[2]。

現在の大型放射光施設で得られるシンクロトロン放射光は従来の X 線管に比べて 10 桁以上も高輝度で、かつ準単色の光を得ることができる。しかし、大型円形加速器が必要となり、広大な土地が必要で建設にも莫大な費用が掛かるといった欠点がある。

このような背景もあり、放射光とは異なった過程によるコヒーレントな X 線源が注目されるようになった。そのひとつが PXR である。PXR の特徴の一つとして、水平方向にエネルギー分布を持っていることが挙げられる。

LEBRA の PXR 発生装置は、世界で初めてのシリコン完全単結晶を用いた二結晶型のシステムである。そこで、LEBRA での PXR エネルギー測定を行い、エネルギー分布が理論的な予想と一致する事を実験的に確認することにした。

2. パラメトリック X 線放射

2.1 パラメトリック X 線放射とは

PXR は図 2.1(b)のような幾何学的配置で発生する。PXR はよく知られた X 線ブラッグ回折(図 2.1 (a))において、結晶に入射する X 線を相対論的な荷電粒子に置き換えた形になっている。相対論的な荷電粒子と物質を構成する原子との相互作用によって発生する電磁放射現象としては制動放射、チェレンコフ放射、遷移放射が挙げられるが、PXR は媒質が結晶である場合の遷移放射の特殊ケースである。PXR は、相対論的な荷電粒

子から媒質が受ける電場が、X 線の作る電場に近いものになっているために生じる現象であり、荷電粒子に伴う仮想光子のブラッグ回折という解釈も可能である。結果として散乱される X 線のエネルギー(波長)は、ブラッグ条件

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2.1)$$

をほぼ満たすようなものとなっている。ここで、波長 λ 、面の格子間隔 d である。

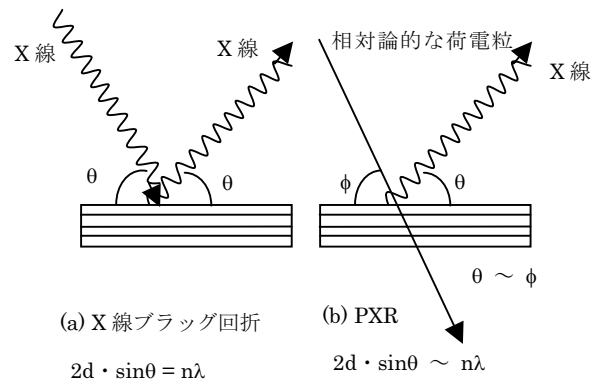


図 2.1 X 線ブラッグ回折(a)と PXR(b)

2.2 PXR のエネルギー

入射荷電粒子をエネルギー E 、運動量 \mathbf{p} の電子とし、逆格子ベクトル \mathbf{g} をもつ結晶との相互作用で発生する PXR を考える。エネルギー・運動量保存則は、

$$E = E' + \hbar\omega \quad (2.2)$$

$$\mathbf{p} + \hbar\mathbf{g} = \mathbf{p}' + \hbar\mathbf{k} \quad (2.3)$$

と表せる。ここで、 E' 、 \mathbf{p}' は散乱後の電子のエネルギー・運動量であり、 ω 、 \mathbf{k} は PXR の振動数、波数ベクトルである。

$$E = \hbar\omega = \frac{c^* \hbar |\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}|}{c^* - \mathbf{v} \cdot \boldsymbol{\Omega}} \quad (2.9)$$

となる。 \mathbf{v} は電子の速度であり、 $\boldsymbol{\Omega}$ は PXR 放出方向の単位ベクトルである。 c^* は結晶媒質中での光の速さである。

2.3 LEBRA における PXR 発生装置

LEBRA では、自由電子レーザー用に開発された 125 MeV 電子線形加速器に新しい電子ビームラインを設け、そこに PXR 発生装置を設けた。LEBRA における PXR 発生装置は、X 線のエネルギーを変えても同じ取り出しポートから X 線を取り出すことができるように二結晶型となっている。二枚目の結晶は一枚目の結晶で発生した PXR を X 線取り出しポートへ導くための鏡の役割をしている。本論文では、ここで発生した X 線をビームと呼ぶ。二結晶型の PXR 発生装置による PXR はリニアなグラデーションをもっている。

LEBRA における現在の PXR 発生装置の性能を表 2.1 に示す。

表 2.1 LEBRA における現在の PXR の性能

電子の照射エネルギー	100 MeV
照射ビームの電流	100 mA
電子ビームのパルス幅	20 μ s
電子ビームの繰り返し数	2.5 Hz
標的物質	Si(111) 20 μ m 厚
第二標的物質(反射用)	Si(111) 5 mm 厚
X 線のエネルギー範囲	5~20 keV (実績:7~20 keV)

2.4 二結晶型 PXR 発生装置のエネルギー特性

二結晶での PXR の振る舞いを考える。ブラッグ角が θ の場合、式(2.9)より、ブラッグ条件から $\Delta\theta$ だけずれた方向に放出される PXR のエネルギー $\hbar\omega'$ は

$$\hbar\omega' \approx \hbar\omega_B \left(1 - \frac{\Delta\theta}{\tan\theta} \right) \quad (2.12)$$

と表すことが出来る。 $\hbar\omega_B = \hbar c^* |g| / 2 \sin\theta$ であり、

これは PXR の条件がブラッグ条件と一致している角度でのエネルギーである。式(2.12)で明らかのように結晶角 θ を固定すると、X 線のエネルギーシフトは放出角度のずれ $\Delta\theta$ に比例するので、ターゲット結晶から十分に遠い場所で観測すると、水平方向の位置について線形に変化していくエネルギー分布が得られることになる。

3. PXR エネルギー分布の測定と分析

3.1 X 線源について

PXR 発生装置においてはターゲット結晶上の電子ビームスポットを点線源として見なせる。点線源と PXR 取り出し窓の間の距離はおよそ 7200 mm であり PXR の角度拡がりはこの窓のサイズで制限される。PXR 取り出し窓での水平方向の予想されるエネルギー幅を表 3.1 に示す。

表 3.1 PXR エネルギー幅について

ブラッグ角[deg.]	エネルギー幅 [keV]
11.398	9.65 ~ 10.33
10.358	10.57 ~ 11.39
8.428	12.85 ~ 14.09
7.106	15.09 ~ 16.83
16.406	6.83 ~ 7.15

3.2 エネルギー測定の方法

3.2.1 結晶分光によるエネルギー測定法

Si 単結晶(111)面とゴニオメータを使用し、ブラッグ角 θ を測定を測定した。式(2.1)から θ より X 線のエネルギーを測定することができる。こうして、エネルギーの絶対値が線源の設定と合致していることを確認する。

X 線検出器としては、シンチレーションカウンター等では時間分解能の問題があるので、アルゴンガスを封入したイオンチェンバーを用いた。

3.2.2 X 線の吸収差を利用したエネルギー測定法

厚さの精度がある程度保障されているので、厚さ 12 μ m のアルミホイルを層状になるように折り曲げていき、厚さ 0.012 cm ~ 1.536 cm のアルミステップを作成した。理科年表の離散的なデータから、アルミの吸収係数の近似関数求め、その結果を解析に使用した。

3.3 実験結果と分析

3.3.1 結晶分光によるエネルギー測定

結晶分光によってピーク電圧を検出した角度 θ と式(2.1)より得たエネルギーと、線源の設定エネルギーは表 3.2 のように良い一致を見せた。

しかし、結晶の角度の絶対値が同一の場合でも、正負によってビームの拡がりに大きな違いがあった。こ

これは、PXR のエネルギーグラデーションとブラッグ回折の特性により、 θ が正の場合は分散を強調する方向になっているためである。この結果は PXR のビームが理論的に予言されているエネルギー分布を持つことの証拠の一つである。

表 3.2 線源の設定エネルギーと実測されたエネルギーの関係

線源の設定エネルギー [keV]	測定されたエネルギー [keV]
6.99	6.9864
9.9859	9.9842
10.98	10.981
13.47	13.475
15.96	15.976

3.3.2 X 線の吸収差を利用したエネルギー測定

アルミステップをイメージングプレート(IP)上に貼り付け、水平方向のエネルギー分布を測定した。IP を X 線窓へ精度良くマウントすることが出来なかったため、水平の位置は相対的な位置で評価した。結果を図 3.18 に示す。

図 3.18 より理論上の予想と矛盾しない結果が得られた。

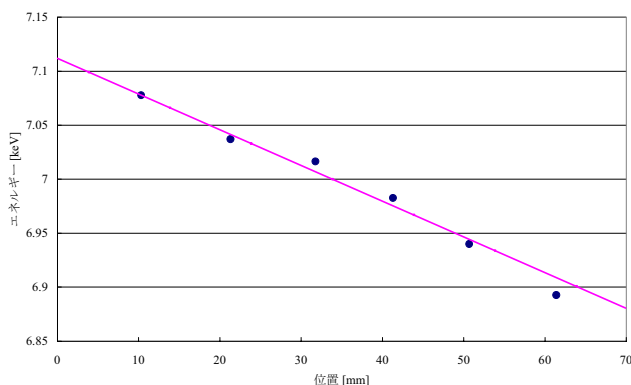


図 3.18 7 keV でのエネルギーグラデーション

4. 結論

PXR の特徴である線形なエネルギーグラデーションを実験的に確かめるために、Si 単結晶を用いた結晶分

光による測定とアルミステップを用いた X 線吸収差による測定を行った。結晶分光法による結果は X 線源の設定とよく一致しており、特に結晶の回転の方向によって、分散、非分散の差が明確に表れたことは、PXR のエネルギーグラデーションの分解能が非常に高いものである証拠といえる。

吸収差の測定は、精度の問題はあるものの、理論と矛盾しないものであり、グラデーションの存在を支持する結果を得られたと言える。

今回、二つの方法を用いることにより二結晶システムで得られる PXR ビームでの正確なエネルギーとエネルギーグラデーションを測定することが出来た。PXR は理論通りの水平方向にリニアなグラデーション特性を持っており、今後 XAFS 測定などへの応用が期待できる。

参考文献

- [1] Y.Hayakawa,I.Sato,K.Hayakawa,T.Tanaka,H.Nakazawa, K.Yokoyama,K.Kanno,T.Sakai,K.Ishiwata,A.Enomoto, S.Ohsawa,T.Tsuchiya and M.Kato:First Lasing of LEBRA FEL in Nihon University at a wavelength of 1.5mm,submitted to Proc. of the 23rd International FEL 2001 Conf., Darmstadt, Germany, 2001.
- [2] Y.Hayakawa Simulations to the project of a PXR based X-ray source composed of an electron linac and a double - crystal system

電子線形加速器冷却水の放射化に関する研究

稲垣 学¹, 佐藤 勇², 早川 建², 田中俊成², 早川恭史², 野上杏子², 境 武志²,
石渡謙一郎¹, 中尾圭佐¹

1) 日本大学大学院理工学研究科量子理工学専攻

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学工学部船橋校舎 物理実験B棟

2) 日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設

〒274-8501 千葉県船橋市習志野台 7-24-1 日本大学工学部船橋校舎 物理実験B棟

1. 序論

加速器などでは加速エネルギーが約 10 MeV 以上になると放射化の問題が生じる。電子リニアックの場合、電子衝撃で発生する制動放射線が放射化の原因となり、加速管などが放射化する。そして、電子リニアックでは制動放射線によって空気や冷却水の放射化が起き、¹⁵O, ¹³N, ¹¹C 原子核などの短寿命核種が生成される^[1]。

日本大学電子線利用研究施設(LEBRA)では、125 MeV の電子リニアックを利用して、ユーザー実験に自由電子レーザー(FEL)やパラメトリック X 線放射(PXR)を提供している^[2]。LEBRA では、精密温調冷却装置を用いて加速管冷却水の温度を $30 \pm 0.1^\circ\text{C}$ に保つよう制御している。また現在、精密温調冷却装置は常時立ち入ることができない放射線管理区域の本体室にあるので、この装置を隣接する常時立ち入ることができる放射線管理区域のモジュレーター室に移動させることを考えている。なぜなら、加速器を運転した後に本体室に立ち入ることは様々な機器の放射化などといった危険性があるため、精密温調冷却装置のメンテナンスなどが頻繁に行うことができない。また冷却装置が水漏れを起こした場合 Gun Terminal への影響、冷却装置のコントロール回路が放射線によって劣化する恐れ、冷却装置前の通路の確保といった設置場所の問題が挙げられる。冷却水の放射化の量によっては移動することは不可能だが、対策を施すことによって移動することが可能になると考えている。このため、LEBRA における冷却水の放射化を測定する必要がある。ここで LEBRA では、イオン交換樹脂とフィルターを介しているためほぼ純水である。このため冷却水中には不純物が無いものと考え、¹⁶O 原子核の光核反応のみを考えた。光核反応の

種類としては、 (γ, n) 、 (γ, p) 、 $(\gamma, 2n)$ 、 (γ, np) 、 (γ, d) 、 (γ, t) 、 $(\gamma, 2p)$ 、 $(\gamma, ^3\text{He})$ 、 (γ, α) などがある。この各光核反応により生成される放射性核種は、¹⁴C、¹⁵C、¹³N、¹⁴O、¹⁵O 原子核であり、かつ β^+ 崩壊する核種は、¹³N、¹⁴O、¹⁵O 原子核である。しかし、イオン交換樹脂とフィルターで取り除かれるため、¹³N 原子核は考えない。¹⁴O 原子核は、 $(\gamma, 2n)$ 反応により生成され、しきい値は 28.9 MeV である^[3]。また ¹⁵O 原子核は、 (γ, n) 反応により生成され、しきい値は 15.7 MeV である^[3]。しきい値から ¹⁴O 原子核よりも ¹⁵O 原子核のほうが多く生成されると考えられる。このため本研究では、冷却水中に生成された ¹⁵O 原子核の崩壊量を測定して検討を行った。

2. 放射線測定の原理と測定結果

2.1 ¹⁵O 原子核の生成原理

本研究では、冷却水中の大部分を占める ¹⁶O 原子核の光核反応である (γ, n) 反応により生成された ¹⁵O 原子核の崩壊量を測定する。¹⁵O 原子核は 99.9 % β^+ 崩壊により半減期 122 秒で ¹⁵N 原子核の基底状態へ崩壊する。したがって、¹⁵N 原子核の励起状態から基底状態への遷移 γ 線は存在しない。また、残りの 0.1 %は EC (軌道電子捕獲)でやはり基底状態へ崩壊する。¹⁵O 原子核の β^+ 崩壊により発生した β^+ 粒子は、物質中でエネルギーを失い静止状態になると電子とともに対消滅を起こし、その際に、互いに反対の方向に 0.511 MeV の対消滅 γ 線を放射する^[4]。本研究は、タンクの冷却水の一部をシンプレックスチューブを用いて運び、この対消滅 γ 線を高純度 Ge 検出器を用いて計測する。

2.2 高純度 Ge 検出器の検出効率の測定

^{15}O 原子核の崩壊量を測定するために、実際に計測を行った幾何学的条件において、使用した検出器の 0.511 MeV γ 線に対する検出効率の導出が必要となる。ここでの検出効率は、原子核の崩壊に伴い発生する γ 線の総量に対する検出器に入射し光電ピークとして計数された γ 線の数の比である。各放射性核種からの様々なエネルギーの γ 線に対する検出効率を γ 線量が既知の Mix 線源を用いて求めた結果、0.511 MeV γ 線の検出効率は、 $1.68 \pm 0.02 \times 10^{-3}$ となった。

2.3 冷却水中の ^{15}O 原子核崩壊の検出

冷却水中に存在する ^{15}O 原子核の崩壊が、正確に測定できているかを 0.511 MeV γ 線量の減衰曲線を測定して確認を行った結果を図 2-1 に示す。

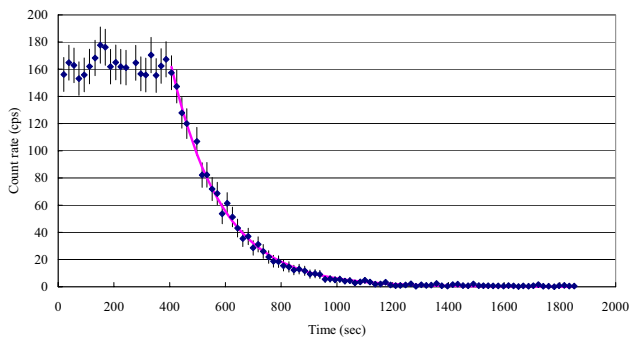


図 2-1 0.511 MeV γ 線量

図 2-1 は電子線を 100 MeV まで加速している状態からビームを止め、 γ 線エネルギー0.511 MeV の光電ピークスペクトル周辺のカウント数を計測した減衰曲線である。 x を測定の経過時間、 y をその時間における Count rate とすると、この曲線は $y = Ae^{-\lambda x}$ で近似でき、このとき $A = 1.53 \pm 0.06 \times 10^3$ (cps)、 $\lambda = 5.53 \pm 0.25 \times 10^{-3}$ となった。近似曲線とその誤差については、最小二乗法を適用した。この近似曲線から半減期 T は $T = 125 \pm 5.7$ 秒となった。 ^{15}O 原子核の半減期は 122 秒であるから、測定された半減期とほぼ一致している。すなわち、加速管冷却水中から検出された 0.511 MeV γ 線は冷却水の放射化によって生じた ^{15}O 原子核の β^+ 崩壊に伴う対消滅 γ 線と同定できる。

2.4 各電子線エネルギーに対する計数率の測定結果

冷却水中に存在する ^{15}O 原子核の生成量と崩壊数が平衡状態になったときの計数率と、各電子線エネルギー(60,70,80,90,100 MeV)との相関を調べた。ただし同実験を 2 回、別日程で行ったので①、②と区別する。加速管出口における各電子線エネルギーでのビームパワーを図 2-2、図 2-3 に示す。ここでビームパワーとは、ピークビーム電流と電子線エネルギーとの積である。加速管出口における電流値は電子線エネルギーに依存せず、ほぼ同じ値であるから、ビームパワーは電子線エネルギーにほぼ比例して増加していることがわかる。また各電子線エネルギーで ^{15}O 原子核の生成率を計測し、生成量と崩壊数の平衡時における計数率は図 2-2、図 2-3 および表 2-1 のように得られた。

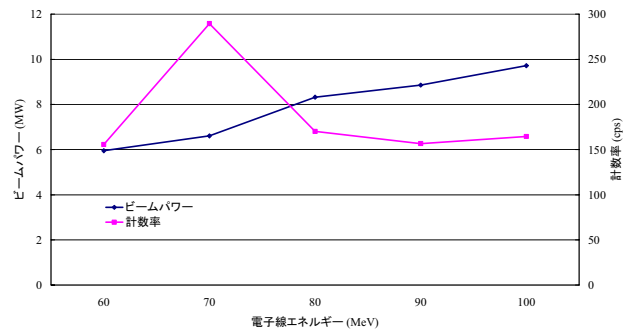


図 2-2 各電子線エネルギーにおけるビームパワーと 0.511 MeV γ 線光電ピークの計数率 ①

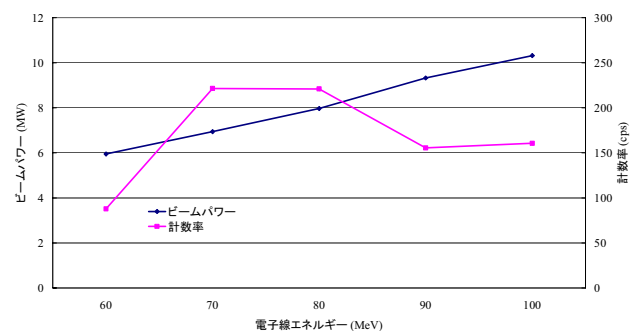


図 2-3 各電子線エネルギーにおけるビームパワーと 0.511 MeV γ 線光電ピークの計数率 ②

表 2-1 各電子線エネルギーにおける 0.511 MeV γ 線光電ピークの計数率。

エネルギー	計数率 (cps) ①	計数率 (cps) ②
60 MeV	155.6 \pm 1.7	87.9 \pm 1.3
70 MeV	289.5 \pm 2.4	221.5 \pm 2.0
80 MeV	170.2 \pm 1.8	220.9 \pm 2.0
90 MeV	156.7 \pm 1.7	155.5 \pm 1.6
100 MeV	164.5 \pm 1.7	160.6 \pm 1.7

電子線エネルギーが高ければ γ 線エネルギー0.511 MeV の光電ピークスペクトルのカウント数も多いと推測していたが、図 2-2、図 2-3 および表 2-1 からわかるようにその推測とは異なった結果が得られた。このような ^{15}O 原子核生成量の違いは、加速器運転における電子ビーム調整の仕方の違いによる損失ビームの電流およびエネルギーの違いが反映していると考えられる。

3. 議論

計測した計数率を元に冷却水のタンク全体で発生する 0.511 MeV γ 線による実効線量を推定し、タンクの移動が可能であるかを表 2-1 より一番高い計数率の値 289.5 cps を使って議論する。 ^{15}O 原子核は、1 回の崩壊で逆方向に 2 個の光子を放出するので正しい崩壊数は検出した計数率の 1/2 となる。対消滅 γ 線はチューブとタンク内の冷却水中で減衰するため、その外に出ない γ 線があることを考慮すると、タンクからの距離 10 cm の位置でのタンク全体の ^{15}O 原子核の実効線量は $I' = 5.07 \pm 0.03$ ($\mu\text{Sv/h}$)となる。法令的制限から、週 40 時間の加速器運転で実効線量が 1 (mSv/週)以下でないと、本体室から出すことができない。LEBRA では許可申請において、電子線のパルス繰り返し数を 12.5 Hz で申請しているが、測定では繰り返し数 2 Hz で行った。このため実効線量の値に、繰り返し数 6.25 倍と週 40 時間を掛け、実効線量の値を換算すると、 $I' = 1.27$ (mSv/週)となった。以上のことから精密温調冷却装置のタンクを本体室からモジュレーター室に移動することは、対策なしでは不可能である。1 つの対策としては、タンクの容量を大きくすれば冷却水中での減衰を利用して減少させることができると考えられる。

4. まとめ

冷却水中に存在する ^{15}O 原子核の計数率は電子線エネルギーに比例しないことがわかった。精密温調冷却装置のタンク全体の ^{15}O 原子核の実効線量は、今回の実験ではタンクからの距離 10 cm で最大 1.27 (mSv/週)と見積もられた。このため精密温調冷却装置を本体室からモジュレーター室に移動するためには、何らかの対策が必要であることがわかった。遮蔽方法の対策として、一つ目は、リザーバータンクの容量を大きくすれば冷却水中での減衰を利用して減少させることができると考えられる。二つ目は、リザーバータンク全体をアクリルで被い、その周りを 6 mm 程度の鉛シートで被うと、対消滅 γ 線が 1/e に減衰されると考えられる。

参考文献

- [1] URL : <http://www.rada.or.jp/>
- [2] 佐藤勇, “日本大学電子線利用研究施設の現状”, Proceedings of the 28th Linear Accelerator Meeting in Japan, July 30-August 1, 2003, Tokai, Japan, p.1
- [3] URL : <http://iaeand.iaea.org/>
- [4] 木村逸郎 他著, “放射線計測ハンドブック”, 日刊工業新聞社, 1982, p.1

招待講演
特別講演
総括講演

新たな分光測定法の開発と物理化学現象の観測

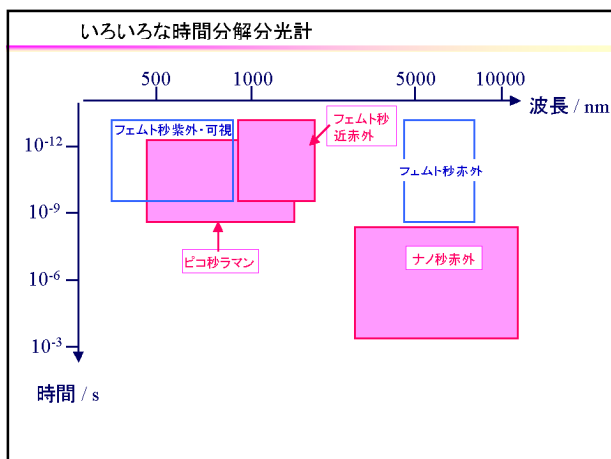
東京大学大学院理学系研究科附属
スペクトル化学研究センター
岩田 耕一

概要

新しい分光法をつくるー研究の方法論の開発

↓

観られなかったものを観るー物理化学現象の発見と機構解明

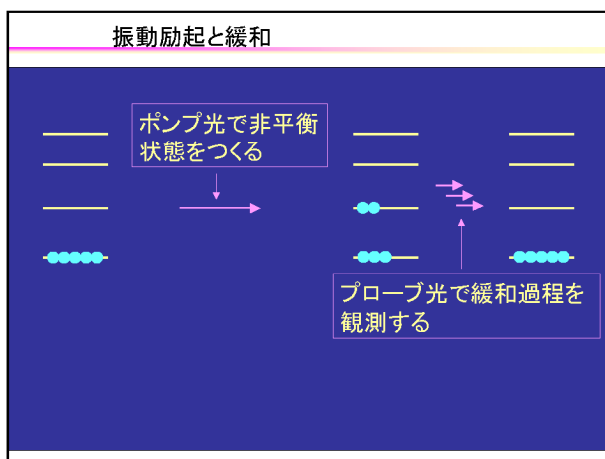


分光法と物理化学現象

1. ピコ秒ラマン・赤外 分子間エネルギー移動
2. フェムト秒近赤外 酸化チタン粉体中での電荷担体
分子内電荷移動反応
3. ナノ秒赤外 光誘起ラジカル反応
ポリアセチレンの荷電ソリトン

分光法と物理化学現象

1. ピコ秒ラマン・赤外 分子間エネルギー移動
2. フェムト秒近赤外 酸化チタン粉体中での電荷担体
分子内電荷移動反応
3. ナノ秒赤外 光誘起ラジカル反応
ポリアセチレンの荷電ソリトン



振動緩和時間の実測値 (溶液中)

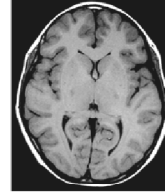
分子	溶媒	振動波数/cm ⁻¹	緩和時間/ps
CH ₃ I		2950	1.00±0.5
CH ₃ I	CCl ₄	2950	1
CH ₂ Cl ₂	CCl ₄	2989	12±2
CH ₂ ClBr	CCl ₄	2987	13±2
CH ₂ Br ₂	CCl ₄	2987	7±1
CH ₂ I ₂	CCl ₄	2967	45±5
CHCl ₃	CCl ₄	3020	1.6
CHBr ₃	CCl ₄	3020	40±4
		5920	5±1
CH ₃ OH	neat	3350	<2
CH ₃ OH	CCl ₄	2935	1.5
CH ₃ OH	CCl ₄	3641	15-30
CH ₃ OD	CCl ₄	2685	52±17
CD ₃ OH	CCl ₄	3642	73±7
CD ₃ OD	CCl ₄	2690	79±17

-特定の振動モードについてしか測定されていない
-緩和機構の解明には多くのモードについての系統的な測定が必要

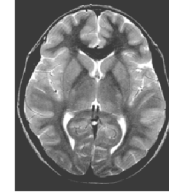
振動緩和時間は重要か？

緩和時間は周囲の環境で決定される

参考 - MRI - NMRIによるイメージング



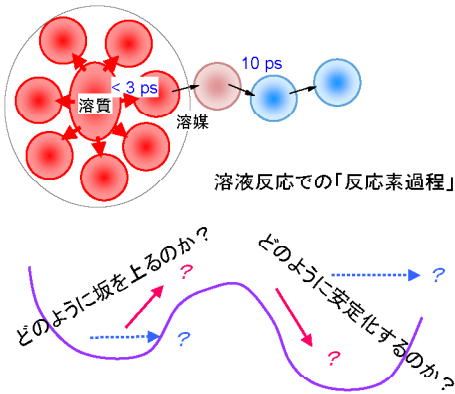
T1強調像



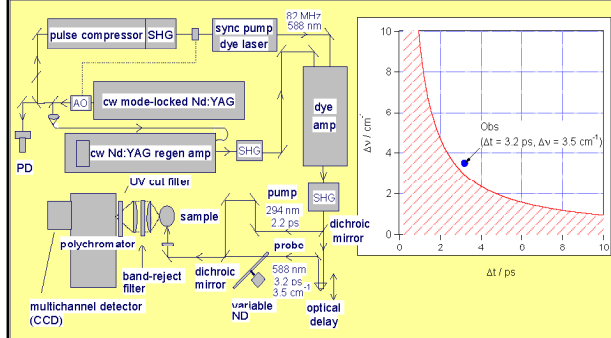
T2強調像

化学シフトではなく、核スピンの緩和時間の分布を利用している

分子間エネルギー移動と化学反応

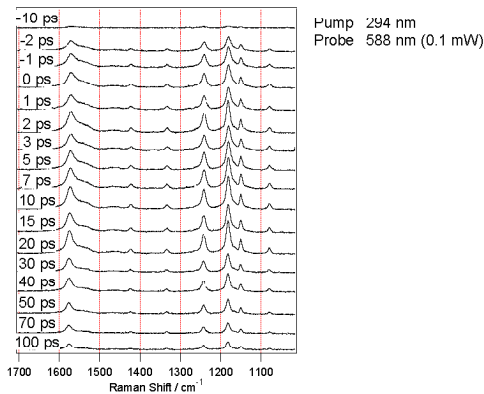


ピコ秒時間分解ラマン分光計

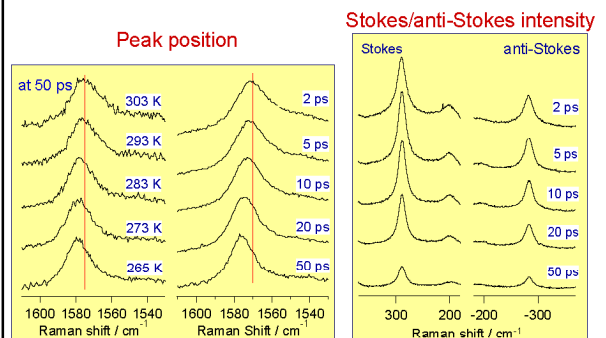


Iwata, Yamaguchi, and Hamaguchi. Rev. Sci. Instrum. 64, 2140 (1993)

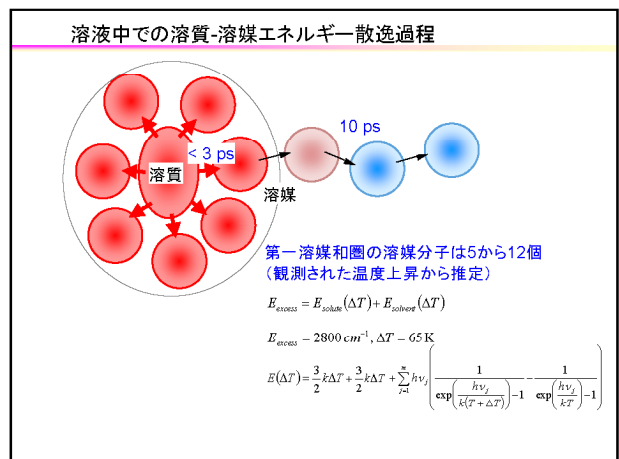
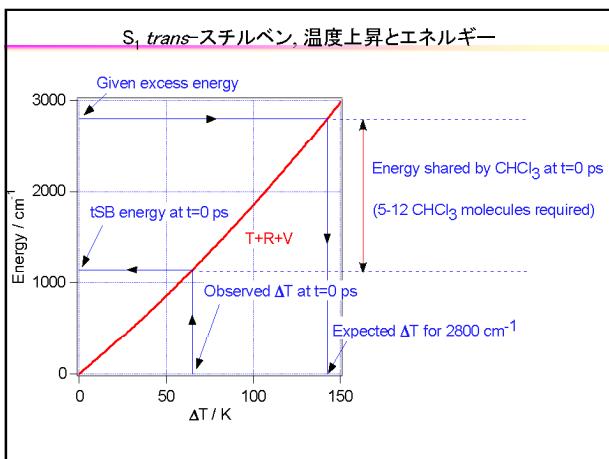
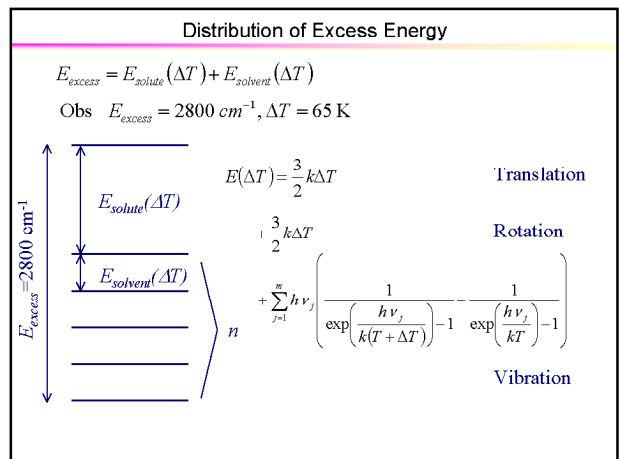
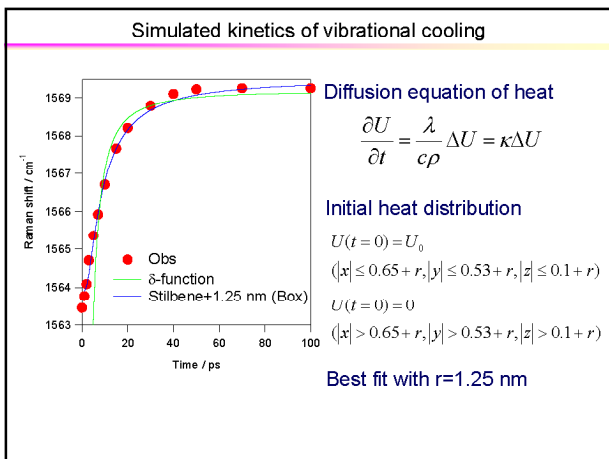
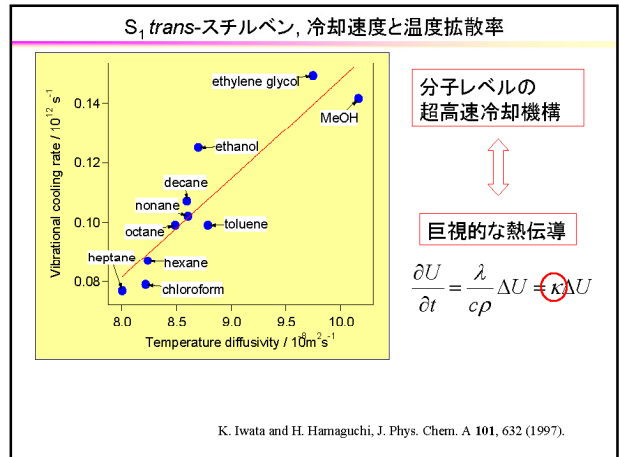
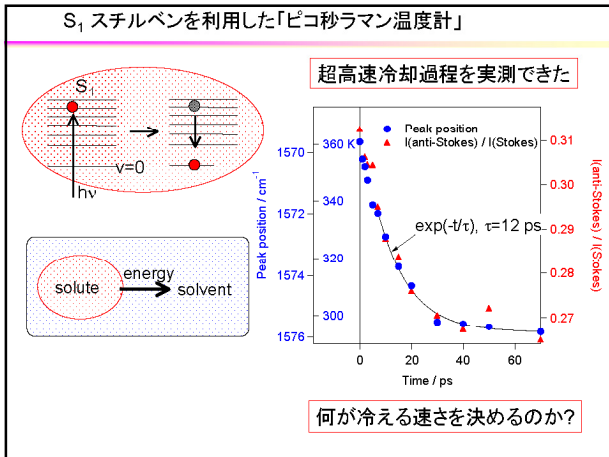
S₁ trans-Stilbene / CHCl₃, 時間分解ラマンスペクトル

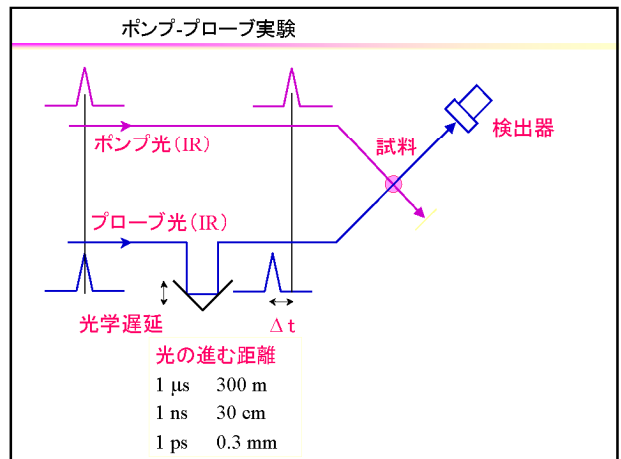
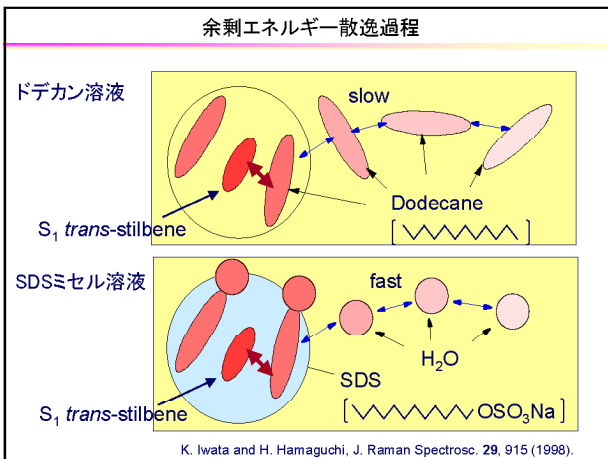
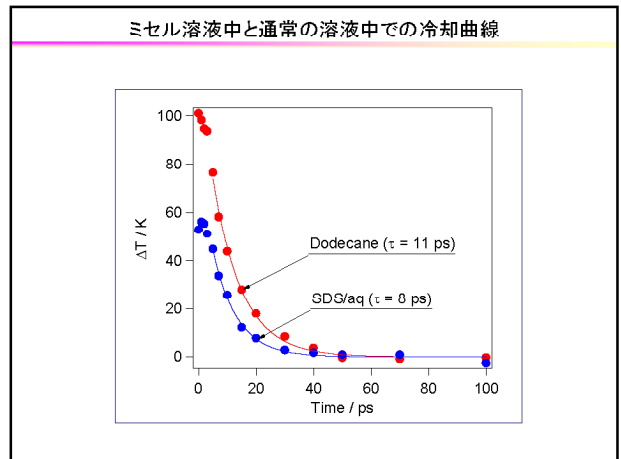
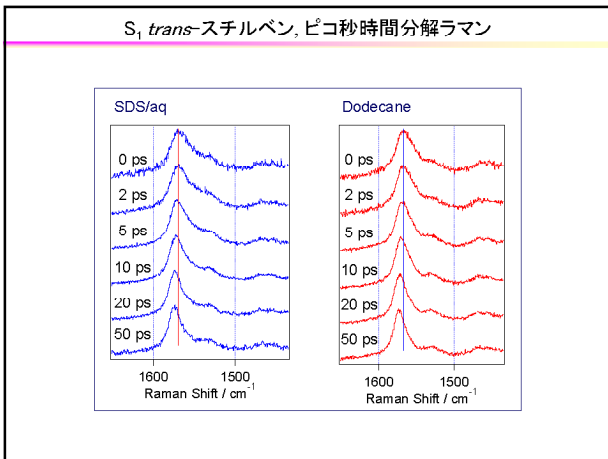
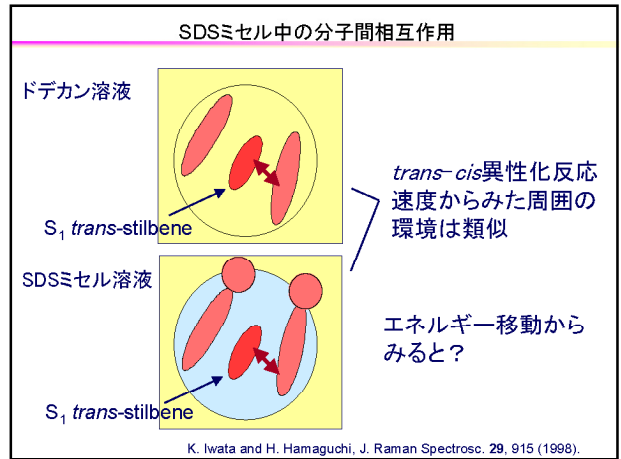
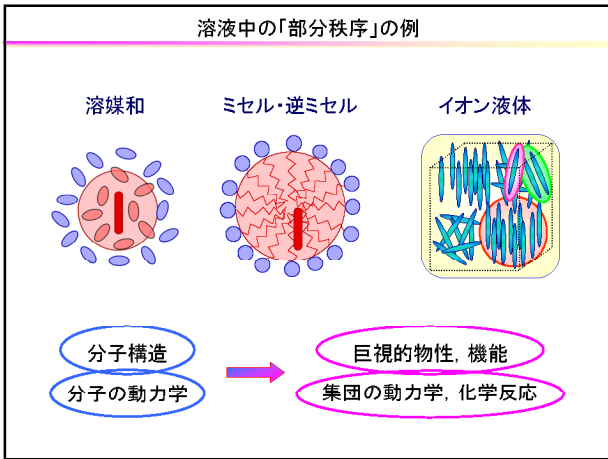


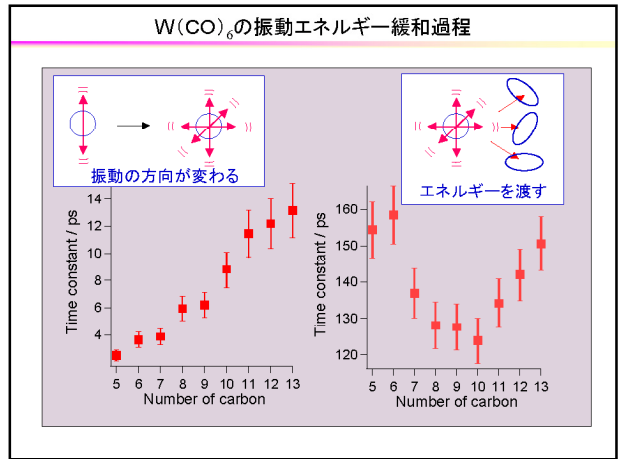
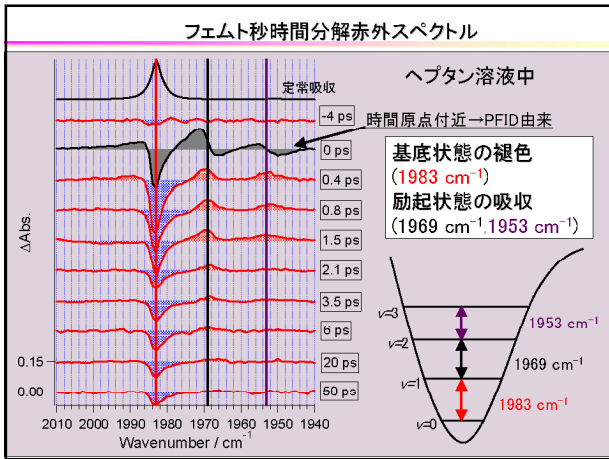
"Picosecond Raman Thermometer" with S₁ trans-Stilbene



K. Iwata and H. Hamaguchi, J. Phys. Chem. A 101, 632 (1997).







- ### 分光法と物理化学現象
1. ピコ秒ラマン・赤外 分子間エネルギー移動
 2. フェムト秒近赤外 酸化チタン粉体中での電荷担体
分子内電荷移動反応
 3. ナノ秒赤外 光誘起ラジカル反応
ポリアセチレンの荷電ソリトン

- ### 時間分解近赤外分光法
-
- UV VIS near-IR mid-IR λ
- 近赤外領域 (0.9 to 1.5 μm)での時間分解分光法
1. 定常吸収や誘導放出の影響を受けにくい
 2. 「束縛の緩い電子」の動力学
 3. 光散乱の大きい試料(粉体, 生体など)にも適用できる

「緩く束縛された電子」の重要性

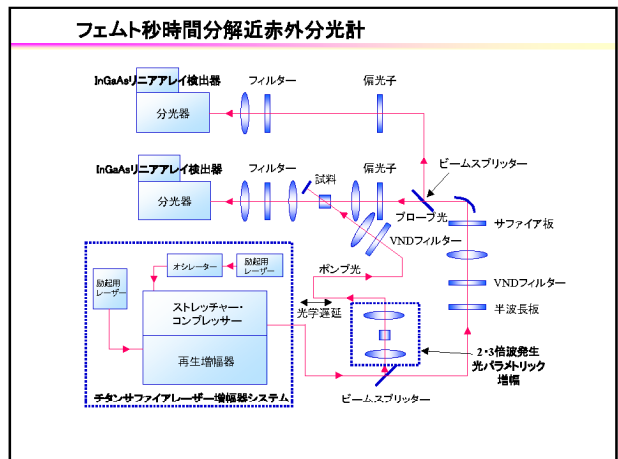
化学反応＝化学結合の組み替え

原子核からの束縛が緩む

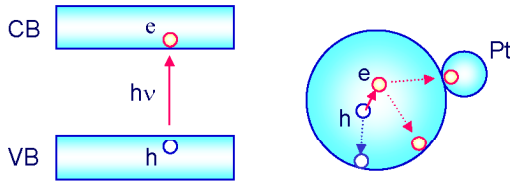
「緩く束縛された電子」の解明は、化学反応の理解にとって必須
電荷移動状態、半導体の伝導帯、C=C共役系、溶媒和電子

凝縮相ではピコ秒からフェムト秒で記憶が失われる

フェムト秒時間分解近赤外分光法は「緩く束縛された電子」を
観測するための理想的な手段

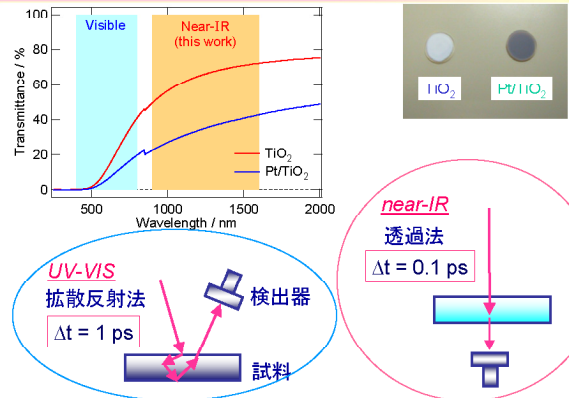


酸化チタンの光照射によるキャリアの生成

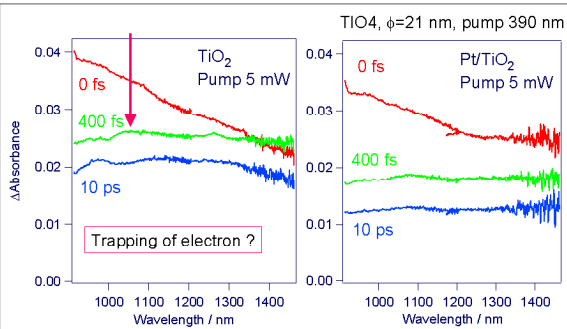


Iwata, Takaya, Hamaguchi, Yamakata, Ishibashi, Onishi and Kuroda
J. Phys. Chem. B **108**, 20233 (2004).

近赤外光による粉体の透過測定

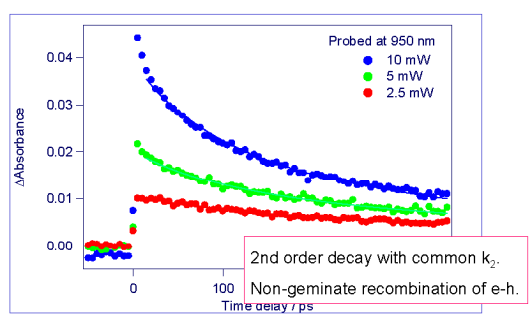


フェムト秒時間分解近赤外スペクトル, TiO₂ 微粒子(粉末)



In near-IR, direct absorption measurement of scattering sample is possible.

TiO₂ 微粒子(粉末), 光照射時の950 nmでの吸光度変化



キャリアーがピコ秒領域で示す減衰挙動

$$-\frac{dN_e(t)}{dt} = k_1^* N_e(t) + k_2^* N_e(t) N_h(t) \quad (1) \text{ electrons}$$

$$-\frac{dN_h(t)}{dt} = k_1^* N_h(t) + k_2^* N_e(t) N_h(t) \quad (2) \text{ holes}$$

$$-\frac{dN_e(t)}{dt} = -\frac{dN_h(t)}{dt} = k_2^* N_e(t) N_h(t) \quad (3) \text{ when } k_1^* N_e(t) \text{ and } k_1^* N_h(t) \text{ represent } \mu\text{s decays}$$

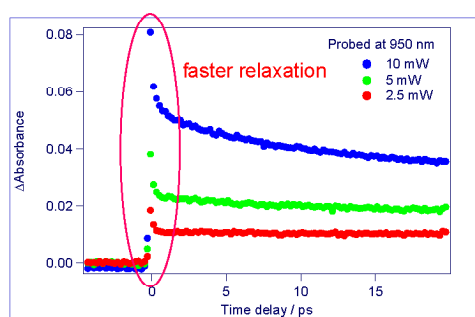
Yamakata, Ishibashi, Onishi, Chem. Phys. Lett. **333**, 271 (2001)

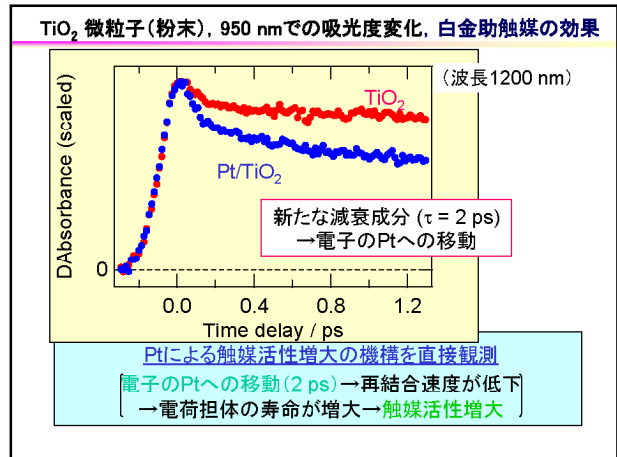
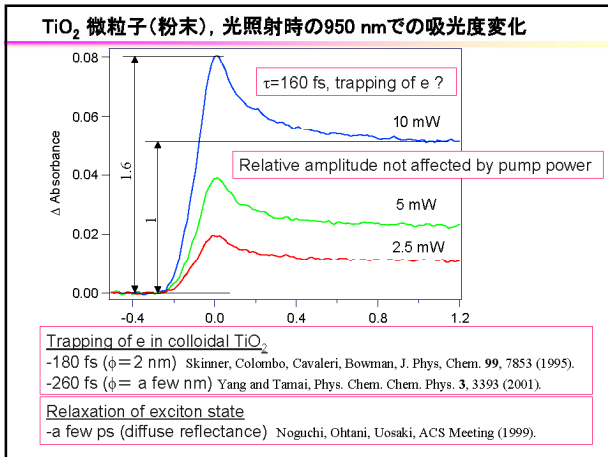
$$N_h(t_0) = N_e(t_0) \quad (4) \text{ if 160 fs decay reflects trapping of charge carriers or geminate recomb of e-h pairs}$$

$$N_h(t) = N_e(t) \quad (5) \text{ from eqns (3) and (4)}$$

$$\frac{dN_e(t)}{dt} = -k_2^* N_e(t)^2 \quad (6) \text{ Observed kinetics}$$

TiO₂ 微粒子(粉末), 光照射時の950 nmでの吸光度変化





TiO₂ からPtへの電子移動

Diffusion coefficient of e⁻ in TiO₂ (anatase)
 $D_e < 1 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$
 Enright and Fitzmaurice, J. Phys. Chem. 100, 1027 (1996)

Average diffusion time to TiO₂ surface
 $\tau = r_0^2 / (\pi^2 D) = 10$ ps, if $r_0 = 10$ nm
 Gratzel and Frank, J. Phys. Chem. 86, 2964 (1982)

Or, $r_0 = 4.9$ nm, if $\tau = 2.3$ ps

Normal diffusion is not a bad model.

cf. At r.t., the Onsager distance $r_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r \cdot kT}$
 $= 0.43$ nm ($\epsilon_r = 130$ for TiO₂)

時間分解近赤外分光法で観測した酸化チタン粉末でのキャリア

白金助触媒への電子移動(2.3 ps)

電子-正孔の再結合(ピコ秒以降)

電子の移動・捕捉・緩和(160 fs)

正孔の移動・捕捉・緩和

酸化反応・還元反応

ピアンスリルの分子内光電子移動反応

9,9'-ピアンスリル 分子内光電子移動反応のプロトタイプ
 → 光電子移動素過程の理解に重要

極性溶媒 (アルコール・アセトニトリルなど)

分子内電子移動

$S_1(\text{LE})$ → $S_1(\text{CT})$

$h\nu$ (389 nm)

F. Schneider and E. Lippert, Ber. Bunsen-ges. Phys. Chem. 72, 1155 (1968).

ピアンスリルの分子内光電子移動反応

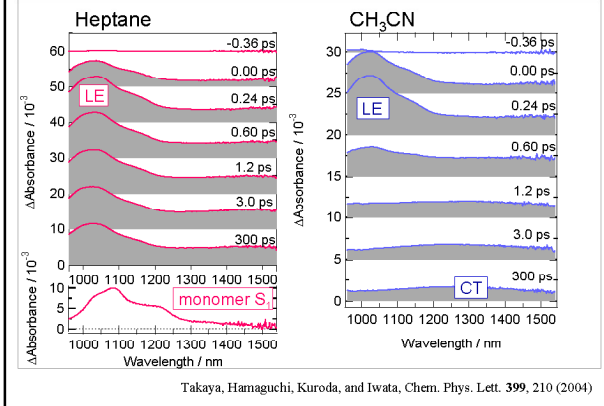
Stokes shift
 Schneider and Lippert (1968)

Time-resolved spectroscopy
 Absorption (vis) Bleach of ground state
 Nakashima, Mataga, Okada (1976, 1996)
 De Schryver, Asahi, Masuhara, Miyasaka (2002)

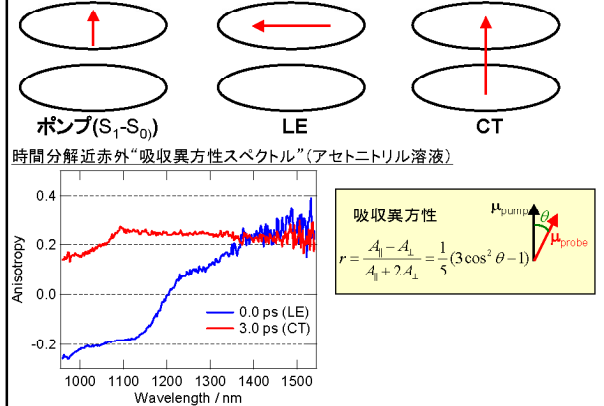
Fluorescence
 Dynamic Stokes shift
 Barbara (1987)

Absorption (uv-vis) and fluorescence
 Martin, Rettig (2000, 2001)

9,9'-ビアンスリルのフェムト秒時間分解近赤外スペクトル



遷移モーメントの向き



吸収異方性の違いによるバンド分解: 定式化

Suppose r^{LE} and r^{CT} are not dependent on time delay.

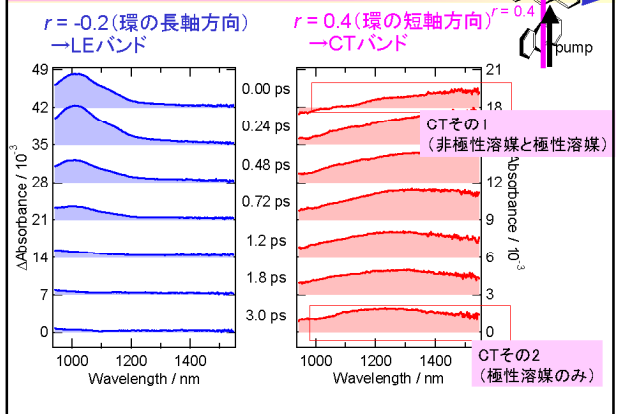
$$A_{MA}^{obs}(\lambda, \tau) = A_{MA}^{LE}(\lambda, \tau) + A_{MA}^{CT}(\lambda, \tau)$$

$$r^{obs}(\lambda, \tau) = \frac{r^{LE} A_{MA}^{LE}(\lambda, \tau) + r^{CT} A_{MA}^{CT}(\lambda, \tau)}{A_{MA}^{obs}(\lambda, \tau)}$$

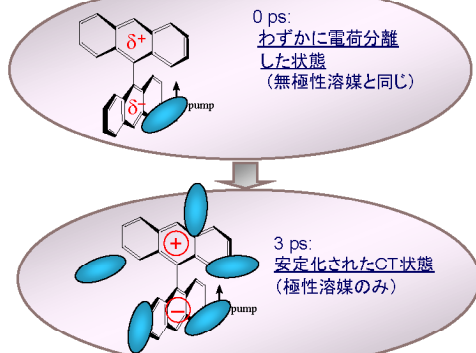
$$= -0.2 \frac{A_{MA}^{LE}(\lambda, \tau)}{A_{MA}^{obs}(\lambda, \tau)} + 0.4 \frac{A_{MA}^{CT}(\lambda, \tau)}{A_{MA}^{obs}(\lambda, \tau)}$$

The LE and CT bands can be separated.

偏光測定を利用したバンド分解(アセトニトリル溶液)

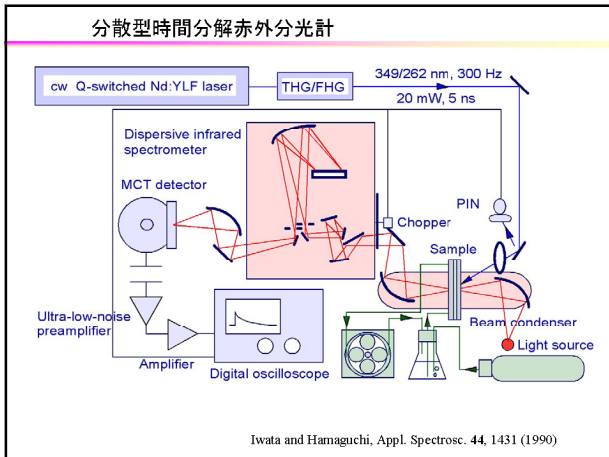


極性溶媒中のCT状態生成に対する新たなモデル



分光法と物理化学現象

1. ピコ秒ラマン・赤外 分子間エネルギー移動
2. フェムト秒近赤外 酸化チタン粉体中での電荷担体
分子内電荷移動反応
3. ナノ秒赤外 光誘起ラジカル反応
ポリアセチレンの荷電ソリトン

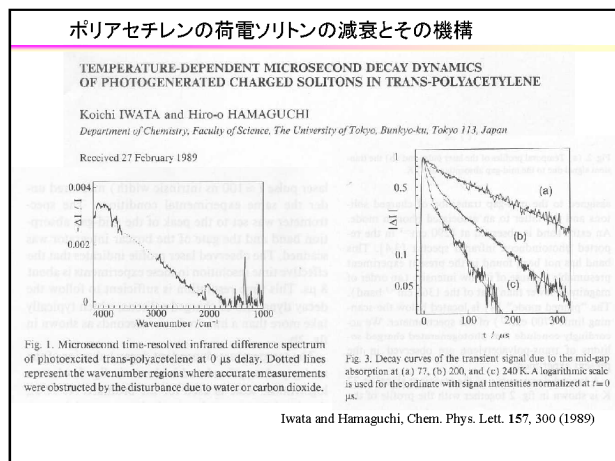
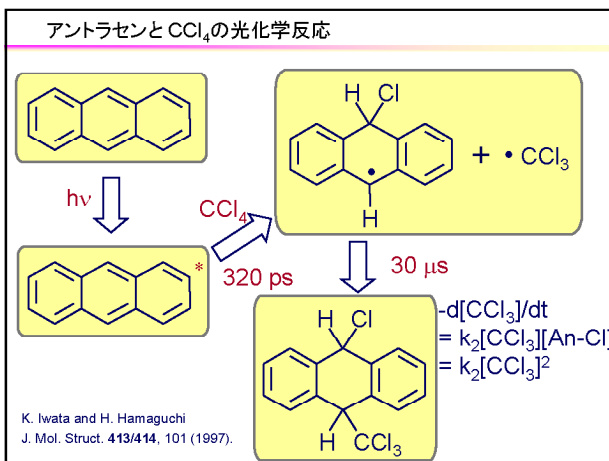
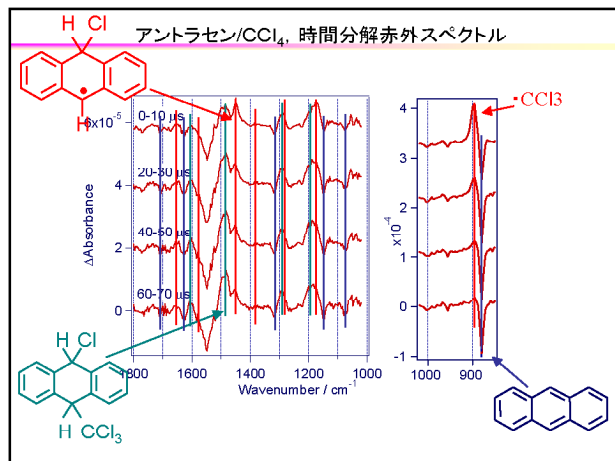
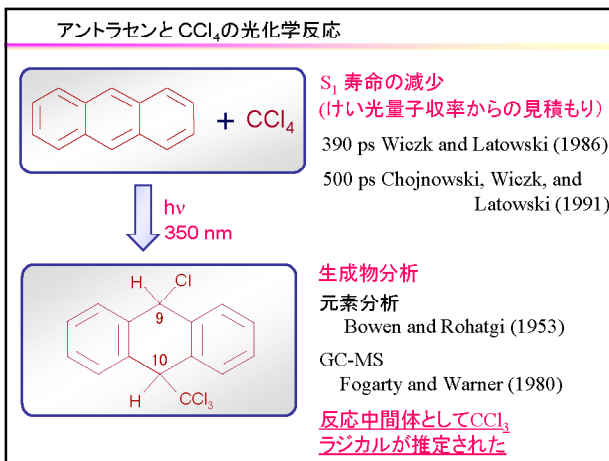


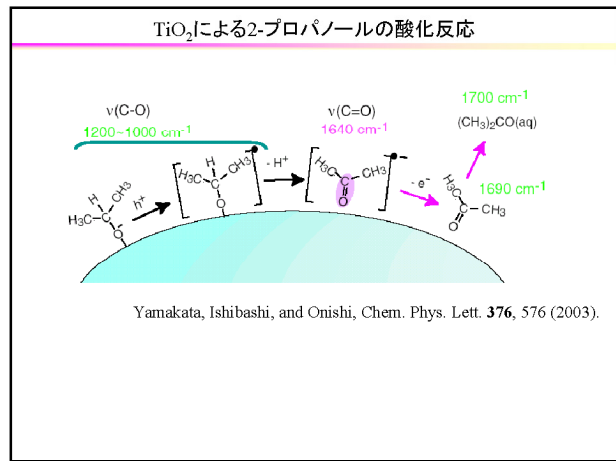
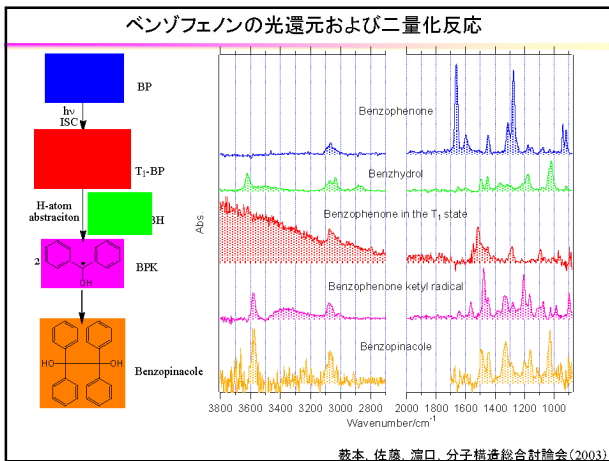
製作したナノ秒時間分解分光計

時間分解赤外分光法(分散型分光器)


- 測定波数範囲 4000-700 cm^{-1}
- 最高時間分解 10 ns
- 最高検出感度 $\Delta A = 3 \times 10^{-7}$
- 分子構造とその時間変化に関する豊富な情報
- 基底状態を含めてすべての分子種を観測する

溶液中での化学反応の詳細な追跡が可能





謝辞(共同研究者)

高屋智久 (東京大)	fs 近赤外	
伴野元洋 (東京大)	ps 赤外	
濱口宏夫 (東京大)		
石橋孝章 (広島大)	TiO ₂	
山方啓 (北海道大)	TiO ₂	
大西洋 (神戸大)	TiO ₂	

東京理科大学 赤外自由電子レーザー研究センター

Biologic and Synthetic Calcium Phosphates

Racquel Z. LeGeros, PhD and Toshiro Sakae, PhD
New York University College of Dentistry, New York, New York 10010
and Nihon University School of Dentistry at Matsudo

Abstract:

Different types of calcium phosphates occur in biologic systems – in the mineral phases of normally calcified or mineralized tissues (enamel, dentin, cementum, bone), in pathological calcifications and in diseased states (Table 1). Many calcium phosphates from natural or synthetic origin are currently commercially available for medical and dental applications, i.e. for bone repair, substitution, augmentation and regeneration (Table 2). This paper will focus mainly on biologic and synthetic apatites: their formation, properties and applications.

In nature, apatite minerals occur as hydroxyapatite (HA), chloride-substituted (ClAP), fluoride-substituted (FA), and fluoride and carbonate-substituted apatites (FCA). In biologic systems, the mineral phase of human teeth and bones is principally a carbonate-substituted apatite. In the enameloid of shark and other species of fish, the enamel consists of fluoride-substituted apatite while the dentin mineral consists of carbonate-substituted apatite without any significant amount of fluoride.

HA is the principal apatite used as a material for bone-grafting. HA is also used as an abrasive material to modify implant surfaces, as a material to deposit coating on orthopedic and dental implants and sometimes as a component of calcium phosphate cement. FA, CHA and CFA are also proposed as possible materials for bone repair, as carrier for drug delivery or as scaffolds for tissue engineering in bone regeneration.

In the apatite structure, $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$, substitutions for Ca, PO_4 or OH causes changes in the properties of the apatite. The changes depend on the amount and type of substitution. For example, F-for-OH substitution causes the following changes: decrease in the a-axis dimension without any significant change in the c-dimension; change in size and morphology of the apatite crystal, and a decrease in solubility. Sr-for-Ca substitution causes an increase in both the a- and c-dimensions, some changes in crystal, morphology and an increase in solubility; and CO_3 -for- PO_4 substitution causes a decrease in the a-dimension and increase in the c-dimension, reduction in crystal size and morphological changes from acicular to equi-axed crystals; and an increase in solubility. In tricalcium phosphate structure, Mg-for-Ca substitution decreases solubility of β -TCP.

With regards to experimental bone graft materials, F-substitution in the apatite was demonstrated to increase cell proliferation of osteoblast (bone-forming cells) and decrease the activity of osteoclast (bone-resorbing cells) *in vitro*. Carbonate- and F-substituted apatite were shown to promote more mature bone formation than carbonate- or F-substituted apatite.

Understanding of the effects of substituents on the properties of apatite or tricalcium phosphate will be useful in designing future materials or for improving current materials for medical and dental applications.

Table 1: Calcium phosphates in biologic systems

In normally calcified tissues (enamel, dentin, bone)

Carbonatehydroxyapatite, CHA (in human)

Carbonatefluorapatite, CFA (in fish enameloids)

In pathological calcifications

Amorphous calcium phosphate, ACP

Dicalcium phosphate dihydrate, DCPD

Octacalcium phosphate, OCP

Mg-substituted tricalcium phosphate, β -TCMP

Calcium pyrophosphate dihydrate, CPPD

Carbonatehydroxyapatite

In dental caries

Dicalcium phosphate dihydrate, DCPD

Mg-substituted tricalcium phosphate, β -TCMP

Fluoridehydroxyapatite (FHA)

Carbonatehydroxyapatite (CHA)

Calcium fluoride/ACP

Table 2: Calcium phosphates for medical and dental applications

Hydroxyapatite (HA): synthetic, bovine bone-derived, coral-derived

β -tricalcium phosphate (β -TCP)

Biphasic calcium phosphate, BCP (intimate mixture of HA and β -TCP)

Calcium phosphate/polymer composites

Calcium phosphate cements: calcium phosphate compounds + liquid

Calcium phosphate scaffolds

学術フロンティア推進事業と電子線利用研究施設進展の総括

日本大学量子科学研究所電子線利用研究施設 佐藤 勇

早川 建¹、田中俊成¹、早川恭史¹、桑田隆生¹、野上杏子¹、森 啓¹、境 武志¹、川上一郎¹、鳥塚賀治¹、佐藤和男¹、松原洋一¹、小林久恭¹、関沢和子²、高野良紀²、高瀬浩一²、高橋由美子²、山本 寛²、岩田展幸²、大西一功²、高橋芳浩²、鈴木 薫²、内木場文男²、望月章介³、石田 浩³、中西太字人³、中田仁志³、浅地哲夫³、滝沢武男³、高橋博樹³、石川紘一⁴、宍倉文夫⁴、浅井 聡⁴、芝軒信次⁴、田中良明⁴、吉田利夫⁴、吉川哲夫⁴、岡田清己⁴、茂呂 周⁵、野口邦和⁵、西山 実⁵、佐藤吉則⁵、深瀬康公⁵、清水典佳⁵、菊池久二⁵、安孫子宜光⁶、池見宅司⁶、寒河江登志朗⁶、早川 徹⁶、平塚浩一⁶、五関たけみ⁶、多田充裕⁶、佐藤由紀江⁶、佐藤俊紀⁶、田中陽子⁶、中田浩史⁶、妻鹿純一⁶、奥 忠武⁷、奥山克彦⁸、鈴鹿 敢⁸、沼田 靖⁸、浜口宏夫⁹、佐藤 伸⁹、末元 徹¹⁰、瀬戸 誠¹¹、山崎鉄夫¹²、後藤寿夫¹³、中井 泉¹⁴、笈 光夫¹⁵、松下裕亮¹⁶、LeGeros,R.Z¹⁷、小山田正幸¹⁸、杉田博昭¹⁸、杉田宏明¹⁸、高木 尚¹⁹、伊師君弘¹⁹、佐藤 秀¹⁹、松下 正²⁰、若槻壯一²⁰、柳下 明²⁰、飯田厚夫²⁰、山本 樹²⁰、東 善郎²⁰、土屋公央²⁰、中原和夫²⁰、穴見昌三²⁰、福田茂樹²⁰、榎本収志²⁰、小林 仁²⁰、大沢 哲²⁰、設楽哲夫²⁰、古川和朗²⁰、山口誠哉²⁰、諏訪田 剛²⁰、紙谷琢哉²⁰、道園真一郎²⁰、横山和枝²⁰、加藤正博²¹、佐久間実²²、遠山伸一²²、野村昌弘²²、平野耕一郎²²、山田家和勝²³、山田浩治²⁴、竹中久貴²⁴、竹内浩昭²⁵、鈴木知彦²⁶、佐藤昌憲²⁷、三島弘幸²⁸、中沢浩之²⁹、谷内 元²⁹、菅野浩一²⁹、石渡謙一郎²⁹、中村吉宏²⁹、猪川弘康²⁹、中尾圭佐²⁹、橋本英子²⁹、藤岡一雅²⁹、村上琢哉²⁹、長谷川崇²⁹、宮崎慎也²⁹、高崎 寛²⁹、奥 洋平²⁹、城所明生²⁹、稲垣 学²⁹、壁谷善三郎³⁰、尾崎元昭³⁰、飯野陽弼³⁰、藤江 荘³⁰、逸見和久³¹、家喜洋司³¹、上富 勇³¹、伊崎 誠³²、岩田 章³²、河合正之³²、能丸圭司³²、篠原己拔³³、松永直樹³³、松本博文³³、永塚賢治³³、遠藤敬介³⁴、後藤巳市³⁴、畑中宏之³⁴、富沢裕司³⁴、松本教之³⁵、佐々木 寛³⁵、志村 晶³⁶、村井孝嘉³⁶、横沢 裕³⁶、原田仁平³⁶、長谷川智一³⁶、森 亮人³⁶、小和田繁夫³⁶、金井 泉³⁶、岡本 正³⁶、大橋 健³⁶、小林秀樹³⁶、鈴木忠男³⁷、白井宏幸³⁷、鈴木道広³⁸、鈴木秀夫³⁹、村田 満³⁹、熊山博史⁴⁰、大嶋瑩一⁴⁰、武士邦雄⁴⁰、工藤治夫⁴¹、久佐賀浩史⁴²、影島恵吉⁴³

日大量科研¹、日大理工²、日大文理³、日大医⁴、日大歯⁵、日大松戸歯⁶、日大生物資源⁷、日大工⁸、東大理⁹、東大物性研¹⁰、京大原子炉¹¹、京大エ¹²、広島大¹³、東京理科大¹⁴、明海大¹⁵、東海大¹⁶、New York大¹⁷、筑波大¹⁸、東北大¹⁹、高エネルギー加速器研究機構²⁰、岡崎研究機構分子研²¹、動燃サイクロ機構²²、産総研²³、NTT²⁴、静岡大²⁵、高知大²⁶、駒沢大²⁷、高知学園短大²⁸、日大院量子理工²⁹、三菱重工³⁰、三菱電機³¹、川崎重工³²、日本高周波³³、トヤマ³⁴、東北金属³⁵、理学電機³⁶、東京電子³⁶、信越化学³⁶、浜松ホトニクス³⁷、日本赤外線³⁸、秀和電気³⁹、キャノン⁴⁰、工藤電機⁴¹、三綱⁴²、日本電磁工業⁴³

1. はじめに

本学術フロンティア推進事業は、下記に述べるように電子線利用研究施設の放射光利用計画と密接な関係にあり、放射光利用計画は本推進事業の基盤をなすものである。一方、日本大学の放射光利用計画には40を超える大学、研究機関、企業が参画して進められたが共同利用としての機能が果たせなかった。本推進事業が文部科学省の指導のもとに、大学当局や関連学部の研究分担者やプロジェクトに係わる多くの関係者の協力と支援のもとにスタートすることになり、本推進事業と放射光利用計画が合体して本来の目的である共同利用の機能が初めて達成され、このプロジェクトに直接的・間接的に関わってきた関係者の努力が実った成果でもあり、ここに、本プロジェクトに

参加した日本大学をはじめとする色々な研究機関と企業の研究者、技術者、技能者を最初にリストアップして感謝の意を表します。

本学術フロンティア推進事業は、日本大学量子科学研究所の電子線利用研究施設を研究拠点にして事業計画を進め、自由電子レーザー(FEL)とパラメトリックX線(PXR)を基盤とする応用研究の開発を目的としたものであるが、短波長FELやPXRの実用化には、電子ビームが、低エネルギー分散、低エミッタンス、高輝度、高安定であることが要求され、これらの特性は相互に矛盾する性格を有し、加速器を極限状態にまで高性能化する必要があった。これらの光源開発は国家プロジェクトに相当する研究開発であった。

更に、本推進事業はこれらの光源を高度に利用する応用研究の開発であり、未経験な実験に対する新たな挑戦でもあった。

本研究施設に於けるプロジェクトは、高エネルギー加速器を使って π 中間子を創生してガン治療をする計画に始まった。しかし、この計画自体も国家プロジェクトに相当するものであり、モデル加速器を製作し開発研究を開始したが、ガン治療用加速器の建設費とその運転経費が膨大になり、コスト対治療が大きいことから π 計画は途中で中止になった。しかし、 π 計画ではモデル加速器として35MeVマイクロトロン¹の建設を進めていた。プロジェクトはこの加速器を放射光発生源として利用する計画に方向転換されたが、シンクロトロン放射光を直接利用するには、臨界波長(6.5 μ m)が長く、光強度(5×10^3 個/秒 \cdot mrad² \cdot 0.1%)も弱いことから、マイクロトロンによるFEL計画となった。

π 計画以来の歴史的経緯から、計画には紆余曲折はあったが、理工、文理、医、歯、松戸歯、生物資源科学部の一貫した支援と協力の下に、平成2年に電子加速器(マイクロトロン)を最大限に活用する放射光源を建設し、学内共同利用実験施設「電子線共同利用センター」の設立が提案された。

放射光源にはFEL計画が企画され、学外の研究機関と協力研究を提携して開発研究が進められてきた。しかしながら、マイクロトロン¹のビーム強度ではFEL発振が非常に難しいことから、その対応策が検討された。その結果、放射光利用計画は電子線形加速器による短波長FEL計画に変更され、短波長FEL用高周波電子銃の開発研究を進めることになった。しかし、FEL計画は既に実施の段階にあり、電子線形加速器の調達²は難しく、その解決策はなかなか見つからなかった。

そこで、高エネルギー物理学研究所(KEK)と共同研究を提携して、電子線形加速器を移設して短波長FEL計画を進めることが提案された。KEKから日本大学へ電子線形加速器を移設するには、色々な法的規制が伴い難航したが、最終的に文部省の了解を得て、日本大学とKEKが共同研究を提携して代表者が覚え書きを交わすことで了、された。

平成8年にKEKから125MeV電子線形加速器本体が移設された。一方、短波長FEL用高周波電子銃を短期間で実用化することが難しいことから、熱陰極電子銃による短波長FEL発振を試みるためにKEKから入射部を移設してFEL計画を進めることになった。

2. 短波長FEL実用化をめざして

短波長FELの実現は、それ自体国家プロジェクトに準ずる開発研究であった。又、短波長FELを実現

するには、電子ビームのエネルギーが揃い低エミッタンスで長パルスを持続することが必要条件であった。しかし、日本大学では、普通の電子線形加速器で短波長FELを実現する計画であった。

平成9年5月、原子力研究所の運営委員会で本研究施設を「電子線利用研究施設」と称することが了、された。

しかし、放射光計画は、建設費、人員、時間、空間などの制約から成功が危ぶまれていた。更に、短波長FELを実現するには、電子線形加速器に対して常識を超える高性能が要求されることから、トラブルが続出し、プロジェクトの進行は非常に難航した。専門家の間でもFELの実用化は不可能という噂が流れていた。

平成10年1月には、電子ビーム加速に成功したが、短波長FELが発振するほど、高品質な電子ビームは得られなかった。特に、短波長FEL発振には、電子ビームが20 μ S持続することが絶対条件であった。このためには、メーカーが提示する仕様条件を遙かに超え、高周波出力パルス幅が2.5 μ Sの短パルスクライストロンを20 μ Sのパルス幅で稼働させる必要があった。これは先の見えない最も難しい作業であった。この試みは、KEKの支援がないと成り立たない要素開発であり、クライストロンの供給を受けながら進められた。長パルス化のテスト実験では、予想通りにクライストロンの出力窓は次々に破損し、その解決の糸口がなかなか見いだせない状態が続いた。一方、電子ビームの長パルス化とともに、低エミッタンス化やエネルギーの低分散化も重要な研究課題であり、電子銃の改良、高周波電源の改善を同時進行させた。

3. 共同利用実験環境の拡充

これらの電子線や光源を活用して、先進的な基礎・応用研究の実施は、全て利用研究者の才覚に依存する状態であり、実験環境の整備は一向に進展しなかった。研究施設には基礎・応用研究に対応できる実験装置は皆無であり、研究環境の拡充と向上を図るために、平成9年8月に電子線高度利用計画を作成し、KEKと協力してCOEプロジェクトに応募することになった。

電子線高度利用計画には、電子ビームの長パルス化に成功すると電子ビーム電力は6KWを越え、FEL発生に消費される電力は数Wであることから、残りの電子ビームを活用して陽電子を発生させ低速陽電子にして、表面物性の研究に利用する計画が加えられた。

一方、これらの線源や光源を使って先端的研究を行う研究グループを組織化する必要があった。平成10年3月、研究施設で共同利用実験を希望する研究者が集まって研究会を開いた。研究会には物質科学から生命科学まで広汎な分野の研究者が参加し、利

用研究について闊達な意見交換が行われた。

研究会では、電子線や短波長 FEL の利用以外に、X 線回折による結晶の高次構造解析を行いたい要望があり、光源に電子線によるパラメトリック X 線の研究開発を加えることになった。一方、X 線発生と低速陽電子発生は両立しないことから、放射光利用計画は短波長 FEL とパラメトリック X 線に絞られた。更に、利用研究の準備は光源開発と同時に進むべきという意見が大多数を占め、光源開発と利用研究を同時進行させることになった。又、物質科学から生命科学までを包含する学際的な7つの研究班を組織し、利用研究を積極的に推進することになった。

このようにして、日本大学の学術研究高度化は、本研究施設を中心に学内各学部の研究者と国内研究機関の研究者の連携の下に萌芽し、自然に組織化されて行った。この研究組織を中心に、COE や特定領域研究などに積極的に応募した。しかし、光源が実現せず且つ研究実績がない状態では、これらの科研費に採択される見込みは全く立たなかった。

4. X 線源の開発

高エネルギー電子ビームによる X 線源の開発は急務であった。1960年代のロシアで、高エネルギーの電子ビームで単結晶を照射すると、電子ビームが制動されて放射する γ 線以外に、単結晶中を荷電粒子が通過するときに発生するチェレンコフ光に似た X 線が発生する理論が提案されていた。この理論は、シンクロトロン放射の陰に隠れて話題に上らなかったが、1980年代にロシアで、この X 線(パラメトリック X 線)が単色に近い特性をもつことが実験的に確かめられ、次第に注目されるようになった。しかし、この X 線は、発生源で γ 線や中性子などの放射線も同時に発生するために、これらの放射線と X 線の分離が困難なことから、X 線源としては活用されていなかった。研究施設では、パラメトリック X 線の優れた特性に注目し、FEL 用電子ビームの特性を生かし、指向性の強い単色 X 線の実用化を試みた。2枚の単結晶板に X 線発生と X 線反射の役割を分担させ、パラメトリック X 線と γ 線や中性子などの放射線を分離し、X 線のみを実験室に輸送する方法をとった。又、パラメトリック X 線のエネルギーは電子ビームに対する単結晶面の照射角度を変えると可変にできることから、エネルギー可変な単色 X 線発生を試みた。この試みに成功すると、短波長 FEL とパラメトリック X 線を共用することにより、赤外線から X 線までの広い領域で、可変波長の指向性の強い単色光を利用できる世界初のユニークな研究施設が誕生し、共同利用研究の活性化が期待できた。

5. 学術フロンティア推進事業の発足

学術フロンティア推進事業は、事業を遂行すること

によって、独創性ある優れた研究成果を得るという目的以外に、研究拠点に推進事業を定着させ私立大学の学術研究を高いレベルにシフトさせる役割を担っている。この理念は、日本大学が目指していた放射光利用計画の共同利用研究と良く整合している。そのためには、推進事業を効果的に活用し、闊達に運用できる研究拠点と実施体制が重要であり、その具体的な形態は研究施設で共同利用実験が円滑にできる体制の組織化であった。7つの研究班は物質科学と生命科学にわかれて、COE や特定領域研究などに応募して、開発研究や実験環境の整備を試みていた。

一方、平成11年末には、加速器の高度化も一段と進み、短パルスクライストロンの長パルス運転や熱陰極電子銃の低エミッタンス化に見通しが立ち、自由電子レーザー実現の可能性が高まっていた。実験環境の整備のタイムリミットが迫ったことから、生命科学の研究班では学術フロンティア推進事業に応募して研究高度化を進めることになった。

FEL やパラメトリック X 線が実現していない状況でも、通常の光源を使って高度化研究ができるように計画調書は作成された。又、この時点では、研究班の構成メンバーが複数の関連学部に分散していることから、必ずしも研究組織が本研究施設である必要はなかった。しかしながら、FEL やパラメトリック X 線が実現した時点では、光源開発、物質科学、生命科学が一体の研究組織となって、研究拠点を形成することが重要であるとの認識の下に、本研究施設に光源利用施設を集約することになった。

短波長 FEL とパラメトリック X 線を基盤とする赤外線から X 線領域までの可変波長の指向性の強い単色光源の高度利用は挑戦的な研究であることから、研究課題を「可変波長高輝度単色光源の高度利用に関する研究」に設定した。研究拠点の選択と研究代表者の選定は、本プロジェクトを推進してきた原子力研究所次長に一任することになった。構想調書には、研究環境と実験装置の整備以外に、研究施設の実験棟増築、パラメトリック X 線源、FEL ビームラインの敷設などを加えて、総事業費14億1千9百万円、研究分担者21名、期間5年間として申請し、研究組織は原子力研究所、研究代表者は原子力研究所長にお願いすることになった。

6. 共同利用研究施設のあり方

研究施設では、多様な学際的研究に対応するため、電子線形加速器を活用して、高エネルギー電子線、自由電子レーザー(FEL)、パラメトリック X 線(PXR)、自発放射光を発生させ、この4つの光源の高度化と利用研究計画を進め、共同利用実験に供することになった。これらの光源を利用する研究高度化を推進するには、利用研究の裾野を広げて、初心者でも

共同利用実験に参加できる研究環境の構築が重要である。即ち、実験技術の習熟が重要であり、初心者からエキスパートまで参加できるように、段階的に実験技術を習得出来る実験環境を整備することである。特に初心者の概念的な興味は、制限を受けない自由な発想に展開できることから非常に重要である。この発想は自由度の多い思考実験に移行し、簡単な性質を確かめる予備実験に進展し、量的状態を把握できる準備実験を試みることになる。思考実験、予備実験、準備実験の段階を経て本実験を行うが、このプロセスは可逆的で段差が小さいことが望ましい。独走的なアイデアは突如派生するものではなく、可逆的なプロセスを繰り返す間に創生された小さなアイデアを成長させることを評価するものである。先端的研究の成就是、各実験プロセスが可逆的な研究環境にあり、実験が積み上げられるシステムを構築することによって可能になる。このような視点に立ち、初心者からエキスパートまでが独自性を発揮できる共同利用研究施設であることを理想とし、その方向に一步でも近づくような体制にする努力をすべきと考えている。

7. 研究グループ制と研究課題

本推進事業のプロジェクト研究では、研究規模が研究者個人でできる範囲を凌駕していることから、研究テーマ毎に数名以上で研究グループを組織し、光源開発グループ、利用研究グループに大別した。

加速器高度化と光源開発は、研究課題別にスタッフを割り振っているが、実際はスタッフがチームワークを組んで作業に対応する必要性から、スタッフは1グループに纏まって開発研究を行ってきた。加速器は光源に電子ビームを安定に供給する責務があり、光源は研究施設の基盤であることから、その高度化や開発研究の成果良否が本推進事業の利用研究に与える影響は重大であり、本推進事業では加速器の高度化と光源開発を最重点項目にした。光源開発は加速器の高性能化と同様に断続的に研究を実施する必要性から、加速器グループ(専任・兼任研究員)が研究分担者になって責任を持って対応した。

又、利用研究については研究申込者(研究課題提案者)が研究グループを組織し実験に参加することを前提としていた。

本推進事業の申請時には、研究課題が28テーマであったが、しかし、研究分担者の死亡や退職により研究課題数の削減と変更を余儀なくされた。又、学術フロンティア推進事業、ハイテク・リサーチ・センター整備事業、バイオ・ベンチャー研究開発拠点整備事業などのプロジェクトに研究者の参加が、何れか1つに制限されたために、研究テーマの統廃合を余儀なくされた。平成15年度末に平成16年度の実験課題の募集が行われた。下記のような研究テーマが申請された。

「加速器高度化と光源開発グループ」

加速器高度化と光源開発グループの主要な研究課題は、次の3項目

- 1) 電子線形加速器の高度化
- 2) 短波長FELの開発
- 3) パラメトリックX線の開発

に集約された。

「利用研究グループと研究課題」

利用研究に関しては、平成16年度の年度初めに利用研究幹事会で物質科学系が10の研究課題と生命科学系が13の研究課題の、合計23の実験テーマが採択された。

<物質科学における利用研究>

- 1) FELによる3次元C₆₀ポリマーの合成
- 2) 半導体素子の放射線照射効果
- 3) 光エネルギーを用いた絶縁膜作製プロセス
- 4) 放射光 CVD・PLD 法による環境半導体成膜
- 5) PXRによる多波長観測と画像解析
- 6) FELによる光励起化学反応の研究
- 7) 高温超伝導体Pr(Ba,Sr)₂Cu₃O_yの高精度粉末X線回折
- 8) 時分割X線回折法によるスメクティック液晶の動的構造解析
- 9) X線位相差イメージング法の開発
- 10) 機能性酸化物の粉末 X 線回折

<生命科学における利用研究>

- 1) FELによる遺伝子損傷に関する研究
- 2) FELを用いた尿路結石砕石効果の検討および再発性尿路結の予防効果の検討
- 3) PXR線原にする PXR 装置の至適化
- 4) 脊椎動物・両生類のヘモグロビン結晶の X 線構造解析
- 5) 電子線による遺伝子損傷に関する研究
- 6) 骨芽細胞分化因子のタンパク質の立体構造解析
- 7) 骨再生用スキャホールドの多孔性化における FEL の応用
- 8) FELの骨形成促進作用について
- 9) ゲノム科学を応用した自由電子レーザーによる炎症抑制、骨形成促進作用の機序解明
- 10) 波長の違いが歯の硬組織に与える影響
- 11) PXRを用いた生体硬組織・材料の評価システムとその応用
- 12) PXRを利用した生体硬組織・生体材料の解析と評価
- 13) FELを用いた歯・病的石灰化物とレーザーの相互作用の解析

これらの実験課題に必要な実験時間は、2000時間を遙かに超えることが予想された。一方、利用研究幹事会では、PXRが何時から共同利用実験を開始できるか不確定な状態と本推進事業の最終年度であることを考慮に入れ、申請実験課題は平成16年度内

に終了することを必ずしも条件にしないとの了解のもとに採択された。

幾つかの研究課題では、高度な実験技術の習熟や実験準備に1～2年を必要とすることから、本推進事業の継続申請を想定せざるを得ないものもある。

8. 研究成果報告会

本推進事業が平成17年3月に終了するに伴い、研究分担責任者の中から9名の実行委員を選出して、過去5年間の研究成果を総括する総合報告会を実施することになった。

報告会は文部科学省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」総合研究成果発表会と称することになった。

報告会のプログラムは、招待講演、特別講演、口頭講演、ポスター発表で構成し、一般公開とすることになった。

出来るだけ多くの方々に報告して頂くために、本推進事業に係わる研究計画の企画や実験を行った研究分担者、共同研究者、大学院生、学生を対象に発表を依頼した。又、研究分担者、共同研究者、大学院生、学生、並びにプロジェクト計画に参画した関連学部、関連研究機関、企業の研究者、技術者を対象に報告会の参加を呼びかけた。

開催日は研究代表者と相談の結果、3月11日～12日の2日間、理工学部船橋校舎14号館で開催することになった。

招待講演は浜口宏夫(東京大学教授)、特別講演は本推進事業の共同研究者である R.Z.LeGeros(ニューヨーク大学教授)と中井 泉(東京理科大教授)の2氏に依頼することになったが、講演前日、浜口宏夫氏が急病になり、急遽、招待講演を岩田耕一(東京大学助教授)氏にお願いすることになった。招待、特別講演は次の演題で行われた。

招待講演

時間と空間を分解した振動分光学:分子から生細胞、人体まで

東京大学教授 浜口宏夫

特別講演1

Calcium Phosphates in Biological and Synthetic Systems

ニューヨーク大学教授 R.Z.LeGeros

特別講演2

放射光で住みよい環境をつくる:「科学捜査から重金属蓄積植物による環境浄化機構の解明まで」

東京理科大教授 中井 泉

招待講演の変更

新たなる分光測定法の開発と物理化学現象の観測

東京大学助教授 岩田耕一

研究成果報告会には口頭講演が17件発表され、ポスターが37件展示された。講演題名、発表者名、所属名を掲載すると次の如くなる。口頭講演18)は、残念ながら発表者と連絡のミスにより、実施できなかった。

「口頭講演発表」

1)学術フロンティア推進事業と電子線利用研究施設進展の総括

佐藤 勇 (日大量科研)

2)加速器の稼働状況と共同利用の進展

田中俊成 (日大量科研)

3)クライストロン電源の安定化

早川 建 (日大量科研)

4)FEL ビームラインの現状とFELビームの特性

早川恭史 (日大量科研)

5)パラメトリックX線源の実用化と線源としての現状

早川恭史 (日大量科研)

6)エキシマ・レーザーとFELの共用システム

森 啓 (日大量科研PD)

7)フラーレンポリマーの創製

山本 寛 (日大理工)

8)自由電子レーザーアブレーション法による広バンドギャップ半導体の成膜

鈴木 薫 (日大理工)

9)酸化物の紫外レーザー光に誘起された価数変化・欠陥生成

藤代 史 (日大文理 DC1)

10)「In-situ 法によるCu シース MgB₂ 超伝導線材の作製と特性評価」

谷口 優 (日大理工物理4)

11)陽極酸化法を用いた酸化亜鉛薄膜の作製と物性評価

青池 将之 (日大理工物理4)

12)レーザー照射骨芽細胞の遺伝子発現プロファイリングとIngenuity Pathway 解析

多田充裕 (日大松戸歯)

13) LEBRA-PXR の波長可変 X 線による恐竜の卵化石中のSrの同定

寒河江登志朗 (松戸歯学部)

14)ヘモグロビンの構造解析と日大生体高分子研究グループ

宍倉文夫 (日大医)

15)アカムシユスリカ・ヘモグロビン(TA-V, TA-VII)の構造解析

桑田隆生 (日大量科研PD)

16)日本大学電子線利用研究施設における X 線回折装置の現状

桑田隆生 (日大量科研PD)

17)自由電子レーザーによる新しい尿路結石治療への試み

- 吉川哲夫 (日大医)
- 18) 分泌型 IgA 構成成分の構造解析
茂呂 周 (日大歯)
- 「ポスターセッション発表」
- 1) FEL 波長 2.94 μm の歯質削除効果について
岩井啓寿 (日大松戸歯DC)
- 2) 針状粉体を出発原料とした高アスペクト比ペロブスカイト粉体の合成および評価
内木場文男 (日大理工)
- 3) LEBRA-FEL 照射による歯のエナメル質と象牙質の変化
佐藤由紀江 (日大松戸歯)
- 4) LEBRA-PXR を使った X 線回折像について
寒河江登志朗 (日大松戸歯)
- 5) LEBRA-PXR によるインプラント周囲新生骨の X 線透過像観察
中田浩史 (日大松戸歯)
- 6) ラビット緻密骨アパタイトの結晶性の変異についての微小部 X 線回折法による研究
諏訪武利 (日大松戸歯DC)
- 7) 特異的な卵状構造をもつ唾石の結晶分析
豊田千枝 (日大松戸歯DC)
- 8) 過酸化水素処理による骨芽細胞様細胞株 MC-T3-E1 の bone nodule 形成への影響—石灰化物の結晶学的検索
佐藤 俊紀 (日大松戸歯DC)
- 9) 光励起によるスーパーダイヤモンド合成
橋本亮二 (日大理工M1)
- 10) ヘモグロビン(Hbs) 構造研究の展開: (1) 両生類の Hb, (2) 環形動物の Hb, (3) 軟体動物の Hb
宍倉文夫 (日大医)
- 11) カプトガニ・ヘモシアニンサブユニット(HT6) の結晶化
桑田隆生 (日大量科研PD)
- 12) FEL LINAC に於ける RF 系の改良によるビーム安定化
横山和枝 (KEK)
- 13) クライストロンの長パルス化
境 武志 (日大量科研PD)
- 14) リニアック入射部の整備と改良
田中俊成 (日大量科研)
- 15) 熱陰極電子銃の低エミッタンス化
菅野 浩一 (AET・Japan)
- 16) ビームモニターの開発
石渡謙一郎 (日大量子理工D3)
- 17) 自発放射自己増幅の観測
田中俊成 (日大量科研)
- 18) 電子ビーム及び、FEL ビームパルス長の計測
早川 建 (日大量科研)
- 19) 自由電子レーザー用マルチバンチ高周波電子

- 銃のための LaB6 光陰極の研究
菅野浩一 (AET・Japan)
- 20) アルダブラゾウガメ・ヘモグロビン(HbD) の構造解析
桑田隆生 (日大量科研PD)
- 21) 自由電子レーザーアブレーション法による DLC 太陽電池の作成
田中 慶彦 (日大理工M)
- 22) レーザアブレーション法による酸化チタンの成膜
益田 恵太 (日大理工M)
- 23) レーザアブレーション法による発光材料 (LaO)CuS の成膜
清水 洋平 (日大理工M)
- 24) パラメトリック X 線による多波長観測と画像解析
佐藤 昌憲 (駒沢大医療健康科学)
- 25) 「LEBRA における真空モニタ・システムの整備」
野上 杏子 (日大量科研PD)
- 26) 日本大学電子線利用研究施設における放射線監視システムの現状
中尾 圭佐 (日大量子理工D2)
- 27) 電子線形加速器におけるパルス内ビーム変動に関する研究
高崎 寛 (日大量子理工M2)
- 28) パラメトリック X 線のエネルギー特性に関する研究
城所 明生 (日大量子理工M2)
- 29) 電子線形加速器冷却水の放射化に関する研究
稲垣 学 (日大量子理工M2)
- 30) PXR を利用したアプリケーションの整備と現状 ($\theta-2\theta$ 、ラウエ、イメージング)
森 啓 (日大量科研PD)
- 31) エッジエフェクトを用いた撮影の検討
森 啓 (日大量科研PD)
- 32) 酸化物のカラーフォトメモリー現象
望月章介 (日大文理)
- 33) 量子常誘電体 SrTiO₃ のフォトルミネッセンス
望月章介 (日大文理)
- 34) 日大自由電子レーザーによる近赤外・赤外領域散乱分光とレーザー・アブレーション(将来計画)
望月章介 (日大文理)
- 35) 時分割 X 線回折法によるスメクティック液晶の動的構造解析
高橋由美子 (日大理工)
- 36) 紫外線励起アンモニアガスによるシリコン窒化膜の作製及び評価
稲野正 (日大理工M1)
- 37) 陽極酸化法による純水中での SiO₂ 膜の作製と評価
藤田明良 (日大理工M1)

9. 研究成果の総括

本学術フロンティア推進事業の研究成果は、推進事業の研究基盤であり且つ研究拠点である電子線利用研究施設のプロジェク研究成果とは広く重なり、その分離が難しい。又、電子線利用研究施設のプロジェクと本推進事業は私立大学の学術研究高度化推進事業という目的が一致するために、ここでは、研究成果を敢えて分離しないことにする。

研究成果は、不可能と考えられていた普通の電子線形加速器による短波長FELの実現を世界最初に実証し、近赤外線～可視光領域に於ける光誘起化学反応、分子共鳴、分子クラスター機能、DNAの光発現などの波長依存性の実験が世界に先駆けて出来るようになったと総括できる。特に水の光吸収の少ない波長領域である近赤外線～可視光領域のFELは、高分子物質の合成と新機能、光構成色素、生命維持機能、並びに細胞成長因子(サイトカイン)に関する研究を飛躍的に促進させるものと考えている。

電子線形加速器の高度化、短波長FELの開発、パラメトリックX線の開発については、スタッフの個々の努力と、スタッフがチームワークを組んで個々では成し得ない力を結集した努力の積み重ねによるものである。

「電子線形加速器の高度化」

電子線形加速器の高度化には、次に示す加速器要素である、短パルスクライストロンの長パルス稼働、熱陰極型電子銃の低エミッタンス化、高周波増幅システムの位相安定化、パルス電源の高安定化、非破壊型位置モニターの実用化など、実用的高性能化の開発に成功して、ほぼその目的は達成されている。

「短波長FELの開発」

短波長FELは加速器に於ける制御された究極の電磁相互作用であり、通常の電子線形加速器の高度化による世界初の短波長FEL発振に成功したことは、FELの開発研究に大きなインパクトを与え、FEL利用の発展に貢献した。不可能と考えられていた普通の電子線形加速器による世界初の1.5 μm 波長FEL発振に成功し、FELをレーザー照射室(9室)に輸送するビームラインの敷設、FELエキスパンダーの開発、FELモニター・システムの整備を行い、FEL高度利用システムを構築した。一方、FEL発振が不安定なため、加速器の高度化並びに、光源の構造改良・改善、光学系の高度化を進めた結果、可変波長FELでは世界最初に1 μm の壁を突破し、基本波領域は0.87～6 μm 、高調波を含めると可変波長領域は0.35～6 μm に拡張し、FELの初期目標を達成できた。又、1.5 μm 波長のFELでは最大30mJ/マクロパルス(10 μs)の出力を得ている。0.1mm径に集光すると尖頭電力が数十GWに達し、現在、短波長可変波長

FELは世界のフロントにいる。更に、FELビームラインでFELとエキシマ・レーザーが同期照射できるように試み、各レーザー照射実験室で2色レーザーを使った光ポンピング・光分析、多光子反応実験が可能になった。

「パラメトリックX線の開発」

パラメトリックX線(PXR)の世界初の実用化に成功し、簡便にエネルギーが変えられる単色X線光源が実現し、指向性の強いコヒーレントX線の出現により、軽い元素で構成される有機物質が少ないX線線量で高コントラスト撮像に成功した。これは将来ガンなどの医療診断が的確にできることを示唆するとともに、これからのX線位相学の発展を飛躍させると非常に高い評価を得ている。

PXRの成功には、FEL用の高性能電子ビームの活用が大きく貢献し、可変エネルギー単色X線発生を実現したと言える。エネルギーの可変領域は現在6～20keVであるが、低エネルギーの単色X線テスト実験では、少ない線量で軽元素の有機物質のクリアな高コントラスト透過撮像が得られている。更に、PXRが約1%の一次関数的なエネルギー分散を持つことから、この特徴を活用した実験では、特定物質のX線吸収微細構造(XAFS)映像が得られ、大型放射光施設でも長時間計測を要するXAFSを短時間で計測できることを示唆した。集光システムを活用したイメージングプレート(IP)によるX線回折高次構造解析は実験中であるが、今後、可変波長準単色X線源の特長を生かす共同利用実験が提案されることに期待している。

次に、物質・生命科学分野の研究分担者の個々の研究課題とその研究成果について簡単に触れる。

研究分担者が年度初めに申請する研究課題は、実験の進行や途中の詳細検討により研究内容や目的が変わり、研究成果の発表では研究題名が変更される例があるが、時事刻々進展する競争的研究社会では、申請時と研究途中又は終了時の研究題名が変わっていることは当然あり得ることであり、寧ろ拘束することによる弊害が派生することを避けなければならないと考えている。

研究分担者は、理工、文理、医、歯、松戸歯、生物資源科学、工学部などに所属し、研究場所が所属学部の研究室と本研究施設に分離され、実験時間を十分に確保できないくらいがあり、短時間でも効率よい実験ができ且つ実験経験が積み上げられるような研究環境の提供と出来る限りの実験支援を行った。しかし、限られたスタッフと研究経費では、研究分担者が要求する研究環境を整えられなかったことも事実であり、今後の進展に期待を寄せて頂くように努力している。

「FELによる新素材の開発」

FELによる新素材の開発では、カーボンポリマーを作成し、近赤外領域FELを照射し、カーボン・アモルファス薄膜の形成に成功している。現在、優れた炭素半導体特性の創成のため、2色レーザー照射や多光子反応によるカーボン・アモルファス薄膜生成について世界初の実験を試みている。

FELによるマイクロスケールの3次元C₆₀ポリマー(スーパーダイヤモンド)を合成し、超硬質材料を形成・産出することにある。高温高压プロセスで研究が進められているが、マクロスケールで3次元ポリマー化は確認されていない。ホールドーピング効果によってC₆₀の炭素原子のエネルギー状態を超高压下(数GPa)に相当する状況におき、アクセプタル元素とC₆₀混合物にFEL照射し、電子励起・移動させポリマー化合物の促進を試みた。真空中で加圧・紫外線照射することで作成したC₆₀粉末試料と、C₆₀粉末にアクセプトとしてI₂を混入した試料を用意しホールドーピング効果を評価した。試料には1450nmの基本波と3倍高調波のFELを照射した。評価にはラーマン分光、XRDを使用して行った。その測定結果から、I₂はホールドナーとして振る舞うとともにC₆₀と層間化合物を形成していることを示し、ホールドーピングがポリマー化に有効であることを示唆した。まだスーパーダイヤモンドを産出するには到らなかったが、しかし、光励起ホールドープの手法でC₆₀が物性変化することが確認でき、スーパーダイヤモンド合成の可能性を示唆した。新たなカーボン・アモルファス成膜に期待を寄せている。

「MIS構造素子の放射線効果」

宇宙空間は放射線環境であり、宇宙飛行体に搭載する半導体素子には高耐放射線性が要求され、半導体集積回路の基本構造(MIS構造)の放射線効果を把握することは、耐放射線性素子を開発する上で重要となる。

一方、酸化膜・窒化膜の多層構造のMNOS(Metal-Nitride-Oxide-Semiconductor)は耐放射線性に優れているとの報告があるが、そのメカニズムや絶縁膜厚の最適化などはデータがない。放射線照射によるMNOS絶縁膜中の電荷発生と固定電荷(捕獲電荷)の変化をテーマに研究を進め、放射線照射による絶縁膜中の電荷変化は、トランジスターしきい値電圧変動が主な要因であることを明らかにし、主目的はMIS構造におけるMNOS構造の最適耐放射線強化構造の追求をおこなっている。

酸化膜厚、窒化膜厚の異なるMNOSダイオードを作成し、放射線照射実験(⁶⁰Co- γ 線)を行い、照射前後の電気的特性測定結果から、ゲート電圧が照射によって高耐圧になる膜厚条件が存在することが明らかになり、MNOS構造の耐放射線素子の可能性を

示唆している。

又、pチャンネル型MNOS電界効果トランジスター(p-MINOSFET)の作製プロセス評価として、不純物(ボロン)拡散処理後にも半導体表面洗浄CVD法によるパターンニングには窒化膜再表面の不純物層除去の必要性などを明らかにしている。

「光励起プロセスによるシリコン系絶縁膜の低温成長」

p⁺ポリシリコンゲートのMOSFETは、ゲート酸化膜のボロン突き抜け現象が半導体信頼性を低下させるため、その対策として高温熱処理で突き抜け現象の抑制が試みられている。この方法は、半導体集積回路の微細化の障害になる可能性が大きく、低温によるシリコン酸化膜の成膜として、光励起反応によるシリコン窒化膜の低温成長の確立を試みている。

アンモニア及びジクロロシラン・ガスの光CVDで254、185nmの紫外光照射により、基板温度300°Cで比較的良質なシリコン窒化膜の堆積が可能であること示した。又、紫外線照射アンモニアガスによるシリコン基板の直接窒化は基板温度200°C以下の低温で進行することが確認できた。又、成長速度が非常に小さいが、極薄膜の膜厚コントロールが可能であることを明らかにしている。

一方、陽極酸化法では、シリコン上で室温でも酸化が進行し、800°C以上の熱処理による絶縁特性と同等であることを示し、FEL照射による陽極酸化を試み、光照射では成膜中の回路電流及び成長速度の増大が確認でき、FEL波長の最適化などにより、膜質改善を試みる予定である。

「パラメトリックX線を用いた高压下におけるXANESの研究」

磁性体、超伝導体、半導体の物理的性質には、原子や分子の内部電子状態が反映され、金属磁性はヘビーフェルミオンの物質群における伝導電子と局在電子の相互作用が磁性の発現と解釈され、その電子状態の解明がキーポイントである。又、半導体などの物理的性質は、元素置換で電子状態に対する影響を探索できるが、元素置換は置換量が限られ、更にランダムネスなどの副次的効果が混入し本質が見えなくなる。しかし、物質を静水圧的に圧縮すると連続的に原子・分子間隔などの構造変化をさせて電子状態を計測できる。電子状態の情報は極めて少ないが、高温超伝導では圧力をかけるとT_cが上がるということが報告されているが、そのメカニズムは解明されていない。一方、高压下で電子状態を調べるには、光学的測定の外にX線吸収端近傍スペクトル(XANES)が有効であり、特性吸収端付近に現れるスペクトル微細構造は元素の電子構造や対称性を反映するので、電子状態の情報が得られ、ダイヤモンドアンビル高压

発生装置で100万気圧以上の圧力下の実験が可能である。本研究では、既に磁性体 Yb_4As_3 の磁性起源を探索するために、KEKPFで高圧下のXANES測定を行い、Ybの価数圧力効果を調べているが、十分なマシンタイムが確保できていない状況である。

現在、日大電子線利用研究施設では、波長可変でエネルギー分解能に優れたパラメトリックX線発生装置が実用化されたので、この研究拠点に高圧XANES測定システムを構築し、磁性体、超伝導体、半導体の電子状態に関する電子状態の基礎データを蓄積する予定である。

又、国内でも本グループにより有用なデータが得られているが、しかし、現状は高圧技術、マシンタイム、データ解釈などの制約から進展していないようである。

一方、ダイヤモンドは透明な波長領域と吸収端測定をできる元素が限られることから、現在、XANES測定は希土類元素に限られ、更に、高温超伝導体中のCu吸収端のエネルギー領域では、ダイヤモンドはX線に不透明であり、Beガスケット透過によるX線ダイヤモンドアンビルの実験を試み、DAC内にルビーチップを導入し、蛍光波長を測定するシステムを構築すること、並びに、本研究施設のX線ビームラインにXANES測定システムを構築し、試料前後のビーム強度を計測し吸収係数を求めるとともに、4Kまで冷却できる冷凍機を導入し低温計測を行い、転移機構解明ができるようにすることを提案している。

「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メモリー材料開発への応用」

酸化物の固体、薄膜、ナノ粒子膜が、雰囲気交換（酸素雰囲気から真空状態に変化）で紫外レーザー照射するとフォトルミネッセンス色が可逆的に変化し、この変化状態はレーザー照射以外は保存されることを発見し、これらの研究を基礎に、室温で安定な可逆光誘起物性変化現象を示す物質の探索と創生を試み、物質表面に於けるナノサイズのカラードット記録について下記の研究を行っている。

1) 紫外レーザー照射で赤色から白色、青色から白色などの転移、即ち、光メモリー物質の探索と創生である。

2) 光メモリー物質表面の情報をナノサイズの赤・青・白などのカラードット列に集積し、近接場光学顕微鏡と結合させて、情報の超高密度記録を試みる。

これらの目的を達成させるために、希土類金属酸化物のカラーフォトメモリー現象のダイナミクスを探索し、その研究成果を2005年5月に開催される光励起相転移に関する国際会議に公表などを予定している。又、光触媒・量子常誘電体のフォトメモリー現象の研究では、チタン酸ストロンチウム SrTiO_3 のフォトメモリーとフォトルミネッセンス現象のメカニズムを探究し、

紫外レーザーによる誘起フォトメモリー現象を見出し、結晶欠陥構造と化学的ヘテロ性に起源があることを明らかにしている。更に、超イオン誘導体のフォトメモリー現象の研究では、 AgI-anatase TiO_2 の光誘起スペクトル変化、 AgI-ZrO_2 の作製とその光メモリー性を探究し、真空中では325nmレーザー照射により2.6eVを中心とする発光帯が広帯域になるフォトメモリー現象が発現し、酸素雰囲気中では元の発光状態に戻ることを見出し、この発現は ZrO_2 の電子励起によることを示唆している。現在、 AgI-SrTiO_3 系の試料を作製し、フォトルミネッセンス特性を追求している。

「FELアブレーション法による環境半導体成膜」

ダイヤモンドや酸化チタンの光触媒作用を利用した環境を乱さないリサイクル可能な毒性の少ない半導体成膜の生成を考案し、FELによる分子振動に共鳴とエキシマ・レーザーによる電子励起による広バンドギャップ半導体成膜の生成を試み、半導体の変換素子や太陽電池の実現に挑戦している。FEL吸収による試料表面の破壊は確認されたが成膜形成は確認されていないが、 $\text{C}_6\text{H}_6 + \text{P}(\text{CCH}_3)$ のエキシマ・レーザー吸収による成膜では、発電効率は低い($8 \times 10^{-5}\%$)がn型DLC/p型Siの太陽電池を、酸化チタン光触媒では発電効率が比較的高い(0.51%) TiO_2 色素増感型太陽電池を得ている。又、基板加熱や O_2 雰囲気による(LaO)CuS成膜では、PLスペクトルがレッドシフトすることを明らかにし、更に、その組成比を変えるとPL発光波長が可変になることを見出した。又、PXRによるXAFS観測では、CuO薄膜のKエッジとEXAFS振動を確認している。

「CVD・PLD法による環境半導体成膜の生成」

環境半導体成膜実験では、カーボン昇華の薄膜形成プロセスが半導体特性に影響すると考え、炭素粉やベンゼンに近赤外領域FELを照射し、カーボン・アモルファス薄膜の形成に成功している。現在、優れた炭素半導体特性を創成するためのカーボン・アモルファス薄膜の生成制御方法を開発研究中である。

「時分割X線回折法によるスメクティック液晶の動的構造解析」

液晶のソフトマターは小さな外力に対する応答性が良く大きな構造変化を示すことであるが、その秩序形成過程、相転移機構のメカニズムが解明されておらず、パラメトリックX線のパルスを活用し、時分割X線回折光学系を構築し、スメクティック液晶の電場応答、ソフトマターの構造変化過程の計測手法の確立を試み、その有効性を確認している。今後、パラメトリックX線の特徴を生かした時分割X線回折光学系を開発し、

液晶研究に適用し、その応用範囲を広げる予定である。

「予備・準備実験」

予備・準備実験装置の意義は、高度な実験技術を習熟できるように、予備実験用レーザーやX線回折装置を用意して、本実験に付随する障害を低くして、色々な物質の光反応における波長依存性を詳細に探索でき総合的研究ができる環境整備を整えたことにある。この実験環境整備により共同利用実験がスムーズになり、又、初心者でも予備実験で高度な実験技術を習得でき、先端実験に挑戦する意欲の向上を図ることができた。

予備・準備実験用として導入された粉末結晶 X 線回折装置、微小部高次構造 X 線回折装置、生体高次構造 X 線回折解析装置は、これらの X 線装置は、X 線を必要とするが X 線に無関係であった研究者や大学院生の X 線計測技術の修得に大いに役立ち、多くの X 線研究者が育成され、共同利用研究の裾野を広げることができた。

予備・準備実験装置による主な研究成果としては、粉末結晶 X 線回折装置、微小部高次構造 X 線回折装置を活用した生体アパタイトの X 線回折による構造分析と、生体高次構造 X 線回折解析装置を活用した各種ヘモグロビンタンパクの機能構造解析が上げられる。

微小部高次構造 X 線回折装置では、非破壊分析として炭酸カルシウム結晶で構成される恐竜の化石卵殻が珪酸塩に一部変質していることを明らかにした。又、頭蓋骨の X 線分析からフッ素は骨形成に影響を与えることを示唆した。更に、唾石の組成・構造分析、骨芽細胞培養で形成された石灰化物の分析、Ti-Implant の骨形成能などの卓越した研究成果が得られている。

「針状粉末を出発原料とした高アスペクト比ペロブスカイト粒体の合成及び評価」

$K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ はペロブスカイト型結晶構造を有し、室温で正方晶の誘電体であり、板状晶 $Bi_4Ti_3O_{12}$ をテンプレートに用い配合させた場合、電気機械結合係数 K_p が 0.3 から 0.4 になる報告を受け、この研究グループは、 $K_2Ti_4O_9$ がアスペクト比の大きな物質であることに注目し、この物質をテンプレート材料に用いることにより、圧電体の応用に期待できるとの判断から、 $K_2Ti_4O_9$ の作製を試みている。又、 $K_2Ti_4O_9$ は針状粉体結晶であり、合成によって得られる $K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ も大きなアスペクト比を期待できる。この研究グループが粉末結晶 X 線回折装置を用いて測定する目的は、作製した $K_2Ti_4O_9$ 結晶生成状態とその粉末中の配向性にあるが、テンプレートに用いた $K_2Ti_4O_9$ の電子顕微鏡 (SEM) 像から非常にアスペクト比の高い針状形

状を確認し、 Bi_2O_3 を秤量し湿式混合して、乾燥後に熱処理して合成を行い、その微細構造を SEM で、結晶構造を粉末 X 線回折法により観測している。その結果、テンプレート材料に $K_2Ti_4O_9$ に用いて、針状形状を有する $K_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$ の合成に成功している。又、この粉体をシート成形し配向させることを試み、この試料の結晶配向を X 線回折で調べた結果、径方向に沿っていることを明らかにしている。

「生体高分子タンパク質の X 線結晶構造解析」

タンパク質結晶の高次構造解析には、純粋タンパク質の分離、タンパク質の分子数の決定、タンパク質結晶の作成、X 線回折による結晶分子の電子密度分布の計測、フリー解析による結晶の分子モデル構造の決定のプロセスを必要とするが、特に、タンパク質の結晶作成は思考錯誤しながらの積み重ね実験であり経験とノウハウを最も必要とする手間の掛かる作業である。

この研究グループは、タンパク質構造解析 (生体高次構造解析) とタンパク質結晶作成は一体作業であると判断し、結晶作成用コールドルームを用意し、標準的な卵白タンパク質 (リゾチーム) 結晶を指標に試作することからスタートしている。当初の生体高分子タンパク質の高次構造解析には、金属タンパク質の NO 補足能、ヘモグロビンの高次構造解析、ヘモシニアンの高次構造解析が計画されていた。金属タンパク質の NO 補足能には、高エネルギー高輝度 X 線源を必要とし、予備・準備用 X 線装置では実験が不可能なことから、パラメトリック X 線実用化の実現を待つことになった。

一方、特殊な試料タンパク質の入手は困難であり、タンパク質の高次構造解析を希望する研究者から試料の提供を受け共同研究として研究活動を進めることになった。又、X 線結晶高次構造解析では、共同研究者からゾウガメ、アカムシのヘモグロビンの試料の提供を受け、タンパク質結晶を作成し立体構造を決定するとともに、シロウリガイ、アホロートルのヘモグロビンの結晶作成、カブトガニのヘモシニアンの結晶化を試みている。今後の X 線回折により、これらの立体構造を順次明らかにする予定である。

ヘモグロビンやヘモシニアンの高次構造解析では、準備用 X 線回折構造解析装置でもタンパク質結晶の分子構造解析が出来ることを実証し、この装置を使って実験用爬虫類及び昆虫類の酸素運搬タンパク質ヘモグロビンの結晶構造の決定に成功し、それらの立体構造解析からヘモグロビンの多量体形成に関わる構造的な特徴を解明しつつある。

「自由電子レーザーによる尿路結石破碎に関する基礎研究」

この研究グループは、FEL を用いた医学的基礎実

験が可能になると、理論的に特異な波長のFELを照射することにより、物質固有の現象が誘起される可能性を探り、尿路結石破碎に利用して、ESWL、Endo-urologyなどの治療法に派生している問題点を克服する治療法の開発を試みている。

FEL照射による尿路結石検体の形態的変化、KBr錠剤法で処理された尿路結石検体の照射前後の赤外スペクトル吸収帯に対するパターン変化の比較検討、FEL照射による尿細管細胞(培養細胞)の細胞ストレスの評価をテーマに実験を進めている。

尿路結石の除去は手術か或いは超音波による結石破碎が主な方法であり、レーザーで尿路結石をなぜ破碎できないか謎であった。FELを用いた尿路結石の照射実験からレーザー照射では蔞酸が尿路結石の表面を変質させ、レーザー吸収が低下し破碎しないことを明らかにし、対応方法を研究中である。培養細胞の実験は可視光～近赤外領域を対象に細胞ストレスの軽減作用喚起の試みを予定している。

「自由電子レーザー照射が歯質に与える影響」

歯科領域で各種レーザーによる臨床頻度高まり、高出力レーザーが15%を越えて診療室で用いられているが、特にEr-YAGレーザー(2.94 μ m)は、市販されているレーザーで最も歯質削除能力が優れ窩洞形成として広く用いられ、歯質のハイドロキシアパタイトの水成分に作用して歯質を削除すると報告されていることから、この研究グループは、Er-YAGレーザーと比較しながらFELが歯質に与える影響を確かめる実験を行っている。

FELは波長選択が任意にでき、パルス幅も市販Er-YAGとは異なることから、歯質に与える影響も異なると考えウシの歯を使って、FELとEr-YAGのエナメル質と象牙質に与える歯質削除深さや削除面性状を実験的に探究している。

その結果、総エネルギー量1.5JにおけるEr-YAGではエナメル質削除は観測されないが、象牙質削除には有効であることを示し、パルス当たり照射エネルギー大きくなるほど深い切削が得られ、脱灰象牙質では更に切削効果が大きい傾向を示している。一方、脱灰象牙質ではEr-YAGの30mJ/パルスとFELの8mJ/パルスが同等であることを示し、ピーク出力や照射エネルギー密度の違いにより、低い照射エネルギー量でも同等の切削効果があることを明らかにしている。又、脱灰エナメル質に関しては、FELでは深い切削効果を観測しているが、Er-YAGでは切削効果が観測されないため、FELとEr-YAGは顕著な違いがあることを示し、Er-YAGのハイドロキシアパタイトの破壊は、水成分が急激に熱せられて膨張し、冷却による急激な収縮によるものであるが、この破壊効果は脱灰チョーク状エナメル質には通用しないことを示唆している。又、SEM写真観測では、Er-YAGによる

切削においてエナメル質表層に亀裂を、象牙質では熱変性による鱗片状構造を観察し、FELでは全ての試料で鋭利な切削形態を観測していることから、レーザー照射による切削は波長の選択と同様にマイクロパルス特性も重要であることを示唆した。

「レーザー照射の生物学的効果の細胞学的解明」

ー培養細胞の遺伝子発現プロファイリングとパスウェイ解明ー

レーザー照射は生体の傷や潰瘍に治療効果があると言われて以来、この研究グループは、炎症や痛みを和らげる効果、骨の成長を促進する効果を証明する努力をしている。レーザー照射の生物学的効果作用の解明には、波長、エネルギー量、電磁波場などの物理量が生物学的変化に与える影響の相関を科学的に実証する必要がある、歯肉繊維芽細胞、関節リュウマチの膝滑膜細胞、骨芽細胞などの細胞培養系を、通常レーザーや波長可変なFEL照射による遺伝子発現変化に配慮しながら研究を積み重ね、生物学的効果の機序解明を試みつつあるが、通常レーザー照射では、キモカイン群の遺伝子発現レベルを制御できることを明らかにしている。更に、培養早期のレーザー照射は骨形成促進効果が大きいことから、レーザー照射した細胞からmRNAを分離しcDNA遺伝子タンパクを作成し、非レーザー照射から回収したmRNAを用いて、同一遺伝子を差し引く方法を用いて各遺伝子クローンの塩基配列を解読して該当遺伝子を同定した。又、Northern blot分析を行い、レーザー照射と非照射の比較からMCMmRNAレベル増加が認められ、DNA合成能を放射性チミジン取り込み量で評価した結果、レーザー照射の細胞増殖促進作用は、MCM遺伝子発現を介してDNA複製を進行させることに関与していることを示唆している。又、骨芽細胞の骨形成作用に関連する遺伝子として、Annexin IIIとMIF遺伝子は骨芽細胞の増殖や骨改造を調整する機能をもつことが示唆されており、これらを同定しRT-PCR法によってその機能を確認している。又、ゲノムデータベースを応用し、cDNAマイクロアレイを応用して骨芽細胞(MC3T3-E1)に低出力レーザー照射を行い、遺伝子発現が変動する遺伝子をモニターリングする予備実験を行っている。その結果、Osteoglycin mRNAが低出力レーザー照射によって増大することを見出し、Real time OCR法により確認している。

更に、Gene Chipを用いて、ヒト骨芽細胞へ低出力レーザー照射して発現が変化する遺伝子のトランスクリプトーム解析を試み、オントロジー解析の結果、細胞分裂、シグナル伝達関連遺伝子、成長因子、成長因子受容体、イオンチャンネル関連因子、Ca調節因子などの多数の遺伝子の発現がレーザー照射によって変動していることを見出している。以上のことか

ら、レーザー照射の生物学的効果は培養細胞系において証明し、又、レーザー照射は種々の遺伝子発現を変動させることを明らかにしている。

特に、ゲノム/トランスクリプトームデータベースを活用し差分化遺伝子クローニングやcDNAマイクロアレイ、Affymatrix Gene Chipを応用してレーザー照射による発現促進する遺伝子の探索にも成功しているが、情報伝達系の構成分子のなかには、必ずしもレーザー照射の刺激によって遺伝子の転写を通じてタンパク質を発現させる必要はないとしている。例えばタンパク質としては既に存在しているが不活性状態であり、リン酸化されて始めて作用を発揮するものや、半減期の長いタンパク質では早急の遺伝子レベルを必要としないものもあり、トランスクリプトーム解明により、すべての生命現象が明らかになるわけではないとしている。2次元電気泳動ゲルをイメージアナライザーで分析して、標的とするタンパク質スポットを切り出して、ingel digestion、ペプチド断片の精製を自動的に行うロボットとTime of Flight型質量分析器を用いてゲノムデータベース解析ツール(MASCAT)を用いて、レーザー照射によるタンパク質の増減、リン酸化タンパク質の解析に着手している。

情報伝達系の構成分子に対する刺激は波長依存性があり、近い将来、ゲノム、トランスクリプトーム、プロテオームの移行情報を駆使した生物情報学の研究によって、生物学的作用の全貌が明らかになり、より効果的なレーザー医学の推進が期待できると結論づけている。

「自由電子レーザーの組織再生効果に関する研究」

低出力レーザーには創傷治癒作用、骨修復促進作用が報告されており、この研究グループは低出力半導体レーザーに骨形成促進作用があることを報告している。

レーザーは照射量、照射密度、波長、パルス幅、照射時期などにより生物学的作用が異なると考え、照射条件の違いによる骨修復効果の検討を行い、FELによる骨形成促進効果を最大に発揮する照射条件を探究している。更に、レーザーの組織誘導促進のメカニズムを解明し低出力レーザーの歯科臨床応用を試みている。

Ga-Al-As半導体レーザー(830nm、500mW)を手掛かりに、ラットの骨芽培養細胞に連続波とパルス波を照射し、細胞増殖、骨芽細胞分化マーカー(アルカリホスファターゼ:ALP)活性、ALP遺伝子発現、小骨形成における骨形成促進作用を比較し、細胞増殖、ALP活性、小骨形成面積などの増大を確認し、連続波よりパルス波が有意に増大することを示し、間歇的光刺激が骨形成に有効であることを示唆している。又、レーザーの細胞感受性の実験を行い、分化程度が異なる2種類のラット頭蓋冠の骨芽細胞、未分

化細胞と分化細胞などを培養し、細胞のALP活性を測定して、未分化型細胞はレーザー照射によりALP活性が上昇するが、しかし、分化型細胞はレーザー照射でALP活性が変化しないことから、未分化細胞にレーザー照射すると分化を促進する機能あると結論し、又、過剰照射ではALP活性に効果がないことを示唆している。

更に、骨形成メカニズムを探究するため、レーザー照射による骨成長因子である insulin-like growth factor (IGF-I)-Iのタンパク及び遺伝子発現、並びに、リコンビナント(r)IGF-I や IGF-I 抗体を作用させてレーザー照射による小骨形成能の実験を行い、(r)IGF-I 作用では小骨形成が顕著に促進され、IGF-I 抗体を作用させると低下し、IGF-Iのタンパク質及び遺伝子発現はレーザー照射後に顕著に増大することを突き止め、以上のことから、レーザー照射による小骨形成促進作用は、骨芽細胞が産出するIGF-Iの遺伝子及びタンパク発現を介して同定されると示唆している。

今後は、ヒト顎骨から採取した骨芽細胞を培養し、種々の条件を設定しFEL照射を行い、小骨形成を最大にする条件と、その条件で培養骨芽細胞にFEL照射し、細胞からmRNAを回収し、マイクロアレイ解析システムを用い、遺伝子発現レベルの変化と細胞内クロストークを試み、レーザーの骨形成メカニズムの解明を提案し、これによりレーザー歯科臨床応用の発展を模索している。

「パラメトリックX線LEBRA-PXRを用いた生体硬組織結晶の微小部解析と自由電子レーザーLEBRA-FELを用いた歯科レーザー治療のEBMに対する基礎的研究と最適条件の決定」

この研究グループは、電子線利用研究施設(LEBRA)のパラメトリックX線(PXR)と自由電子レーザー(FEL)を利用した本実験と予備実験装置(IP型微小部X線回折装置、PSPC型微小部X線回折装置、粉末X線回折装置)を用いた多くの実験を行い、その研究成果を積極的に発表している。ここでは、「予備・準備実験」で簡単に総括した研究内容などを少し詳しく記述する。

LEBRA-PXRでは、PXRの実用研究に備えた予察的な透過像撮影や回折実験を行い、大型放射光実験施設や通常X線装置では得られない特色ある諸特性を明らかにしている。例えば、通常のX線透過像では区別がつかない実験的にフッ素障害を発現したラットの骨と通常ラットの骨を、PXRの波長可変性を利用したX線透過像で比較し、それらの間に明確な差異があることを実証している。

又、恐竜の卵化石の破片に確認された白色層状物質が、卵殻化石に含まれるリン酸カルシウムと異なる物質であることを探究するために、PXRの波長可変

性を利用したX線吸微細構造(XAFS)の測定を行い、エネルギーを変えた単色X線の差分撮像からSrが含有されていることを明らかにしている。

又、生体物質の微細分析と生体材料の界面の状態の解明では、準備実験用微小部X線回折装置を使った歯のエナメル質結晶の3次元解析から界面形状の示すメッケルモデル部の内部構造は結晶が層状に積み重なっていることを明らかにしている。

現在、PXRの集光系は調整中であり、IP型微小部X線回折装置による実験は実施していないが、PXRを試料に直接照射した回折X線実験では、PXRが結晶性の評価に優れた能力を有していることを明らかにしている。

本研究施設の粉末X線回折装置には18kW強力ローター型X線発生装置が組み込まれており、測定時間短縮と精度向上を図っているが、粉末X線回折装置は物質を同定する分析装置であり、生体内に出現する結晶性物質は単結晶に成長することが困難であり、粉末試料のX線一次元解析に適しているReitveld法などによる結晶構造解析に依存することになる。しかし、歯のエナメル質を構成する生体アパタイトは、結晶粒子も大きく、結晶組成は PO_4^{3-} を CO_3^{2-} が置換している特徴を持ち、再結晶化による単結晶を試みると、試料の結晶組成が異なるために、2次元X線回折は不可能となる。

ローター型強力X線発生装置と位置検出型の湾曲PSPC(position sensitive proportional counter)は、微小焦点コリメーターと組み合わせると100~10 μm の微小領域のXRD情報を短時間に得られる。このPSPC型微小部X線回折装置を使って、恐竜の化石卵は炭酸カルシウム結晶が一部変質し珪酸塩になったことを明らかにしている。又、この装置では唾石の組成・構造分析およびその形成過程、Ti-Implantの骨形成能、骨芽細胞培養系に形成された石灰化物の分析、骨形成におけるフッ素の影響、歯のエナメル質を構成するアパタイト結晶の配向などの研究が続けられている。

歯科レーザーは歯嚢蝕部分削除、歯石除去、歯質強化、歯肉切除、病的変性部位切除などの広範囲な臨床治療に使用されている。一方、FELは、臨床用レーザーとパルス構造など様々と異なる特性を有することから、FELと臨床用レーザーの予察的な比較実験を行っている。

例えば、歯の硬組織に及ぼす光の影響では、FEL(波長2.94 μm)が少ないパルスパワー(10mJ/10 μS)のレーザー照射でエナメル質切削できるが、同じ波長の歯科診療用Hoレーザーでは大出力パルスパワー(900mJ/200 μS)のレーザー照射でエナメル質の切削量が僅かである理由をFELとHoレーザーの比較実験で明らかにしている。

FELの波長可変性を利用した実験では、歯に対

する切削孔形成のレーザー波長依存性が波長3 μm を中心に2.6~4 μm の範囲で調べられ、従来歯のレーザー照射効果は3 μm が最適であることを実験的に裏付けている。エナメル質と象牙質では最適波長に若干の違いがあることを明らかにしている。

10. 今後の課題と将来展望

本研究施設のFELはサブピコ秒の超短パルス光であり、高速の計測器を使えば、原子、分子、巨大分子に関する振動、共鳴、結合、相転移状態などの情報を得ることが可能である。FELとX線がリンクして複合的にリアルタイムで利用できれば、又、光電子分光、光化学触媒反応、光酵素反応、X線回折、蛍光X線などの動的特性の情報が得られる。

一方、可変波長単色光源は、光化学反応、化学触媒光反応、生体組織光反応の波長依存性を明らかにするだけでなく、FELの多光子は極限単色光による超微量分析、光超微細加工、巨大分子の光合成を可能し、半導体プロセスや新素材を開発する研究者に挑戦する場を提供している。

このような利用研究を促進するために、理学、工学、医学、農学を連結する研究拠点として、学問分野の垣根を越えた協力研究を積極的に推進し、多種多様な基礎・応用研究を融合できる環境を整えるべきと考えている。

一方、生命科学では、遺伝子の情報によって造られるタンパク質がどのような構造で機能を持っているかを調べる手段としてX線が非常に有効であるが、タンパク質結晶構造をX線回折から決定する場合、高分子の立体構造の骨格を成す炭素、リン、窒素、酸素の存在は確認できるが、タンパク質機能の主役を果たす水素の存在を感知できない。このためにタンパク質の機能のメカニズムを探ることができない。この部分は中性子回折を頼りにすることになるが、X線回折でも水素が見えるツールを開発することが、これからの大きな課題である。

現在、地球上に存在する超分子(生命体を含む)は多水素結合を基盤としている。多水素分子は、個々の水素結合力は弱い、多水素結合でその結合力の弱さを補い、しなやかで丈夫な分子として存在している。又、部分的に結合が切断されても、親水作用を通じて簡単に修復する仮想機能を取得し、このメカニズムは炭素や窒素の元素を媒介し触媒や酵素により複雑な生命体のような超分子に成長している。

この水素結合エネルギー領域は、太陽が照射する可視光領域とほぼ一致し、特に生物はその恩恵に浴している。しかし、この波長領域では水の光吸収が極端に弱いことが、超分子形成に大きな役割を果たしている。

酵素は通常生体細胞の中で作られるタンパク質である。酵素の触媒作用は極めて特異であり、ただ一

種の物質か或いは共通の構造要素をもつ一群の物質にしか作用しないことが知られている。その種類は多く、機能によって酸化還元酵素(オキシドリダクターゼ)、転移酵素(トランスフェラーゼ)、加水分解酵素(ヒドラーゼ)、離脱酵素(リアーゼ)、異性化酵素(イソメラーゼ)、合成酵素(リガーゼ)に分類している。最近では酵素の機能をもつ物質が合成する試みが行われ、クラウンエーテルやクリプタンドなどの環式化合物が産出されている。

酵素が特定の基質にのみ選択的に作用する酵素の基質特異性は、基質分子と酵素上の基質が結合する部位が、立体構造的に鍵と鍵穴の関係で結合していることによる。即ち、基質分子が酵素の基質結合部位に接近すると、基質結合部位の構造が基質に適合するように微妙に変化し、結合を助けるようにも考えられ、これを誘導適合と呼んでいる。酵素には、基質特異性が非常に厳密で、一種類の基質にしか作用しないものから、基質特異性が比較的緩やかで類縁物質に作用するものまで、多種多様である。動物の細胞内には千種類から四千種類の酵素が存在するが、それでも混乱が起きないのは、このメカニズムによる。

機能性生体分子は基本的には超分子であるが、人工的超分子の研究が活発になってきている。特に王冠状の分子構造をもつクラウンエーテルは大環状ポリエーテルであり、環の内側の空孔にアルカリ金属陽イオンやアミノ酸陽イオンを取り込み安定な錯体(超分子)をつくることができる。この孔を調整して、任意のアルカリ金属イオンを選択的に捕獲し、アミノ酸の光学異性体の分割が行える。環の外側は疎水性であり、クラウンエーテルに捕獲された陽イオン(親水性)は有機溶媒に溶けやすくなる。特定の波長の光をこの孔の半径の調節に活用することが考えられる。一方、陰イオンを捕獲するクリプタンドや複数個のフェノール単位を持つカリックスアレーンなどの環状化合物は、包接体のホストに適した構造であり、環の大きさや化学的性質に適したゲストを選択的に捕獲するので、未知の機能を持つ超分子が生成される可能性を持っている。

これらの分子は弱い相互作用で集合し、最も安定な状態をつくる自己集合によるカプセル型超分子の生成が目ざされている。この中に閉じこめられた分子の性質は通常の性質とは著しく異なっており、普通の条件では起こらない反応が起こり、不安定な物質を安定化することも不可能ではない。生命科学の基本は生命活動状態で、これらの構成因子から情報を得ることである。色々な酵素を生命体に送り込み光酵素反応を通じて酵素を制御し目的要素に情報を与え、或いは情報を収集させ回収する。即ち、ロボットの役割をもった酵素による生命体高分子機能の探索の可能性が考えられる。

21世紀の自然科学に於ける最大の関心事は、「原子や分子の微細な粒子の複合体がなぜ特殊な機能を持ち、これらが有機的に結びつき高分子になると、互いに相補的な役割や機能を分担し、更に超分子に成長すると、再生や組織活動する機能を創成するようになるのか？」にある。我々はこの神秘的な現象から多くの驚愕的事象を学びとるであろう。又、これらの神秘的なメカニズムの分析には、物質科学と生命科学が個々に深い探索が必要であるが、総合的な解明には、2つの科学が広領域で融合したジャンルから広い視野からの探究が必須であり、又、このジャンルは我々に多くの新しい研究課題を提供するであろう。

11. まとめ

日本大学では、20世紀の後半から理工、文理、工、医、歯、松戸歯、生物資源科学部の協力の下に放射光利用計画を企画し、共同利用研究施設の設立を積極的に推進してきたが、このプロジェクトの研究施設を私立大学の学術研究高度化推進事業(学術フロンティア推進事業)の研究拠点に活用することにより、21世紀の科学技術の進展に相応しい物質、生命、資源科学の広い学問分野を融合する先進的な研究基盤を構築することができたと認識している。

研究施設が放射線施設として共同利用実験ができる状態に環境整備を整え、放射線施設検査に合格するまで約2年間の歳月を要することになったことが、推進事業全体の進展を大きく左右することになった。更に、未知の応用研究の実験では、高度に安定した光源を必要とすることから、加速器や光源の性能アップと安定化が光源利用実験より優先されたため、高度利用の開発研究の開始は大幅に遅れ、担当研究分担者に大変迷惑を掛けることになった。

本文は、研究成果報告書に記載する原稿編集の終了を待って記載しましたので、ここに記述した内容は、3月11日の講演内容とは異なっていることをご了承、下さい。