

# 日本大学 LEBRA 共同利用施設における加速器開発とその応用利用

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

■ 報告

日本大学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おいて、100 MeV 電子線形加速器の高度化、線形加速器を用いた赤外領域の自由電子レーザー (Free Electron Laser : FEL)、準単色 X 線であるパラメトリック X 線放射 (Parametric X-ray Radiation : PXR) の開発を進めてきた。2011年からは産総研との共同研究も開始し、各ビームラインにおいて、テラヘルツ波 (THz) 光源開発を進め、FEL, PXR, THz の三種類の波長域における光源利用ができる、特徴ある施設となっている。各光源は、2003年頃から共同利用研究環境を整え、日本大学内だけではなく、学外の研究者、企業へも広く提供している。

## 1. はじめに

日本大学では、1992年に日本大学本部と理工学部、医学部、歯学部、松戸歯学部、文理学部、生物資源学部の6学部にわたる学部横断プロジェクトとして、放射光利用のための計画が立ち上がった。1994年度には、赤外から紫外領域の自由電子レーザー (Free Electron Laser : FEL) の共同利用を目指し、125 MeV 電子線形加速器の建設がスタートした。本計画での加速器主要部分は、共同研究を行っている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) のサポートを受け、電子陽電子入射器用線形加速器の一部の移設や、本プロジェクトの前に製作していたマイクロtron加速器用の電源の一部などを利用することで、加速管など新規に製作することなく、予算を抑えつつも、高性能な線形加速器の実現を目指した。1997年に加速器が完成し、それに伴い、施設名称を日本大学電子線利用研究施設 (Laboratory of Electron Beam Research and Application : LEBRA) とし、光源用加速器の運用を開始した。2000年度から文部科学省私立大学学術研究高度化推進事業の研究拠点に採択され、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」により<sup>1)</sup>、共同利用研究施設として拡充された。この学術フロンティア推進事業により、加速器の高度化、安定化を進め、2001年5月に波長 $1.5\ \mu\text{m}$ のFEL発振に成功した<sup>2)</sup>。その後、アンジュレーターの更新を経て、近赤外領域での発振仕様へ変更し、現在は、波長 $0.9\sim 6.7\ \mu\text{m}$ までの波長範囲で発振が可能となっている。また、波長範囲 $1.6\sim 2\ \mu\text{m}$ のFELを非線形光学結晶へ通すことで、2次または4次の高調波を生成させ、約400 nmまで提供が可能である。その他の光源として、2004年には、パラメトリック X 線放射 (Parametric X-ray Radiation : PXR) の観測に成功しており<sup>3)</sup>、準単色コヒーレント X

線源として、大規模な放射光施設以外では難しいとされているような、各種イメージング実験も行う事が可能となっている<sup>4)</sup>。さらに2012年度から、産業技術総合研究所との共同研究を始め、加速器で最大100 MeVまで加速された電子ビームを用いた、テラヘルツ (THz) 波光源開発が精力的に進められている<sup>5)</sup>。特に、開発した THz ビームラインは、FEL ビームラインや PXR ビームラインの輸送ライン上に設置しており、FEL と THz、または PXR と THz の同時利用可能な複合ビームラインといった世界的にも珍しい特徴を持っている。現在までに、三種類の光源が利用可能な共同利用研究施設として運営しており、大学内だけではなく学外からも多くの共同利用研究が行われている。

## 2. 日本大学 LEBRA 共同利用研究施設

### 2.1 LEBRA 施設概要

KEK と日本大学との間では、1994年の加速器本体移設以降も、電子線形加速器の高度化に関する共同研究が継続して進められている。これまでに、KEK の多大なサポートの下、 $-100\ \text{kV}$  電子銃の低エミッタンス化、高周波源に用いているクライストロン長のパルス動作化、RF 位相安定化、ビーム位置モニターの開発、加速器冷却水の高安定化など改良が行われた<sup>6-9)</sup>。この結果、高周波電子銃やサブハーモニックバンチャー、超伝導加速管など用いていない、一般的な加速器ではあるが、FEL の安定発振可能なまでに高安定、高品質な電子ビーム加速を実現している。年間の加速器運転時間は、ここ20年間の平均では、年間1700時間弱であり、各光源の利用実験、マシンスタディを含んだ運転件数は年間平均170件程度行われている。ただし、2020年度前半は新型コロナウイルスによる大学構内への入構規制が行われたため、例年の半分程度の

運転時間で推移している。

ユーザー利用実験施設には、加速器を用いた光源実験とは別に、基礎測定や前測定、後測定が行えるように、X線回折装置、エキシマレーザー、ラマン分光計、原子間力顕微鏡、クリーンルーム等を備えており、共同利用者には無料で開放している。

近年では加速器の各コンポーネントにおいて20年以上経過している装置も出てきており、老朽化に伴う故障が増え、特に高周波窓における放電対応が重要となっている。この放電対策には、2020年から高速RFスイッチで構成された放電検出保護回路を製作し、高周波放電による影響後、250 ns以内に高周波信号を制御するシステムを導入している<sup>10)</sup>。保護回路導入に伴い、高周波源への負荷軽減が図られ、光源の利用実験件数が回復しつつある。

## 2.2 LEBRA 100 MeV 電子線形加速器

日本大学 LEBRA の電子線形加速器は加速RF周波数2856 MHzで、-100 kVの三極管タイプのDC電子銃、プリバンチャー、バンチャー及び、4 m 加速管3本で構成されており、前項でも触れたように、高周波電子銃やサブハーモニックバンチャー、超伝導加速管など用いていないシンプルな構成の加速器となっている。Fig. 1にLEBRA加速器のビームライン概要図を、Table 1に加速器の主なパラメーターを示す。高周波源の2台のクライストロンからは、RFパルス幅最大20  $\mu$ s、ピークRF電力20 MW、マクロパルス繰り返し数2~12.5 ppsで供給可能である。加速エネルギーは、最大125 MeVまで加速可能な設計となっているが、必要とされる利用実験に応じて変更

し、40~100 MeVの間で運用している。LEBRAにおける電子ビームには大きな特徴があり、通常のマクロパルスビーム電流約200 mAのフルバンチモード、引き出しピーク電流をフルバンチモードに比べ1桁程度大きいバーストモードの2つの運転モードで運用している。ビームモードの時間構造の概念図をFig. 2に示す。電子銃には通常のグリッドパルサーに加え、Kentech Instruments社製の半値幅600 psの高速グリッドパルサーを組み込んでおり、通常のフルバンチモード運転に加え、加速周波数2856 MHzの64分周、または128分周で間欠的にビームを引き出すバーストモード運転が可能である<sup>11)</sup>。バーストモードでは、バンチ間隔がフルバンチモード時の350 psから64分周時には22.4 ns、または、128分周時には44.8 ns毎にバンチ加速が可能である。バーストモードは、加速される平均電子ビーム電流が低下し、加速高周波電力のビー

Table 1 Specification of the LEBRA 125 MeV electron linac.

Accelerating RF Frequency	2856 MHz
Beam Energy	40~125 MeV
DC Gun Voltage	-100 kV
Klystron Peak RF Power	30 MW
Number of Klystrons	2
Macropulse Duration	5~20 $\mu$ s
Repetition Rate	2~12.5 pps
Macropulse Beam Current	200 mA
Energy Spread (FWHM)	0.5~1%

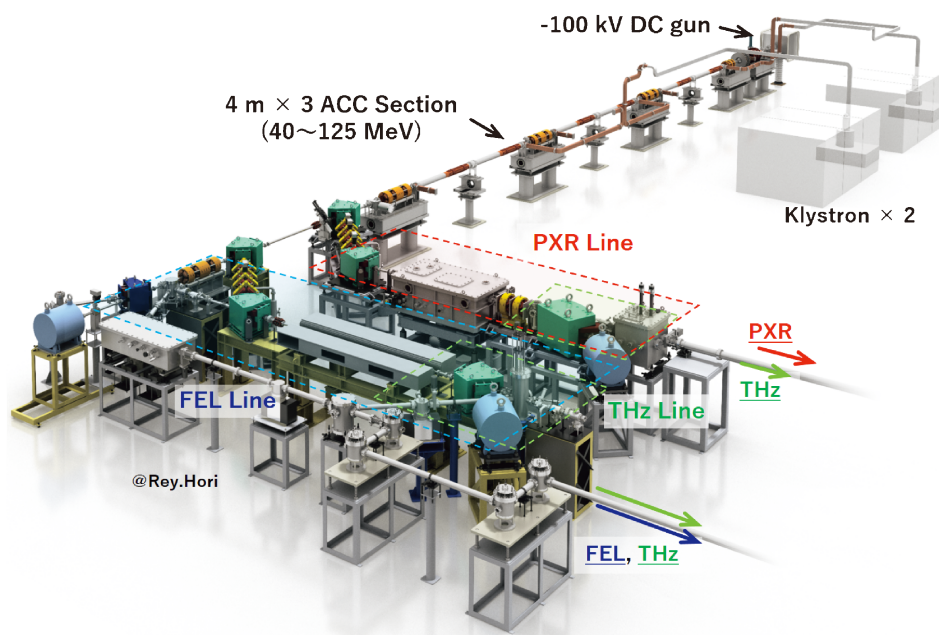


Fig. 1 (Color online) Layout of the 125 MeV electron linac, PXR line, FEL line and THz line at LEBRA in Nihon University.

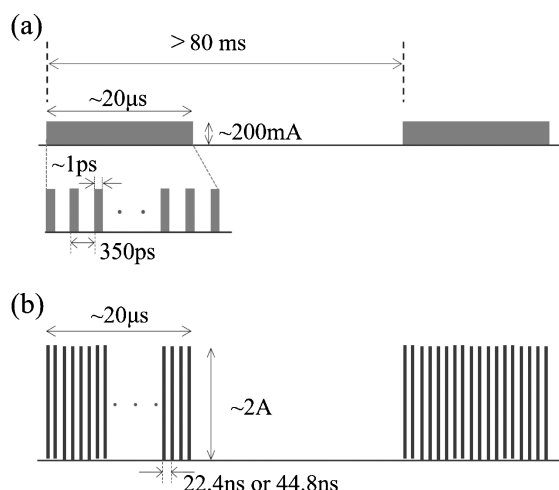


Fig. 2 Pattern diagrams of the beam bunch trains accelerated in two modes. (a) Full-bunch mode. (b) Burst modes.

ム負荷が大きく軽減されるため、バンチ当たりでは電荷量を1桁程度増やすことができ、これにより、ミクロバンチ当たりのFEL強度増強が可能となっている。FELの増幅利得が高いため、発振が容易になる利点があることから、安定度が必要なFEL利用実験を中心に、よく用いられており、2011年からバーストモードでの常用運転が可能になってからは、このモードの使用頻度が増えている。さらにLEBRAの加速器の大きな特徴として、パルス幅20 μsの長パルスビーム加速運転が挙げられる。これは、FELは増幅利得が小さいため、発振が飽和に至るためには長パルスのビームが必要であることから、パルス幅20 μsで運転を行っている。現在用いているクライストロンは、三菱電機製のPV3030クライストロンであるが、このクライストロンの仕様はパルス幅4 μsのため、真空排気強化を行い運用している<sup>12)</sup>。ただし、クライストロンは安易に交換ができないため、クライストロンの寿命等を考慮し、通常運転時は繰り返し2~5 ppsで運用している。

### 3. LEBRA 光源開発

日本大学LEBRAでは、FEL, PXR, THzの3つの帯域にわたる光源開発を行っている。PXR光源とその利用に関しては、本トピックから離れるため、参考文献に委ねる<sup>4)</sup>。ここでは、これまでの近赤外FELの光源開発状況と、各ビームラインで行っているTHz光源開発について述べる。

#### 3.1 LEBRA-FEL 光源

LEBRA-FELは、電子ビームエネルギーを40~100 MeV、アンジュレーターギャップは最小24 mmまで狭めることができ、さらに非線形光学結晶を用いた高調波生成も利用することで、400 nm~6.7 μmの範囲のFELが利

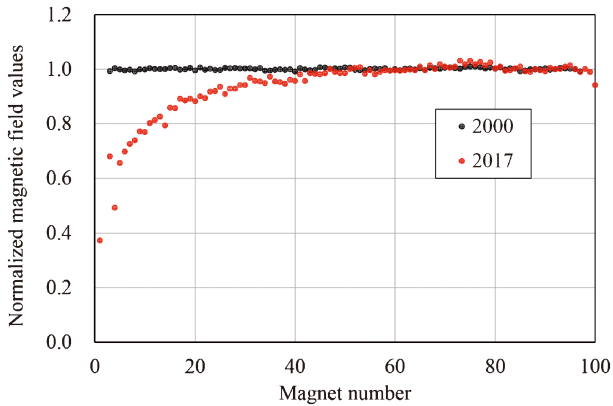
Table 2 Specifications of the LEBRA-FEL system.

Undulator Configuration	Halbach type Planar
Magnet Material	Dysprosium-containing Nd-Fe-B
Period of Undulator Field	48 mm
Number of Periods	49
Gap Width	~24 mm
K-value (RMS)	0.7~1.4
Resonator Length	6718.04 mm
Rayleigh Range	1.467 m (@r=4 m)
Available Wavelength Range	0.4~6.7 μm

用可能である。アンジュレーターはハルバック型で、周期長48 mm、光共振器長は6718.04 mm（加速高周波自由空間波長の64倍）である<sup>13)</sup>。また、2020年にアンジュレーターの磁石の更新を行い、周期数は50から49へ変更した。共振器ミラーは、基板材料に銅を用い、銀または金をコーティングしたものをを用いている。これまでに米国のSpawr製、ドイツのKUGLER製の銀コートミラーをメインに使っていたが、2020年度からはシグマ光機製の金コートミラーもテストとして利用を開始した。シグマ光機製のミラーはコストパフォーマンスが良く、性能も他のメーカーと比べても、現在のところ同レベルで問題なく、FEL発振を維持できている。LEBRA-FELの仕様をTable 2に示す。

上流の共振器凹面鏡の中心に結合孔があり、共振器内で発生させたFELは、共振器に蓄積された光のうち約1%を結合孔から外部に取り出している。また、光共振器から取り出された光は、結合孔から約2 m下流に設置された楕円ミラーと放物面ミラーを組合せたコリメーター（ビームエキスパンダー）光学系によって平行ビーム化された後、ユーザー利用実験室の最下流まで約50 mあるFELビーム輸送光学系で、各ユーザー利用実験室に導いている。

LEBRA-FELでは、通常運転において加速電子ビームとアンジュレーターのスペックからFEL波長0.9~6.7 μmを供給可能であるが、より短波長の需要に対しては、当初FELの高次高調波発振を提供していた。しかしよく知られているように、高調波は基本波に比べ強度が数桁低いため、利用実験が限られていた。より短波長の発振用に加速器とアンジュレーターの改良を行うのは大がかりになるため、現在LEBRAでは、非線形光学結晶を用いて高調波を発生させる方法を採用している。非線形光学結晶には、ベータホウ酸バリウム ( $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>: BBO) 結晶とニオブ酸リチウム単結晶 (LiNbO<sub>3</sub>) を用いている。また、非線形光学結晶を多段にすることで、基本FEL波長に対して第4次高調波生成も行っている。基本波FEL出力から高調波への変換効率は数%~数10%程度あるため、FELの高次高調波を用いる場合に比べ数桁大きな出力が得られて



**Fig. 3** (Color online) Comparison of normalized magnetic fields in 2000 and 2017. The horizontal axis represents the magnet position from the upstream side.

いる。非線形光学結晶を用いることで400 nm までの高調波を発生させることができおり、400 nm~6.7 μm の波長範囲でユーザー利用実験が行われている。

アンジュレーターは2020年に更新を行ったが、その理由としては、上流側の磁石列の磁場劣化があった。2000年に信越化学工業製のNd-Fe-B永久磁石へ交換したが、その後2017年頃には、上流側1/3の磁石列で磁場劣化が確認できた。Fig. 3に2000年の交換直後のアンジュレーター磁場と、2017年頃の減磁している時の比較を示す。磁場の値は、アンジュレーターの片側の表面磁場の1周期毎に測定した各ピーク値を最大値で規格化している。磁場強度は最大で約30%減磁していたが、この減磁した磁場分布状態でも、発振強度は下がるが、FELの発振状態は維持できていた。減磁の主な原因は、加速器および電子ビームから発生する放射線による影響が長期にわたって蓄積したことであると考えられた。放射線による減磁のメカニズムとしては、理研の備前氏により広域エネルギー吸収放射線減磁機構と微小領域エネルギー放出放射線減磁機構の2つの機構の混在モデルが提案されている<sup>14)</sup>。特に、電子やγ線による電離や励起に伴う温度上昇による保持力の低下、磁気異方性の欠陥による磁石スピンの乱れによる減磁が示されている。このような放射線減磁の原因の一つとして広域エネルギー吸収放射線減磁機構が関係していることが確認されており、熱耐性の高い磁石では減磁の影響がある程度抑えられると考えられる。一般的なネオジウム磁石は、キュリー温度が低い事が知られているが、この熱耐性の問題を解決するために、ネオジウムの一部をジスプロシウムで置換した保持力の高いジスプロシウム添加のネオジウム磁石が開発されている<sup>15)</sup>。ただし、ジスプロシウムと鉄のスピンは反強磁性結合するため、磁束密度の低下を伴う問題がある。また違うアプローチとして、近年、傾斜磁化磁石を用いた磁気回路方式も実証されているが<sup>16)</sup>、新規開発要素も入ってきてしまうことから、

LEBRAでは2020年度に更新した磁石には、これまでの磁石と同程度の磁束密度を確保しつつ、ジスプロシウムの添加量を多くし、放射線耐性(熱耐性)を高めた日立金属製のNd-Fe-B焼結磁石を用いることにした。また、これまで使用していたアンジュレーター磁石では、電子ビームが中心からオフセットした位置で蛇行運動していたが、今回製作した磁石では、アンジュレーター端部の磁石配列を変更し、電子ビームが中心を通るような設計とした(周期数を50から49に変更した)。新しく更新したアンジュレーター磁石には、放射線耐性の高い磁石材料を使用しているが、今後の実験における放射線による減磁をできるだけ低減する目的で、アンジュレーター上流部において放射線遮蔽壁強化と、運転中も放射線強度を常時モニターできるように、小型のシンチレータ検出器を用いた環境を整えた<sup>17)</sup>。今後の放射線による減磁を低減する効果が期待できる。

これまでの過去16年間の主な実験に用いたFEL出力強度とFEL波長の関係をFig. 4に示す。Fig. 4(a)はフルバンチモード、Fig. 4(b)はバーストモードでの運転で得られたマクロパルスあたりの出力強度を示している。ただし、高調波や調整中のデータを含み、光学素子による吸収や発振パルス幅の違いによる補正はしていない。図の中で特定の波長で減少している箇所があるが、これはFELビームラインからFELを取り出して、測定系まで空气中を輸送しているため、二酸化炭素等の吸収による影響と、測定系に用いているコードルミラーの影響が見えているためと考えている。利用実験や波長、運転状況、使用している共振器ミラーにも依存はするが、フルバンチモードではマクロパルスあたり0.1~60 mJ、バーストモードでは0.1~17 mJ程度が実績として出ている。アンジュレーターと共振器ミラーを交換してからまだ調整が不十分な面もあるため、今後さらに調整を進めていく予定である。

### 3.2 LEBRA-THz 光源

日本大学LEBRAにおけるTHz光源開発は、2011年度から産総研との共同研究で進めており、最近では、日本大学理工学部内の他学科の研究室とも共同研究を始め、改良、高度化を進めている。FELビームライン偏向電磁石で発生させたTHz帯域のコヒーレントシンクロトロン放射(Coherent Synchrotron Radiation: CSR)の基礎測定、応用利用から進め、CSRからのバンチ長評価測定など成果を挙げた<sup>18)</sup>。CSRとは本測定で発生させているように、短バンチ化された電子ビームなどを偏向電磁石などによって軌道を曲げたときに発生するシンクロトロン放射光において、位相が揃っている放射光のことを指し、バンチ長が短いビームほど強い放射光を出す。2013年度以降は、PXRのビームラインにおいてTHz領域のコヒーレント遷移放射(Coherent Transition Radiation: CTR)、偏向電磁石からのコヒーレントエッジ放射(Coherent Edge

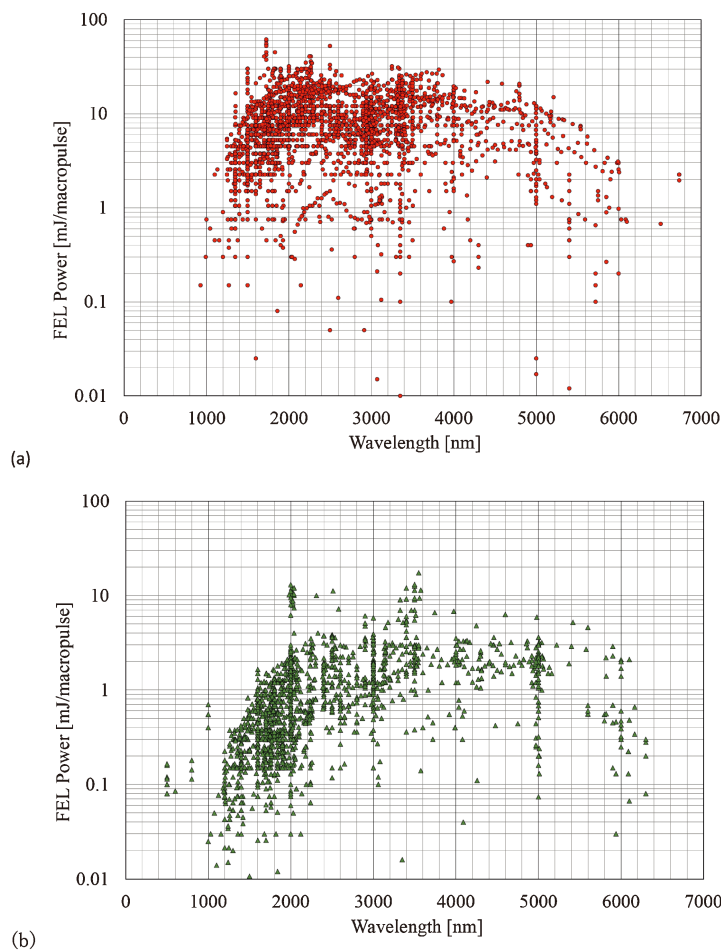


Fig. 4 (Color online) Measured FEL power as a function of the FEL wavelength. (a) Full-bunch mode. (b) Burst-mode.

Radiation : CER), FEL ラインでの CER の基礎測定を行っている。CTR は、異なる誘電率を持つ 2 つの媒質の境界を電子などの荷電粒子が通過する際に発生する光であり、LEBRA の光源にはチタン箔、Si 板にアルミ蒸着したもの、あるいはベリリウム板などの導体を用いている。CER も CTR と似た放射現象であり、電子などの荷電粒子が偏向電磁石の端部を通過するとき発生する光である。CSR と同様に、短バンチ化された電子ビームを用いるため、コヒーレント性が高い光となっている。

エッジ放射は、先に述べたように、高エネルギー電子ビームなど荷電粒子が偏向電磁石端面において、運動方向の速度変化に伴って電磁放射される現象であり、加速器リング直線部において干渉光の原因として知られていた。このエッジ放射は、遷移放射のような同心円分布且つ、ラジアル偏光であり、また放射光にくらべて、波長依存性が緩やかで、赤外領域では高強度であるといった特徴がある。プロフィールとしては、ビームライン直線部で測定するため、通常は 2 箇所からの光干渉として干渉縞が観測される<sup>19)</sup>。ただし、エッジ放射は中空構造をしていることから、FEL 光共振器外部への取出し方法を工夫することで、

FEL の損失なく取り出すことが可能である。さらに、回折放射とは異なり、放射強度の波長依存性がカップリングの影響を受けにくく、THz 波長領域では、放射光よりも 1 桁から 2 桁程度高強度である。回折放射は、CTR の場合において、穴が空いた導体を荷電粒子が衝突せず通る際に放射される現象であり、穴が非常に小さい場合は CTR に一致するため、これらも同じような放射現象である。更に CER では、アンジュレーターを通過する事でマイクロバンチ化された電子ビームが偏向電磁石を通過するため、放射される光はマイクロパルスあたりの出力も数十 nJ と期待できる。また一般的なリングなどのエッジ放射で見られる偏向電磁石の上流側と下流側の干渉に関しては、FEL ビームラインの場合、上流側で発生したエッジ放射は、偏向電磁石間のアンジュレーターやビームダクトではほぼカットされてしまうため、下流側の偏向磁石からのエッジ放射は上流側とは干渉せず、利用しやすいといった特徴がある。このように、FEL 発振後の電子ビームの情報を FEL 発振妨げることなく外部へ取り出すことで、THz 帯域の CER (THz-CER) は FEL のビームモニター用に非常に適しているため、LEBRA-FEL ラインでの THz-CER 光

源では、エッジ放射の特徴を生かして、THz-CERを用いたバンチ長評価、利用等を目的に開発している。

LEBRA-THz光源の大きな特徴として、常伝導の電子小型加速器を用いた平均出力の高い広帯域テラヘルツ光源であるという事が挙げられる。高繰り返し可能な大規模超伝導加速器を用いた尖頭出力、平均出力共に高いテラヘルツ光源の開発も実現されているが<sup>20)</sup>、2章でも述べたように、高周波電子銃やサブハーモニックバンチャー、超伝導加速管など用いていない、一般的な小型加速器ではあるが、大学に設置できる小型加速器を用いて、平均出力の高い広帯域テラヘルツ光源を実現している。また、LEBRAはFELやPXRの各線源を用いたユーザー利用施設であるため、それぞれの線源利用に対して影響が出ないように、ビームライン設置方法を工夫している事も特徴に挙げられる。この後でも述べるように、FELとPXRのビームラインへ各THz光を重畳することが可能であり、異なる波長帯域での同時照射可能なビームラインである事が、他の施設にはない大きな特徴となっている。よく知られているように、FELを発振させるための電子ビームには非常に高い安定性が要求されており、このような電子ビームを用いることで、FELのようなピーク強度の高いTHz光源ではないが、広帯域で平均強度の高いTHz光源を実現している。

開発した輸送光学系をFig. 5に示す。Fig. 5(a)はFig. 1のFELラインの一部を示している。アンジュレータの上流側のミラーから取り出したFELは、Fig. 5(a)左上に示されているFELエキスパンダー光学系によって平行ビーム化し、FEL輸送ラインを通して実験室へ輸送している。THz輸送光学系には、アンジュレータ下流側の偏向電磁石と共振器ミラーの間に、穴あきミラーを用いた取出し光学系を設置している(Fig. 5(b)参照)。FEL光共振器からのTHz-CER取出し用のミラーには、隣の実験室への輸送を考慮し、トロイダルミラーを用いている。穴あきミラー挿入時と全反射ミラー挿入時の反射効率は約70%であることが確認できており、FEL発振を妨げることなくTHz-CERの測定が可能であり、世界初の赤外FELとTHz-CERの同時測定を実現している<sup>21-24)</sup>。波長は0.1~2.5 THz、パワーは全反射ミラー挿入時0.5 mJを達成している。また、取り出したTHz-CERは、FELビームラインと交差する重畳部分に、サファイア基板(厚さ0.5 mm)に酸化インジウムスズ(Indium Tin Oxide: ITO)を400 nm蒸着したミラーを設置し、赤外領域のFELは透過させつつ、1.0 THz付近のTHz光を80%反射させることが可能である。このITOミラーには上げ下げ可能な機構をつけており、ITOミラー挿入時はCER-THz光を反射させ、退避時はチェンバー後方に取り付けた結晶石英窓を通してTHz-CERを外部へ取り出し、モニターとして用いている。プロファイル測定では、トリガー同期可能なTHz用カメラのPyrocam IIIHRを導入

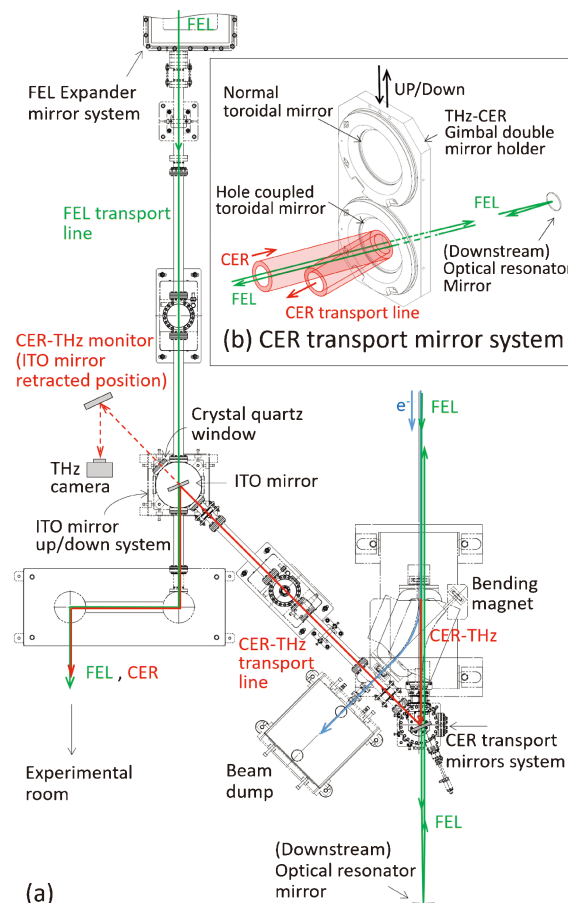


Fig. 5 (Color online) Schematic views of CER-THz transport system. (a) CER-THz transport line and FEL beam line. A part of the mirror of the optical transport system is constructed using ITO mirror with the optimized for the transport of the THz. (b) Transport mirror system consists of the total reflection toroidal mirror and the toroidal mirror with a hole.

し、イメージングなどの基礎測定も合わせ進めている。

このようなFELとTHzの同時測定可能な系の今後の利用・応用として、加速器側、利用実験側から以下に示すようなことが期待できる。FEL発振直前からTHz-CERの信号強度の増幅が見られることがこれまでの測定から分かっており<sup>24)</sup>、加速器側にはオペレーターへ対して、THz-CER信号をFEL発振調整の指針として用いる事が可能であり、維持調整に生かすことができる。運転への応用利用はテスト的に始めており、特に発振調整が手探り状態の調整初期段階において、良い指針となっている。また、近赤外FELでは水分子(OH分子)の分子振動を観測できるため、組織内の水分分布をイメージングできるのに対し、緩和モードを測定できるTHz光は水分子の水素結合をイメージングできるため、水分子間の結合状態を調べることができる。よって、ユーザー利用実験側に対しては、水分子の分子間振動が少ない結合をしていると言われる悪性腫瘍のようなサンプルに関して、両者を同時に測

定することで腫瘍化を測定できるのではないかと期待される。また東京理科大の川崎氏の研究グループによって、ジャイロトロンからの THz 光源を用いて、アミロイドタンパク質に対して、THz 光を照射する事で凝集化できることが示されているが<sup>25)</sup>、このような生体物質の構造制御に関しても FEL と THz の同時照射系を用いる事で、同じ照射系内で実施が可能であり、より高い効果が期待できる。

FEL ラインにおける THz 光源開発結果を踏まえ、PXR ラインでも THz 光源開発を進めており、THz 光源としては主に、導体薄膜へ高エネルギー電子ビームを当てて発生させた高強度 THz-CTR 光源及び、PXR ライン偏向電磁石で発生した THz-CER 光源の開発を行っている。THz-CTR 光源には、これまでにチタン箔や Si 結晶板にアルミを 10  $\mu\text{m}$  スパッタ成膜したターゲットを用いている。THz-CTR の平均出力は、光源点付近で 0.1~2.0 THz の周波数範囲において、約 1 mJ が得られている<sup>26,27)</sup>。この放射光源は、国内の広帯域加速器 THz 光源としては最高強度である。光源は加速器本体室側のため、ユーザー実験を考慮して、常時立ち入り可能な実験室へ THz を輸送するために、Fig. 6 に示す LEBRA-PXR ビームライン上へ THz 輸送光学システムを製作した。Fig. 6 (a)~(c) に各光源輸送モード別の輸送路を示す。このビームラインの主用途である PXR ビーム実験の妨げにならない事に加え、PXR ビームライン下流部ビームダンプ前の偏向電磁石で発生した THz-CER、ターゲットで発生させた前方 THz-CTR、後方 THz-CTR を搬送するために、3 モードを選

択的に切替え可能である。この輸送システムは、上部にモーター駆動機構が設置されており、各光源利用モードに応じて 30 秒程度で遠隔から切り替えられる。輸送システム内で、PXR ラインに重畳するためのミラーには、トロイダルミラーを用いて THz-CER の形状が崩れないように工夫をしている。また実験室内での取出口から THz 測定系で用いている干渉計とその周囲には、アクリル筒が接続された市販のグローブボックスを設置し、大気圧露点  $-72$  度の超乾燥空気ドライヤーを用いて、ボックス内を乾燥空気で満たせる構造としている。乾燥空気で満たされたボックス内で測定した THz-CER のスペクトル波形例

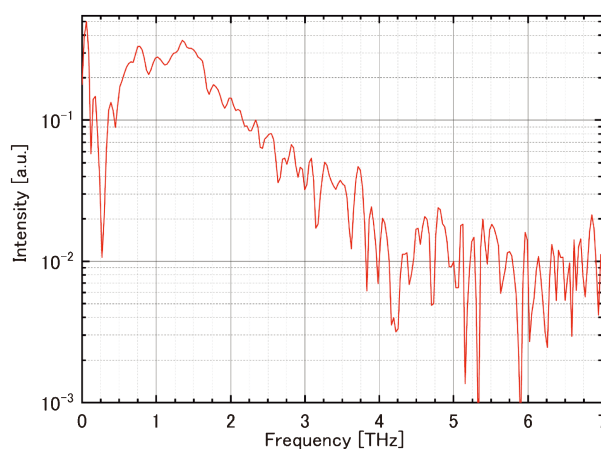


Fig. 7 (Color online) THz-CER spectra at the PXR beamline in dry air.

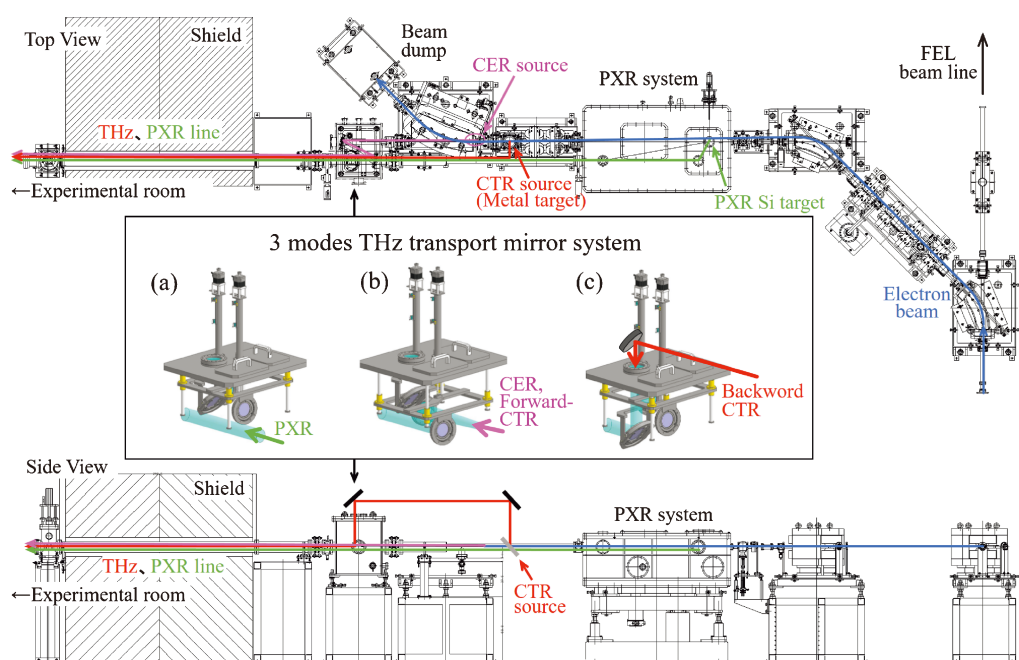


Fig. 6 (Color online) Top view and side view of the LEBRA-PXR beam-line and the THz transport optical system. (a) PXR transport mode. (b) THz-CER and Forward THz-CTR transport mode. (c) Backward THz-CTR transport mode.

を Fig. 7 に示す。手持ちの測定器の測定下限があるため、厳密な測定はこれからであるが、スペクトル波形と HITRAN データベース<sup>28)</sup>における数値と比較概算すると、ボックス内温度25.0°C時に、相対湿度は2%程度まで低下していると予想している<sup>29)</sup>。空気中の水の吸収による影響を十分に抑えることができ、利用できる周波数帯域は4 THz 弱まで広がっており、今後のユーザー利用実験での利用拡大に大きく期待が持てる。

その他の THz 光源開発も現在進めており、平面波コヒーレントチェレンコフ放射 (CCR) 源の製作に取り組んでいる (科研費基盤研究 (B) 19H04406)<sup>30,31)</sup>。放射源には形状を工夫した誘電体中空円錐管を用い、設置場所としては、先に述べた PXR ライン上に設置し、THz-CER 同様、同じ輸送ラインを使うように設計している。これまでの他の光源に比べて、強度が高くなることが期待できるため、さらなるユーザー利用実験への応用が期待できる。

#### 4. LEBRA 光源の応用研究

日本大学には多くの学部学科があり、LEBRA の3つの光源は、これまでに理工学部だけではなく、歯学、生命科学、物質科学、生化学分野など幅広い研究分野において利用されてきた。歯科応用では、エナメル質と象牙質において、最適な掘削波長が異なることが示され、基礎研究の段階ではあるが、FEL を用いた歯科レーザー治療応用性が示されている<sup>32)</sup>。その他には、FEL 照射によるポリ乳酸の転写法によるバイオマテリアルのマーキングなどへの応用研究なども行われている<sup>33)</sup>。物質科学の分野では、コールドウォール型、ホットウォール型化学蒸着法成膜装置による単層カーボンナノチューブ成長において、カイラリティー制御を FEL 照射で実現する制御技術の開発や、異なったカイラリティー単層カーボンナノチューブ製作とその応用研究などが精力的に行われている<sup>34)</sup>。

LEBRA では日本大学外部にも開放しており、FEL では特に生命・生化学分野での利用が最も多く利用されている。最近の成果では、本特集号への投稿にもあるように、東京理科大学の川崎氏の研究グループによって、セルロースに赤外 FEL を照射することで、グルコースやセロビオース (グルコースの2量体) など低分子量の糖類に効率よく分解されることが示されている<sup>35)</sup>。また、LEBRA-FEL では、照射部を顕微鏡で観察しながら FEL 照射が可能な FEL 顕微照射システムを構築しており<sup>36)</sup>、顕微鏡で観察しながらの FEL 照射微小部位の詳細な応答測定が可能となっている。またこれまでに、ナメクジ (*Limax valentianus* : チャコウラナメクジ) 及びザリガニ (*Procambarus clarkii* : アメリカザリガニ) における目の網膜がどのような波長を吸収しているかについて、FEL 照射における電気生理学的反応測定が行われている<sup>36,37)</sup>。ザリガニの電気生理学的反応測定時の様子を Fig. 8 に示

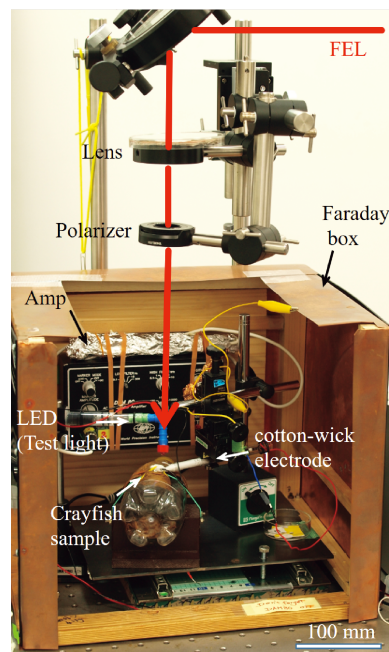


Fig. 8 (Color online) Setup for measuring the electrophysiological response of the crayfish.

す。測定時は電気ノイズをできるだけ遮断するために、ファラデーボックス内で照射実験を行っており、持ち運びも可能な仕様となっている。FEL 照射前には LED のテスト光を用いて光反応状態を確認した上で、FEL に対する反応状態を確認できる測定系になっている。LEBRA-FEL で対応できない FEL 波長範囲に対しては、本特集号への投稿にある京都大学の FEL 施設へも測定系を持ち込み、2施設を利用した広い波長範囲にわたる測定が行われている。

LEBRA-THz を用いた応用研究では、日本大学理工学部電子工学科の大谷研究室と共同研究を進め、時間領域分光法 (Time Domain Spectroscopy : TDS) の応用研究で、物質の固有吸収スペクトルに関する研究が行われている。薬物などの試薬類にはテラヘルツ帯域において、指紋スペクトルと呼ばれる物質固有の特有な吸収スペクトルがあり、THz 分光測定が注目されている。LEBRA-THz を用いた TDS により、特に医薬品の指紋スペクトル測定を行っており、外部先行研究のファミチジンの結晶多形の異なる A 型、B 型結晶の結果を参考に進めている<sup>38)</sup>。結晶多形とは、同一分子でありながら分子配列が異なるもので、科学的成分としては同じ物を指しているが、溶解度や結晶形態が異なり、薬効の違いなどがでてくるため、有効性の違いなど発生する恐れもあり、非常に重要な問題となっている。このような測定には、一般的な X 線回折やラマン分光、核磁気共鳴など様々な分析手法が用いられるが、成分が似通っている結晶多形の場合、違いを検出するのが難しい場合がある。しかし、THz 分光では、結晶の分子間振動を捉えることから、このような結晶多形のような物質に



対して、非常に敏感な測定が可能である。ファモチジンの結晶多形の A 型、B 型はそれぞれ、1.2 THz、1.6 THz に特徴的なピークを持つことがわかっており、LEBRA-THz でもこの吸収ピークを参考に、測定系の改良、データ処理方法の確立、ノイズ対策など、より明瞭な指紋スペクトルが計測できるよう検証中である。

## 5. おわりに

日本大学電子線利用研究施設 LEBRA では、高エネルギー加速器研究機構と産総研との共同研究において、加速器の高度化及び、光源の開発を進めてきた。光源開発では、FEL、PXR 及び、THz の 3 種類の光源が共同利用可能となっている。2004 年から共同利用研究施設として運営が始まり、年間の運転時間は 1700 時間弱、各光源の利用実験、マシンスタディを含んだ運転件数は年間平均 170 件程度行われている。利用可能な FEL の波長範囲は、非線形光学結晶を用いて、400 nm~6.7  $\mu\text{m}$  の範囲で利用可能である。FEL の強度としては、これまでにフルバンチモードではマクロパルスあたり 0.1~60 mJ、バーストモードでは 0.1~17 mJ 程度が実績としてでている。FEL の応用研究としては、生命・生化学分野での利用が多く行われている。THz 光源に関しては、FEL ライン、PXR ラインそれぞれで光源開発を進めており、FEL ラインでの THz-CER 光源は、周波数範囲 0.1~2.5 THz、強度 0.5 mJ、PXR ラインでの THz-CTR 光源点付近では、周波数範囲 0.1~2.0 THz の周波数範囲において、約 1 mJ であり、国内の広帯域加速器 THz 光源としては最高強度が得られている。また、超乾燥空気を用いた測定系を構築しており、利用できる周波数帯域は 0.1~4 THz 程度まで広がっている。このような THz 光源を用いた応用研究では、LEBRA-THz による TDS などが行われており、医薬品の指紋スペクトル測定などを検証中である。また、THz ビームラインは、FEL と THz、または PXR と THz の同時利用可能な複合ビームラインといった、他にはない特徴を持っており、FEL 発振を妨げることなく THz-CER の測定が可能であり、世界初の赤外 FEL と THz-CER の同時測定も実現している。今後はこれら光源が併用された応用研究も期待している。

## 謝辞

日本大学 LEBRA の加速器、各ビームライン及び、ユーザー利用施設は高エネルギー加速器研究機構、産総研との共同研究、文科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」(2000-2007 年度)によって開発・整備されてきた。また、FEL、PXR ラインにおける THz 光源開発は、JSPS 科研費 16H03912, JP16K17539, JP19H04406 及び、平成 26 年度日本大学科学研究費(若手研究)獲得支援研究の助成を受

けて行った。アンジュレーター更新の一部は、文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム(Q-LEAP) JPMXS0118070271 の助成を受けて行った。LEBRA 加速器の高度化とその応用利用は、日本大学電子線利用研究施設のスタッフ、開発に携わった多くの大学院生、共同研究者一同の努力によって成されたものであり、心より感謝の意を表します。特に、LEBRA 加速器での各光源の応用利用研究の実現、共同利用施設の実現は、2019 年 5 月 23 日に急逝された佐藤勇先生(KEK 名誉教授、日本大学元教授)の多大なるご尽力の賜物です。ここに佐藤先生のご功績に深く感謝するとともに、謹んで哀悼の意を捧げます。

## 参考文献

- 1) 小嶋勝衛: 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」研究成果報告書(日本大学量子科学研究所, 2005年), <http://www.lebra.nihon-u.ac.jp/frontier/report2008/index.html>
- 2) Y. Hayakawa *et al.*: Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **483**, 29 (2002).
- 3) 早川恭史: 日本加速器学会誌「加速器」**6**, 166 (2009).
- 4) 早川恭史, 高橋由美子: 日本放射光学会誌「放射光」**33**, 87 (2020).
- 5) Norihiro Sei *et al.*: Proceedings of FEL2012, 480 (2012).
- 6) K. Kanno *et al.*: Proceedings of the 26th Linear Accelerator Meeting in Japan, 73 (2001).
- 7) T. Sakai *et al.*: Proceedings of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, 293 (2002).
- 8) K. Hayakawa *et al.*: Proceedings of the 3rd Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan and the 31st Linear Accelerator Meeting in Japan, 747 (2006).
- 9) T. Sakai *et al.*: Proceedings of LINAC08, 331 (2008).
- 10) T. Tanaka *et al.*: Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 51 (2020).
- 11) T. Tanaka *et al.*: Proceedings of IPAC2011, 3218 (2011).
- 12) T. Sakai *et al.*: Proceedings of the 25th Linear Accelerator Meeting in Japan, 228 (2000).
- 13) T. Tanaka *et al.*: Proceedings of FEL2004, 427 (2004).
- 14) 備前輝彦: 博士論文放射光挿入光源用永久磁石の放射線減磁に関する研究(京都大学, 2009).
- 15) M. Sagawa *et al.*: Journal of Applied Physics **61**, 3559 (1987).
- 16) T. Bizen *et al.*: Phys. Rev. Lett. **121**, 124801 (2018).
- 17) H. Okazaki *et al.*: Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 837 (2020).
- 18) T. Sakai *et al.*: Condens. Matter **5**, 34 (2020).
- 19) G. Geloni *et al.*: DESY 08-118.
- 20) B. Green *et al.*: Scientific Reports **6**, 22256 (2016).
- 21) T. Sakai *et al.*: LINAC2018, 78 (2018).
- 22) N. Sei *et al.*: LINAC2018, 154 (2018).
- 23) T. Sakai *et al.*: Proceedings of the 16th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 465 (2019).
- 24) N. Sei *et al.*: Sci. Rep. **11**, 3433 (2021).
- 25) T. Kawasaki *et al.*: Biomedical Optics Express **11**, 5341 (2020).
- 26) Y. Hayakawa *et al.*: Journal of Physics: Conference Series **732**, 012013 (2016).
- 27) N. Sei *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **56**, 032401 (2017).
- 28) The HITRAN Database, <https://hitran.org/>
- 29) T. Sakai *et al.*: Proceedings of the 17th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 629 (2020).

- 30) N. Sei *et al.*: Physics Letters A **379**, 2399 (2015).  
 31) N. Sei *et al.*: Sci. Rep **7**, 17440 (2017).  
 32) T. Sakae *et al.*: Proceedings of FEL2012, 563 (2012).  
 33) S. Kurumi *et al.*: Proceedings of FEL2012, 559 (2012).  
 34) H. Yamamoto *et al.*: Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. 20th Anniversary Special Issue **35** (2012).  
 35) T. Kawasaki *et al.*: Energy Fuels **34**, 9064 (2020).  
 36) F. Shishikura *et al.*: Proceedings of FEL2015, 550 (2015).  
 37) F. Shishikura *et al.*: Journal of the Japan Society of Infrared Science and Technology **29**, 51 (2019).  
 38) K. Ajito *et al.*: Mol. Cryst. Liq. Cryst. **538**, 33 (2011).

## 著者紹介



### 境 武志

日本大学量子科学研究所 准教授

E-mail: sakai@lebra.nihon-u.ac.jp

専門：加速器科学，ビーム物理学，量子ビーム科学

#### 【略歴】

2004年，日本大学大学院理工学研究科博士後期課程量子理工学専攻修了，博士（理学）。2005年，日本大学大学院総合科学研究科，助手。2009年，高エネルギー加速器研究機構加速器研究施設，研究員。2011年，株式会社アキュセラ。2012年，日本大学量子科学研究所，助手，同助教を経て，2020年4月より現職。

# Development and application of electron linac at LEBRA in Nihon University

**Takeshi SAKAI** Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Nihon University, Narashinodai 7-24-1, Funabashi 274-8501, Japan

**Abstract** Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA) in Nihon University, carries out for developed two unique light sources, the Free Electron Laser (FEL) and the Parametric X-ray Radiation (PXR), based on the 125-MeV electron linac with the aid of KEK and "Academic Frontier Project", a matching fund subsidy granted by specifically the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT). LEBRA has been operated as a joint research facility since 2004, with an annual operation time of about 1700 hours and an average of about 170 operations per year including experiments using each light source and accelerator maintenance. The wavelength range of the available FELs is 400 nm to 6.7  $\mu\text{m}$ , and the intensity of the FELs has been 0.1 to 60 mJ per macro pulse in full bunch mode and 0.1 to 17 mJ in burst mode. Also, since 2013, as a collaboration between LEBRA and AIST, LEBRA has conducted research and development of a new light source for terahertz (THz) coherent synchrotron radiation (CSR), coherent edge radiation (CER) and Coherent transition radiation (CTR). The LEBRA-THz source has the highest intensity as a broadband accelerator THz source in Japan. Applied research on THz such as THz-TDS has been carried out, and the vibrational fingerprint region measurement of pharmaceuticals is under verification. In addition, the THz beamline is unique in that it has a combined beamline where FEL and THz or PXR and THz can be used simultaneously. In this beamline, we have realized the world's first simultaneous measurement of infrared FEL and THz-CER. In the future, we expect to conduct applied research using both of these light sources.