

日大 LEBRA-PXR ビームラインの現状と今後の計画 CURRENT STATUS AND FUTURE PLANS OF LEBRA-PXR BEAMLINE AT NIHON UNIVERSITY

早川恭史 ^{*,A)}, 早川建 ^{A)}, 胡桃聡 ^{B)}, 野上杏子 ^{A)}, 境武志 ^{A)}, 清紀弘 ^{C)}, 住友洋介 ^{B)},
高橋由美子 ^{A)}, 田中俊成 ^{A)}, 王智豪 ^{B)}

Yasushi Hayakawa ^{*,A)}, Ken Hayakawa ^{A)}, Satoshi Kurumi ^{B)}, Kyoko Nogami ^{A)}, Takeshi Sakai ^{A)}, Norihiro Sei ^{C)},
Yosuke Sumitomo ^{B)}, Yumiko Takahashi ^{A)}, Toshinari Tanaka ^{A)}, Zhihao Wang ^{B)}

^{A)} Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA), Institute of Quantum Science, Nihon University

^{B)} College of Science and Technology (CST), Nihon University

^{C)} National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

Abstract

The Laboratory for Electron Beam Research and Application (LEBRA) at Nihon University has two beamlines connected downstream of a 125-MeV electron linac. The first beamline has been used for a near-infrared free electron laser (FEL) and the second one was built for a novel X-ray source based on parametric X-ray radiation (PXR). The PXR beamline has provided monochromatic X-rays with tunability and good spatial-coherence for users studies, and various applications, especially advanced X-ray imaging, have been performed since the first-light of the PXR source in 2005. In addition to the X-ray source, the PXR beamline has been used for the development THz-wave light sources. The THz-wave sources, which are based on coherent edge-radiation (CER) or coherent transition radiation (CTR), can deliver intense THz-wave pulses of approximately 1 mJ macropulse power. The study on coherent Čerenkov radiation (CCR) is in progress to improve the radiation power of the THz-wave source. For our next project on the PXR source, we have started the theoretical research on SiC crystals as PXR radiators. Since the conventional PXR radiators of Si crystals have issues of the destruction due to electron-beam irradiation, SiC crystals are one of the promising candidates with high heat-resistance.

1. はじめに

日本大学電子線利用研究施設 (LEBRA: Laboratory for Electron Beam Research and Application) では、125 MeV 電子リニアックの下流に 2 本のビームラインが設置されており、3 種類の光源が運用され、ユーザー利用実験に光ビームを供給している [1]。最初に設置されたのは自由電子レーザー (FEL: free electron laser) 用のビームラインであり、現在に至るまで主に近赤外領域の FEL を利用実験に供給するのに使われている。もう一つのビームラインは、私立大学の拠点形成事業である学術フロンティア推進事業により、パラメトリック X 線放射 (PXR: parametric X-ray radiation) を原理とする X 線源を開発するために建造された。PXR 線源は 2004 年より利用研究に対する単色 X 線ビームの供給を行っており、先端的な X 線イメージングなどに応用されている [2-4]。PXR ビームラインが比較的自由度が高い構造となっていることから、X 線源に加えコヒーレント放射による THz 光源の開発も 2015 年から進めており、利用研究への提供も 2017 年に開始している [5]。

PXR ビームラインは電子リニアックの下流に、45° 偏向電磁石 2 台から成る 90° 偏向部を介し、FEL ビームラインに平行に設置されている。PXR ビームラインにおける電子ビームの特性を Table 1 に示すが、電子ビームエネルギーは FEL ビームラインと同様に調整可能ではあるものの、このビームラインの光源である PXR とコヒーレント THz 光源には低いエネルギーの電子ビ

Table 1: Specifications of the LEBRA-PXR Beamline

Acceleration frequency	2856 MHz
Electron energy	100 MeV
Macropulse duration	$\leq 5 \mu\text{s}$
Macropulse current	$\sim 100 \text{ mA}$
Repetition rate	5 pps
Average beam current	$\leq 5 \mu\text{A}$
Normalized emittance	$< 20 \pi \text{ mm mrad}$

ームを用いる利点が無いこともあり、放射線施設として使用許可申請した上限である 100 MeV で運用することが基本となっている。また、後述する PXR 放射源である結晶の損傷を避けるためにマクロパルス幅 5 μs 以下で運転し、ビーム電流は平均電流 5 μA が PXR ビームラインの使用許可の上限であるため、繰り返し 5 pps に制限している。

2. PXR ビームラインの構成

PXR ビームラインの構成を Fig. 1 に示す。90° 偏向後に大型の真空槽が設置されており、その中に PXR 線源の主要部である 2 結晶システムが収められている。元々は偏向後にはステアリングコイルは設置されていなかったが、THz 光源開発の必要性から、大型真空槽の直前にステアリングコイルが最近になって追加されている。

2 結晶型 PXR 線源の第 1 結晶は電子ビームの照射を受けるターゲット結晶となっており、PXR の放射源の

* hayakawa.yasushi@nihon-u.ac.jp

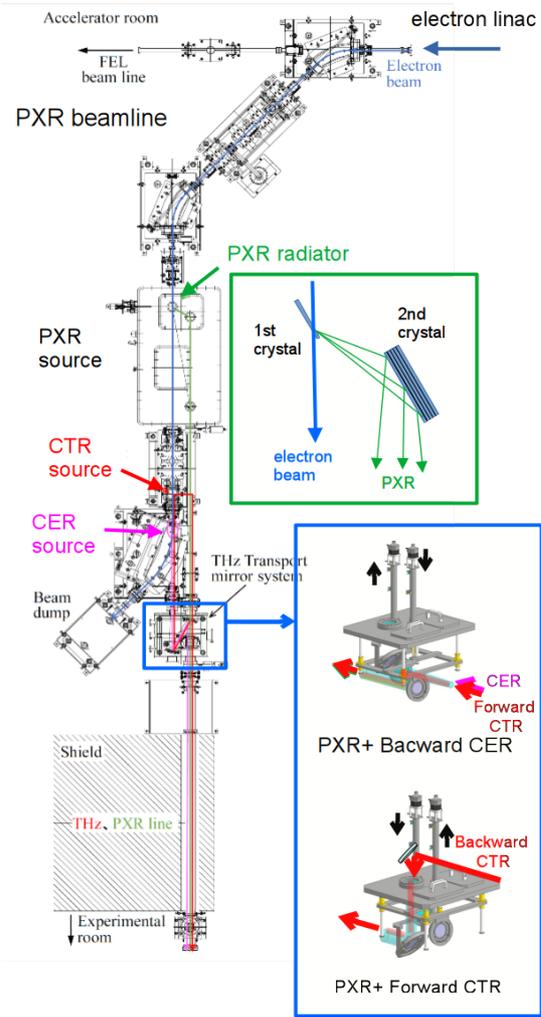


Figure 1: Layout of the PXR beamline and the schematic explanation for the PXR source and the extraction system of THz-waves.

役割となる。第2結晶には第1結晶と同じ結晶面が用いられ、回折によってターゲット結晶からのPXRビームを反射し、輸送する役割を担う。この2結晶システムからのX線ビームは、厚さ2mの放射線遮蔽壁を貫通する真空ダクトを通して人が常時立ち入り可能な実験室で取り出される。PXR線源の真空槽下流に、元々は電子ビームプロファイルモニター用の蛍光板を挿入するための機構が用意されていた。PXR線源の運用がある程度確立した後は、余分な放射線の発生要因となることもあり、プロファイルモニターを使う機会がほぼ無くなっていった。そこで蛍光板の代わりに金属薄膜ターゲットを取り付け、THz領域のコヒーレント遷移放射(CTR: coherent transition radiation)の発生に用いることにした。その下流にはビームダンプに電子ビームを導く45°偏向電磁石があり、その入口の磁場境界がTHz領域のコヒーレントエッジ放射(CER: coherent edge-radiation)の発生源となる[6]。

最後の偏向電磁石の下流には角型の真空槽設置されているが、様々な放射線照射実験が行われることを想

Table 2: Specifications of the LEBRA-PXR Source

Electron energy	100 MeV
Bragg angle	30 – 5.5°
X-ray energy range:	
Si(111) target	4.0 – 20 keV
Si(220) target	6.5 – 33.5 keV
Si(400) target	9.1 – 47.4 keV
X-ray photon yield	~ 10 ⁷ /s @ 17.5 keV

定してビームライン建造時から汎用の真空槽として用意されていたものである。ここにTHz光取り出しのための光学系を設置することにしたが、真空槽本体の交換や改修はコスト面や放射化の問題で困難と判断し、天板のみを新規製作し、Fig. 1にあるようにTHz光反射鏡の出し入れを行うモーター駆動機構を取り付けた。光源から前方に放射されるCERとCTRに対してはこの真空槽内で2枚の鏡を使ってPXR輸送ラインに重畳して実験室に取り出すことが可能である。薄膜ターゲットからの後方CTRについては、一旦大気中に取り出す必要はあるが、別の鏡を用いて真空へ再導入する形で輸送が可能である。いずれにせよ、実験室ではPXR出力窓であるポリエチレン薄膜窓からTHz光を取り出し、利用実験に用いることが可能となっている。

2.1 PXR線源とその応用の現状

PXRは周期構造を持つ結晶中を相対論的電子が通過する際に生じるX線領域の放射現象であり、そのエネルギー $\hbar\omega$ は、放射源となる結晶の逆格子ベクトルを \mathbf{g} 、入射電子のエネルギーと運動量、速度をそれぞれ $E, \mathbf{p}, \mathbf{v}$ とすると、

$$\hbar\omega \approx \hbar \left(\frac{\omega}{c} \Omega - \mathbf{g} \right) \cdot \frac{\mathbf{p}c^2}{E} = \frac{\hbar c |\mathbf{g} \cdot \mathbf{v}|}{c - \mathbf{v} \cdot \Omega}, \quad (1)$$

に従う。十分に相対論的な電子では、放射されるX線のエネルギーは結晶の面間隔および結晶面と電子速度の成す角(Bragg角)で決まり、電子エネルギーにほとんど依存しない[7]。従って、放射源となる結晶の選択が重要となるが、欠陥が殆ど無い高品質の結晶の入手性や望ましくないバックグラウンド放射線の増大を考慮し、Si単結晶をPXR放射源として採用している。Table 2はPXR線源の2結晶システムがカバーしているBragg角の範囲と、使用する結晶面毎の発生可能なエネルギー範囲を示している。発生するPXRのエネルギー自体は電子エネルギーに依らないが、放射の指向性は電子エネルギーが高いほど高くなり、結果として第2結晶での輸送効率に影響する。そのため、最大エネルギー100 MeVで通常は運用している。

PXR線源運用当初は、光子収量が他の面と比較して多いSi(111)面を線源として用いていた。その応用として、主にX線イメージング技術に関係する応用がなされてきた。フラットパネル検出器(FPD: flat-panel detector)の導入などもあり、単色X線コンピュータ断層撮像(CT: computed tomography)や水平方向のエネルギー分散を利用した分散型X線吸収端微細構造(XAFS:

X-ray absorption fine structure) 測定などの応用が可能であることが実証されてきた [8–10]。特に回折強調イメージング (DEI: diffraction-enhanced imaging) という、主に第 3 世代シンクロトロン放射光源で行われているイメージング手法を PXR を用いて可能にしたのは大きな成果といえる。DEI は完全性の高い単結晶による回折を利用して X 線が試料物質を通過する際に受ける屈折や散乱を検知して画像化する手法であり、画像の画素毎に X 線の回折曲線を測定することに相当する。PXR 線源に用いられているのと同じ結晶面を DEI の回折用結晶に用いることで、円錐状の広がりを持つ PXR ビームでありながら平面波的な回折が可能となり、単結晶の回折幅である 0.001° オーダーの屈折や散乱が測定できる。DEI により X 線の屈折や散乱に基づくコントラストの像が実際に得られていることは、PXR 線源が優れた空間コヒーレンスを持つ線源であることを実証している。発生する PXR の空間コヒーレンスを向上させるため、放射源であるターゲット結晶の端を楔状に加工するなどの工夫を行っている [11]。

Si(111) 面の利用は X 線量については有利であるものの、X 線エネルギーが最大 20 keV に制限されることから、34 keV 付近まで発生可能な Si(220) 面を PXR 放射源として用いることが多くなった [12]。X 線の透過力が高まるのに加え、DEI に用いる結晶の回折幅も狭くなり、屈折や散乱の測定における角度分解能も向上するため、長時間の測定で低い X 線取量を補いながら、高精度の実験を実施する機会が多くなった。2014 年から 2022 年まで、Si(111) 面に戻すこと無く Si(220) 面の利用が続いた。

2020 年に利用研究者が NEDO プロジェクトに採択されたことを受け、重元素を含んだセラミックタイプの燃料電池の測定に PXR を応用することに取り組むこととなった [13]。この様な試料を測定するには 40 keV 以上の X 線が必要と考えられたため、検討の結果、Si(400) 面を採用し、2022 年に PXR 線源に導入した。X 線光子取量は Si(111) 面に比べて 2 桁程度低下するが、発生可能なエネルギー範囲が 47 keV まで拡大したことにより、通常の透過撮像に加え、燃料電池に含まれる Ce 元素の K 殻吸収端 (40.4 keV) を利用した元素イメージングも可能となった [14]。NEDO プロジェクトは 2024 年度に終了し一定の成果は得られたが、DEI 用の Si(400) 結晶が用意されておらず、先端的なイメージング実験ができない状況であることから、2025 年内に Si(111) または Si(220) 面に戻し、DEI などの応用を再開する予定である。

2.2 THz 光源開発の状況

PXR ビームラインにおける THz 光源の特徴として、輸送光路がシンプルで効率良く取り出すことができるため、波動としてのサイクル数が少ない短パルス THz 光としては強いマクロパルス強度が得られることが挙げられる。Ti 薄膜などのターゲットから得られる CTR の場合は、PXR 出力窓を介して実験室に取り出される強度はマクロパルス当り 1 mJ 程度になり、CER の場合は CTR より強度はやや低下するものの、マクロパルスの繰り返しを考慮すると、1 mW 級の出力が得られている [15]。強度の面では吸収分光測定に十分であること

から、実験室に乾燥空気雰囲気中で測定可能な干渉計を構築し、フーリエ分光による吸収スペクトル測定が可能となっている。市販薬剤のスペクトルの比較などの利用研究が実施されている。

THz 光源の高度化としては、更なる高強度化を目的に、コヒーレントチェレンコフ放射 (CCR: coherent Čerenkov radiation) による光源開発研究が進行中である [16]。CTR の薄膜ターゲットの代わりに水晶のような誘電体物質でできた中空円錐ターゲットを光源として用いるが、ターゲットの挿入に用いていた従来の機構は圧空式であったため位置再現性が悪く問題となっていた。そこでモーター駆動の機構のものを新たに製作し、交換している。前述のステアリングコイル追加は、CCR ターゲットを電子ビームが通るように調整しやすくするためである。CCR 光源開発に加え、螺旋状ターゲットからの CTR を利用した THz 領域の光渦生成についても基礎研究として実施中である。

3. PXR ターゲット結晶の損傷

PXR 線源の運用を開始した当初、電子ビーム照射によって PXR 放射源であるターゲット結晶が損傷する問題に悩まされていたが、2010 年頃から電子ビームマクロパルス幅を $5 \mu\text{s}$ 以下に制限して運転するようになり、それ以降ターゲット結晶の損傷は長らく生じていなかった。しかしながら、問題なく 7 年間使用していた Si(220) 面のターゲット結晶の損傷が 2021 年に発生した。ターゲット結晶に電子ビームが当たると PXR の他に光学領域の遷移放射 (OTR: optical transition radiation) も発生するため、その前方放射を望遠鏡でモニターしており、Fig. 2 の左図がそのビデオ映像をキャプチャーした画像である。波面の乱れのない X 線を得るためにターゲット結晶の端の楔面に電子を照射しているが、X 線の線量が急激に低下し、OTR の発光も弱くなったことから真空を破って確認したところ、Fig. 2 の右図の写真のように、電子が当たったところが欠けていた。この損傷が生じる少し前に、加速器入射部の集束コイルの構成を修正したこともあり、電子ビームのエミッタンスが改善され、ターゲット上で非常に小さいビーム径での集束が実現していた可能性がある。

Si 結晶を通過する際に生じる電子ビームの電離損失を熱源とし、有限要素法でマクロパルス内での温度上昇を計算した結果を Fig. 3 に示す [17]。電離損失は

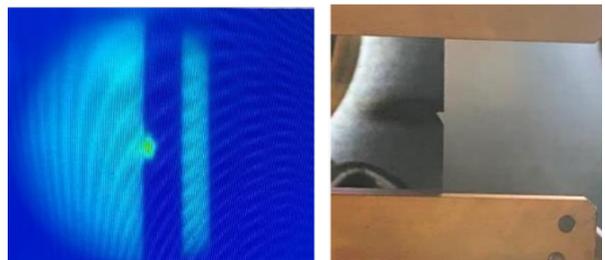


Figure 2: left) The typical video capture image of the OTR monitor for the PXR radiator crystal irradiated with the electron beam; right) The photograph of the target crystal with a damaged edge.

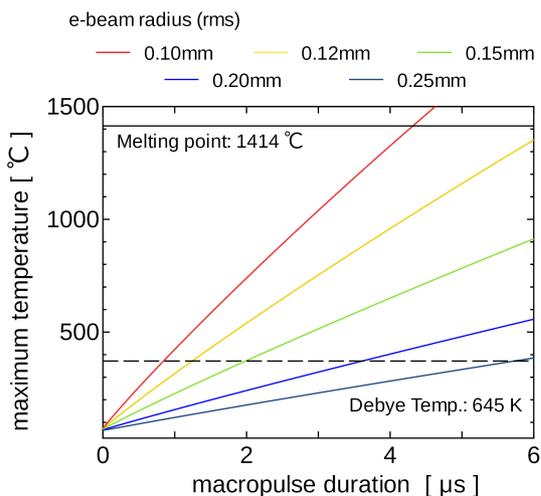


Figure 3: The thermal calculations of the target crystal during the macropulse irradiation depending on the electron beam size at the target.

Bethe-Bloch の式での評価であるため過大評価気味ではあるが、電子ビームが rms 半径 0.1 mm 付近となると 5 μ s 以内に Si の融点に達するリスクが高いことが分かる。対処療法的に、損傷した結晶を上によらずしてホルダーに固定し、損傷のない健全な箇所へ電子ビームが当たるようにしたが、調整時にマクロパルス幅を 1 μ s – 2 μ s まで狭め、OTR モニターを確認しながら集束の調整をすることが必要となった。

4. PXR 放射源としての SiC 結晶の検討

電子ビームサイズを小さくできることは、X 線源としては性能向上の面では望ましいが、放射源である結晶の損傷が避けがたい。Si 結晶は比較的融点が高く、高品質な単結晶が入手しやすいことから PXR 線源運用当初から用いてきたが、線源サイズを縮小するためにはマクロパルス幅を短くし、結果的にビーム電流を減らす必要がある。Si 結晶では現状の X 線収量を維持したまま性能向上を図ることが難しく、放射源となり得る新たな結晶を模索する必要がある。

電子ビームがターゲット結晶を通過した後、ビーム

発散の増大によってビームロスが増加し、バックグラウンド放射線の原因になることを考慮すると、軽元素物質の結晶が望ましい。その意味ではダイヤモンド結晶が候補となるが、LEBRA-PXR 線源で輸送に用いる第 2 結晶には大面積が必要となる。現在は第 2 結晶に 37 mm \times 120 mm の面積の Si 結晶を用いており、それと同等のものをダイヤモンド単結晶で用意するのは未だ困難である。近年、パワー半導体など分野で SiC 結晶の品質が向上していることから、SiC 結晶も PXR 線源として有力な候補となる。

SiC 結晶は軽元素からなるという点を満たしているが、温度特性についても高温で融解せず昇華し、その昇華温度は 2000 $^{\circ}$ C 以上とされており、Si 結晶より有望と言える [18]。従って、SiC 結晶が次世代の PXR 放射源の有力候補となるが、SiC 結晶には結晶系が数種類あることから、まずは Si 結晶のダイヤモンド構造と類似した閃亜鉛鉱型構造を持つ 3C-SiC を候補として、PXR の理論計算に基づく検討を行っている。Table 3 は Bragg 角が 15 $^{\circ}$ の場合について、ミラー指数で表される結晶面毎に得られる PXR のエネルギーと収量の理論計算結果を、Si 結晶と 3C-SiC 結晶で比較したものである。ここで、収量は結晶厚 1 mm における 1 電子に対する X 線光子数であり、PXR 線源を構成する 2 結晶システムにおける第 2 結晶の回折を含めたものであるが、電子ビームはエミッタンスがゼロに相当する理想なもので、第 1 結晶内での電子ビーム発散増大と X 線吸収の効果は入っていない [19]。

3C-SiC 結晶は格子定数が Si 結晶より小さいため、同じ結晶面で得られる X 線エネルギーは高くなる。また、閃亜鉛鉱型構造はダイヤモンド構造と類似してはいるが異種元素で構成されるため、Si 結晶では散乱波が打ち消し合って禁制となる (200) 面や (222) 面も X 線が発生する、といった違いが見られる。しかしながら、全体的な傾向としては Si 結晶よりも高エネルギーの X 線が得やすく、X 線収量の面でも遜色がないという結果が得られたことから、熱的な特性と合わせ、非常に希望の持てる計算結果が得られた。

今後試験的に SiC 結晶を 2 結晶型 PXR 線源に導入し、実験的に適正を評価する予定であるが、3C-SiC 結晶は高価で入手しにくいことから、入手しやすい 4H-SiC 等の他の結晶構造で試験することも検討しており、そ

Table 3: The Theoretical Comparison of the PXR Properties from Si or 3C-SiC Double-crystal Systems at the Bragg Angle 15 $^{\circ}$

Crystal plane (<i>hkl</i>)	Si crystal		3C-SiC crystal	
	Energy [keV]	Yield	Energy [keV]	Yield
(200)	–	forbidden	10.9	1.7×10^{-6}
(400)	17.6	4.0×10^{-7}	21.9	1.7×10^{-7}
(220)	12.4	3.1×10^{-6}	15.5	1.6×10^{-6}
(440)	24.9	4.0×10^{-8}	31.0	1.4×10^{-8}
(111)	7.6	1.7×10^{-5}	9.5	1.5×10^{-5}
(222)	–	forbidden	19.0	9.1×10^{-8}
(333)	22.8	2.6×10^{-8}	28.5	1.5×10^{-8}
(311)	14.6	4.5×10^{-7}	18.1	3.3×10^{-7}

れを用いた場合の理論計算にも着手している。実験的には熱的な耐性だけでなく、応力歪などへの耐性といった機械的な強度についても検証する必要がある。

5. まとめ

日大 LEBRA-PXR ビームラインは、PXR による X 線源および CTR や CER による THz 光源が開発され、利用実験のために運用されている。PXR 線源では高度な X 線イメージングが応用として実施されており、最近の成果として、Si(400) 結晶を線源として 40 keV 以上の X 線ビームを供給可能となった。THz 光源も既に分光測定などに応用されており、更なる高度化として、CCR 光源の開発などが進行中である。

PXR 線源においては、電子ビーム照射による結晶の損傷が問題となっているが、SiC 結晶の耐熱性の高さに着目し、PXR 放射源への採用を検討している。理論計算の結果としては、非常に有望なものが得られている。

謝辞

PXR 線源の高度化については科研費 (25286087, 16K05008) および国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業務 (JPNP20003) の補助を受けている。THz 光源の開発と高度化は主に科研費 (19H04406, 21K12539) の補助を受けて実施されている。

参考文献

- [1] 日本大学電子線利用研究施設, <http://www.lebra.nihon-u.ac.jp/>
- [2] 早川恭史, 加速器 6 (2009) 166. doi:10.50868/pasj.6.2_166
- [3] Y. Hayakawa *et al.*, J. of Instrumentation 8 (2013) C08001. doi:10.1088/1748-0221/8/08/C08001
- [4] Y. Takahashi *et al.*, X-Ray Spectrom. 41 (2012) 210. doi:10.1002/xrs.2403
- [5] 境武志, 放射光 34 (2021) 153. <http://www.jssrr.jp/journal/pdf/34/p153.pdf>
- [6] 境武志, 早川恭史, 住友洋介, 清紀弘, “日本大学電子線利用研究施設におけるコヒーレントエッジ放射の光源開発”, 日本赤外線学会誌 31 (2022) 76.
- [7] H. Nitta, Phys. Lett. A 158 (1991) 270. doi:10.1016/0375-9601(91)91013-4
- [8] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. B 252 (2006) 102. doi:10.1016/j.nimb.2006.07.010
- [9] Y. Hayakawa *et al.*, Phys. Rev. Accel. Beams 22 (2019) 024701. doi:10.1103/PhysRevAccelBeams.22.024701
- [10] 早川恭史, 高橋由美子, 放射光 33 (2020) 87. <http://www.jssrr.jp/journal/pdf/33/p087.pdf>
- [11] Y. Hayakawa *et al.*, “楔型ターゲット結晶による PXR 線源の性能改善”, Proceedings of the 7th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan (August 4-6, 2010, Himeji, Japan), pp. 788. https://www.pasj.jp/web_publish/pasj7/proceedings/P_5PM/P_EH_5PM/THPS009.pdf
- [12] Y. Hayakawa *et al.*, “Si(220) ターゲットによるパラメトリック X 線源の高エネルギー化”, Proceedings of Particle Accelerator Society Meeting 2009, JAEA, Tokai, Naka-gun, Ibaraki, Japan, pp. 748. https://www.pasj.jp/web_publish/pasj6/papers/toapa01.pdf
- [13] Y. Hayakawa *et al.*, “日大 LEBRA-PXR 線源による 40 keV 単色 X 線の生成とその特性”, Proceedings of the 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, October 18-21, 2022, Online (Kyushu University), pp. 583. https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2022/proceedings/PDF/WEP0/WEP026.pdf
- [14] Y. Hayakawa *et al.*, Nucl. Instrum. and Meth. A 1073 (2025) 170250. doi:10.1016/j.nima.2025.170250
- [15] N. Sei *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 56 (2017) 032401. doi:10.7567/JJAP.56.032401
- [16] T. Sakai *et al.*, “日本大学 LEBRA 電子線形加速器を用いた高強度テラヘルツ光源の研究開発”, Proceedings of the 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, October 18-21, 2022, Online (Kyushu University), pp. 313. https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2022/proceedings/PDF/TUP0/TUP013.pdf
- [17] FreeFEM-cs an integrated environment for FreeFEM, <https://www.ljll.fr/lehyaric/ffcs/>
- [18] 化学物質 DB/Webkis-Plus, <https://www.nies.go.jp/kisplus/dtl/chem/SZY00727>
- [19] Y. Hayakawa, I. Sato, K. Hayakawa, T. Tanaka, Nucl. Instrum. and Meth. B 227 (2005) 32. doi:10.1016/j.nimb.2004.06.028