

利用拡大を目指した RF 電子銃ライナックのアップグレード

UPGRADE OF RF GUN BASED LINEAR ACCELERATORS AT OSAKA UNIVERSITY

楊金峰^{#,A)}, 菅晃一^{A)}, 近藤孝文^{A)}, 神戸正雄^{A)}, 吉田陽一^{A)}, 高富俊和^{B)}, 浦川順治^{B)}
Jinfeng Yang^{#,A)}, Koichi Kan^{A)}, Takafumi Kondoh^{A)}, Masao Gohdo^{A)}, Yoichi Yoshida^{A)}, Toshikazu Takatomi^{B)},
Jyunji Urakawa^{B)}

^{A)} The Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR), Osaka University

^{B)} High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

The RF gun based accelerator facilities at ISIR have been upgraded and renewed for the study of fundamental dynamic processes in matter occurring on femtosecond time scales over sub-nanometer (even atomic) spatial dimensions. One of the accelerators is the RF gun based linac with beam energy of 32 MeV. It is used to generate femtosecond/attosecond electron bunches and develop ultrafast pulse radiolysis with time resolution of femtosecond or attosecond. A prototype of time-resolved relativistic-energy electron microscopy has been constructed at the first time in the world using the RF gun. A new RF gun with the highest repetition rate of 1kHz is being developed under the collaboration with KEK. An RF gun test facility has been constructed to study the beam dynamics in the RF gun and to open new applications.

1. はじめに

フェムト秒時間領域での分子や原子集団の動力学研究とその高速反応機構の本質的な理解は、物理・化学・生物学などの多くの分野が関係する重要な研究課題であり、ナノ材料、高効率触媒や生体機能材料の設計・創製、新たな反応経路の設計などの応用科学分野においても極めて重要である。物質内の高速物理化学反応の詳細は、主として、フェムト秒超短パルスレーザーを利用し、可視・紫外・赤外領域における光学スペクトルの解析を通じて得られてきた。しかし最近では、荷電粒子性という見地から、加速器から生成したエネルギー数 MeV ないし数十 MeV のフェムト秒短パルス電子ビームが、レーザーと異なる短パルスビームとして注目され、物質内超高速反応現象の解明・構造変化の追跡などのさまざまな先端的な研究に欠かせない道具となっている。

短パルス電子ビームによる研究のひとつの典型的な対象は、電子線励起時間分解吸収分光法 (Pulse radiolysis、パルスラジオリシス法) による分子系における放射線化学初期過程の研究である。パルスラジオリシスは、量子ビーム誘起高速反応現象を直接的に時間分解測定する手法であり、これまでミリ秒からピコ秒までの幅広い時間領域における放射線化学反応過程の解明に大きく貢献してきた。最近では、フェムト秒短パルス電子ビームを利用したフェムト秒パルスラジオリシスの進展[1-3]によって放射線化学反応過程の全貌の解明が大きく進展し、ナノテクノロジーにおける極限ナノファブリケーションプロセスの発見やガン治療の新しい医療応用への展望が切り拓かれつつある。

もうひとつの短パルス電子ビームを用いた研究対象は、超高速時間分解電子回折や電子顕微鏡法

[#] yang@sanken.osaka-u.ac.jp

(Ultrafast Electron Diffraction/Microscopy, UED/UEM) である[4,5]。電子線は X 線に比べて大きな弾性散乱断面積を持つため、回折効果の検出効率の大幅な向上と非弾性散乱による照射効果の低減が可能であり、UED/UEM 法は構造変化ダイナミクスの知見を直接的に獲得する有力な実験手法として大きく発展した。最近の UED 研究では、フェムト秒短パルス電子ビームを利用したフェムト秒時間領域での光励起による種々の構造変化過程 (構造相転移、表面・界面を含む固体中の励起による局所的な原子構造変化など) に関する詳細な知見が獲得されつつある。

我々は、レーザーフォトカソード高周波 (RF) 電子銃を活用し、RF 電子銃から直接的にフェムト秒電子ビームの発生または RF 電子銃と線形加速器・磁気パルス圧縮装置から構成された RF 電子銃ライナックを用いてフェムト秒・アト秒短パルス電子ビームの発生を行い、パルスラジオリシス法と時間分解電子顕微鏡法を通じて、フェムト秒・アト秒時間領域での量子ビーム誘起物理・化学反応現象や構造変化ダイナミクスの研究を推進している。高品質・短パルス電子ビームの発生や利用の拡大を目指して、2014 年 1 月に現在の RF 電子銃ライナックと時間分解電子顕微鏡をシャットダウンし、独立した実験室に移設すると共にアップグレードを行った。さらに、測定時間を短縮し、測定精度を高めるために、世界に先駆けて繰返し 1kHz の常伝導フォトカソード RF 電子銃の開発をスタートした。本年会では、RF 電子銃ライナックの移設、アップグレード、1kHz の高繰返し RF 電子銃の設計・製作について報告する。

2. 阪大産研 RF 電子銃加速器

阪大産研では、2003 年に建設された S バンドフォトカソード RF 電子銃ライナックのほかに、2008 年

に製作したフェムト秒時間分解電子回折装置、ごく最近完成した RF 電子銃を用いた時間分解電子顕微鏡実証機と現在開発中の 1kHz 高繰返常伝導 RF 電子銃テストベンチと合計 4 台の RF 電子銃加速器装置がある。各装置は、企業の市販品ではなく、関連研究者の経験と知恵・努力を結集して独自に開発を続け、完成させたものである。2014 年 3 月に、フェムト秒時間分解電子回折装置を除いて、全ての装置を独立した実験室に移設し、アップグレードを行った。図 1 に移設後の加速器のレイアウトと写真を示す。以下、各装置の特徴と性能について紹介する。

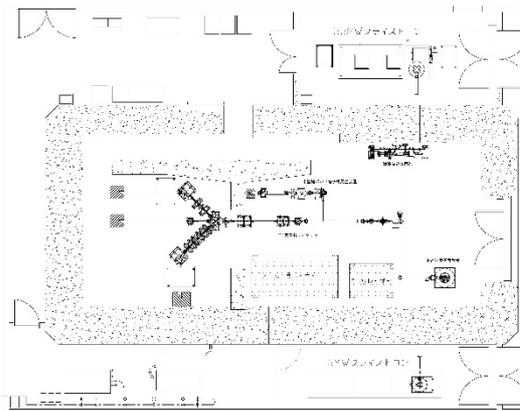


Figure 1: Layout and photo of S-band RF gun based accelerator facilities at ISIR, Osaka University.

2.1 S バンドフォトカソード RF 電子銃ライナック

本ライナックは、フェムト秒短パルス電子ビームの発生と量子ビーム誘起超高速反応現象の解明のために、2003 年に建設された加速器[6]であり、S バンドフォトカソード RF 電子銃、加速管と磁気パルス圧縮装置から構成されている。RF 電子銃は BNL の GUN-IV のタイプであり、カソードには無酸素銅を用いている。電子ビームの発生には、全固体 Nd:YLF ピコ秒レーザーの 4 倍波を使用した。RF 電子銃から発生したピコ秒電子線パルスは、下流に取付けられた加速管により最大エネルギー 32MeV まで加速され、加速位相の調整によりパルス圧縮の最適なエネルギー・位相空間分布を作り出す。輸送中の空間電荷効果によるエミッタンス増大は、RF 電子銃の出口に取付けられたソレノイド電磁石により補正される。磁気パルス圧縮装置は、45° の偏向電磁

石 2 台と四極電磁石 4 台から構成される。本磁気パルス圧縮器における R_{56} の値は、エネルギーが 32MeV の電子ビームに対して 62.6mm であった。磁気パルス圧縮における 2 次と 3 次効果の係数 (T_{566} と U_{5666}) は四極電磁石の磁場強度に依存する。フェムト秒電子線パルスを得るためには、磁場の非線形効果の影響、パルス圧縮中エミッタンスによるパルス幅の増大が低減する必要がある。そこで、我々は、まず加速管における非線形エネルギー変調を活用し、磁気パルス圧縮の 2 次効果の影響を最小限に抑えた。次に、四極電磁石の磁場強度を精密に制御し、磁気パルス圧縮の対称面 (mid-plane) に電子が垂直に入射するようなエンベロープマッチング条件を探し出し、パルス圧縮中エミッタンスによるパルス幅の増大を低減した。その結果、2006 年に最短 98 フェムト秒の電子線パルスの発生に成功した[7,8]。そのときのパルス電荷量は 0.2nC であった。発生したフェムト秒電子線パルスを用いて、2009 年に世界最高記録の 240 フェムト秒時間分解能を持つパルスラジオリシスの開発に成功した[2,3]。これにより、フェムト秒時間領域での放射線化学初期過程・反応プロセスの研究が初めて可能となった。その後、更に短い電子線パルスの発生を目指して、以下の 3 つの改良を行った。

- i. まず、六極電磁石を製作し、2 次効果が補正できる磁気パルス圧縮器を開発した。
- ii. 次に、圧縮後のパルス幅は、縦方向エミッタンス (Longitudinal emittance) に依存している。我々は、RF 電子銃を直接的にフェムト秒 Ti:Sapphire レーザーの 3 倍波 (266nm) を駆動させ、縦方向エミッタンスが低いフェムト秒短パルス電子ビームを発生し、加速管によりエネルギー変調の後、磁気パルス圧縮器でフェムト秒電子線パルスの生成を試みた。圧縮前の電子線パルス幅が短くなると、パルス圧縮に必要なエネルギー分散幅が狭くなるため、磁気パルス圧縮における 2 次や 3 次などの高次効果によるパルス幅の増大 (エネルギー分散幅の 2 乗と 3 乗に比例する) が低減でき、より短パルス電子ビームの発生が可能となった。
- iii. 最後に、極短パルス電子ビームを得るためには、 T_{566} と U_{5666} 以外の高次効果を低減する必要がある。特に $T_{511} \sim T_{565}$ の効果である。これらの効果は、電子ビームのサイズや発散角、すなわち横方向エミッタンス (Transverse emittance) に大きく依存する。詳細については、参考文献 8 を参考にさせていただきたい。そこで、我々はカソードに照射するレーザーのスポット径を小さくして初期の熱エミッタンスを低減させた。

これにより、横方向に 0.1mm-mrad の極低エミッタンス電子ビームの発生に成功し、改良した磁気パルス圧縮器を用いて最短 8.9 フェムト秒の短パルス電子ビームの発生に成功した。この時のパルス電荷

量は 2.1pC であった。パルス幅の測定には、新たに開発した THz 光干渉法 (Terahertz autocorrelation method) を用いた。THz 光干渉法によるパルス幅測定の詳細について、本大会の SAOM02 発表を参考にさせていただきたい。

上記で述べたように、我々が開発したフォトカソード RF 電子銃ライナックは、低エミッタンスかつ短パルスの電子ビームが発生可能のため、パルスラジオリシスなどの応用分野において、世界最高性能を有している。これからのビーム利用拡大を目指して、2014 年 1 月に独立した実験室に移設し、アップグレードを行った。図 2 に、新しいフォトカソード RF 電子銃ライナックの構成図を示す。本ライナックに、新たにシングルショットパルスラジオリシス測定用の Achromatic ビームラインを建設し、3 つのビーム利用ポートを整った。また、加速管の下流に加速空洞を設置するスペースを設け、将来には電子線パルスエネルギー変調を高精度で行い、アト秒電子線パルスの発生を目指す。

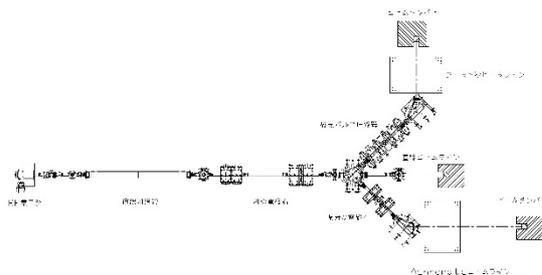


Figure 2: New femtosecond electron linear accelerator using RF gun.

2.2 RF 電子銃を用いた時間分解電子顕微鏡

物質の構造に対する直接的な知見を獲得する代表的な手法は、言うまでもなく電子顕微鏡である。電子顕微鏡は、原子レベルでの構造決定を可能にし、沢山の重要な発見を成し遂げ、科学の新しい領域を切り拓いてきた。これに時間分解機能を付加した時間分解電子顕微鏡は、高速で進行するナノスケールでの構造変化を時間分解で直接的に追跡できることから、広い学問分野で大きな注目を集めている。高時間分解能を有する電子顕微鏡を実現するためには、高品質かつ短パルスの電子ビームが不可欠である。そこで、我々はフォトカソード RF 電子銃技術とフェムト秒電子線パルス発生を経験を活かして、未だ世界的に実現されていない、フェムト秒時間分解能を有する MeV 透過型電子顕微鏡の建設に装置開発目標を置いた[10,11]。本研究では、時間的には 100fs、空間的には 10nm とする時空間分解能を両立させた小型超高压電子顕微鏡を開発することが、最大の達成目標である。

図 3 に、我々が開発したフェムト秒時間分解 MeV 電子顕微鏡実証機の写真を示す。本電子顕微鏡には、フォトカソード RF 電子銃を用いることは、最大の特徴である。初めての加速器技術と電子顕微鏡技術の融合と言える。RF 電子銃の特徴として、第一は、

空間電荷効果の低減である。加速空洞内に DC 電子銃より 10 倍高い加速電場 (100MV/m) を有するため、カソードから発生した光電子が広がらないうちに空洞内の高電場で瞬時に相対論的運動エネルギーまで加速される。こうして、空間電荷効果によるエミッタンスの増大が抑えられ、パルス当たりの電荷量が大きく、発散角が小さい電子ビームを発生することが実現できる。第二は、短パルス電子ビームの発生である。RF 電子銃から発生する電子ビームの時間構造はレーザーの時間構造を反映するため、短パルスレーザーを利用すれば簡単に短パルスの電子ビームを得ることができるという利点がある。そこで、我々は、RF 電子銃をフェムト秒レーザーで駆動させ、規格化エミッタンスが 0.1mm-mrad、エネルギー分散が 10^{-4} 、パルス幅が 100fs のフェムト秒短パルス電子ビームを発生し、時間分解電子顕微鏡の電子源を実現させる。最近、我々の RF 電子銃の研究では、カソードに照射するレーザーのパルス幅、スポットサイズを制御し、加速空洞内の電場と位相などのパラメーターを最適化することにより、パルス当たりの電荷量が 0.1pC に抑えれば、上記で述べたような高品質フェムト秒電子ビームが発生可能であることがわかった[12]。

本電子顕微鏡には、RF 電子銃から発生したフェムト秒短パルス電子ビームは、コンデンサ絞りによるコリメートされた後、コンデンサレンズによって厳密に制御されて試料に小さい収束角で入射する。結像部には、対物レンズ、中間レンズと投影レンズの 3 つの強磁場磁気レンズを用いた。球面収差、色収差と非点収差を最小化するために、磁極やヨークの形状を最適化しており、電子レンズ系として十分な特性が実現されている。対物磁気レンズでは、上極と下極に非対称の構造を採用し、最大起磁力が $44,000\text{A} \cdot \text{ターン}$ である。磁極は飽和磁束密度が高いパーメンジュール軟磁性材料を使用しており、最大磁場強度 2.4T の発生が可能である。これにより、本電子顕微鏡のイメージ像拡大倍率は 5,000~75,000 倍となり、本開発目標である 10nm 分解能を十分に達成する見込みである。

超高速のイメージ測定には、検出器そのものの時間分解能に依存しないが、電子波の高感度検出は極めて重要である。特に、非可逆過程への測定を実現するためには、single shot でのイメージを測定する必要がある。そこで、我々が MeV 電子線回折測定 [5] に成功したパルスあたり少数の電子数でも測定可能な TI をドープした CsI の柱状結晶化素子と浜松フォトニクス社製の Fiber Optic Plate を採用した。時間分解 MeV 電子回折の測定では、検出系全体の検出感度として、 $3 \times 10^{-3} \text{counts/electron}$ を達成している [13,14]。最近、高感度カメラ (EM-CCD) に置き換えることによって、検出感度を 10 倍以上に増強

し、電子数 5×10^4 のパルスを用いて単結晶金における MeV 電子回折の single-shot 測定に成功した。



Figure 3: Photo of time-resolved relativistic-energy electron microscopy using RF gun

2.3 1kHz 常伝導 RF 電子銃テストベンチ

上記で述べたように、パルスラジオリシスの時間分解能をアト秒に、時間分解電子顕微鏡の空間分解能をサブナノメートルに向上させるには、更なる低エミッタンス・短パルス電子ビームが不可欠である。このような電子ビームを得るために、パルス当たりの電荷量 (0.1pC/pulse 以下) を低減しなければならない。一方、測定には、高精度かつ短時間の観測が望まれ、短時間で沢山の電子数が要求される。これらの問題を解決するために、電子線パルスの繰返しを上げなければならない。すなわち、高繰返しの電子源が必要となる。そこで、我々は、高エネルギー加速研究機構との共同研究で、世界先駆けて繰返し 1kHz の常伝導 RF 電子銃の開発に試みた。常伝導 RF 電子銃を選んだもう最大理由は、装置の小型化である。

1kHz の常伝導 RF 電子銃を実現するために、最大の問題点は熱の除去である。現在の S バンド RF 電子銃では、ピーク加速電場が 100MV/m の運転条件 (電子ビームエネルギーは 4MeV 程度) で必要な RF ピークパワーは $6 \sim 7\text{MW}$ である。RF パルス幅が $3\mu\text{s}$ 、繰返しが 10Hz の場合、加速空洞における熱発生量は $0.18 \sim 0.21\text{kW}$ である。時間分解電子顕微鏡の場合、電子ビームのエネルギーは 2MeV であるため、必要な加速電場は 50MV/m であり、この時の入力 RF ピークパワーは約 2MW である。また、必要となる電子線パルスはシングルバンチであるため、入力の RF パルス幅が RF フィーリングタイムの $1\mu\text{s}$ まで抑えれば、我々が開発している繰返し 1kHz の RF 電子銃における熱発生量は約 2kW である。この熱量は、SLAC での LCLS の 120Hz の RF 電子銃における熱発生量と同じであり、現在の RF 電子銃に取付けられる冷却機構の改良により除去可能である。

図 4 に、我々が開発している 1kHz の常伝導 RF

電子銃の断面図と写真を示す。熱除去のほかに、エミッタンスやエネルギー分散の低減を目指して、以下の 6 つの改良を行った。

- i. まず、大きな改良点として、ハーフセルとフルセルの間の Iris 寸法と形状を変更し、 π モードと 0 モードの共振周波数差を従来の RF 電子銃の 3.5MHz から 15.2MHz までに広げた。新しい RF 電子銃では、Iris 直径を 14.5mm 、Iris 厚さは 18.0mm であり、形状は従来の丸型から楕円形状に変更した。これにより、(1) カソードでの 0 モードの電場強度と Iris 表面電場強度を低減することができた。(2) 空洞温度変化による field balance などの影響 (温度の敏感さ) が受けにくく、低繰返しから高繰返しでの安定な運転につながる。(3) tuning や tolerance の敏感さが緩和された。(4) RF 加速位相によるエミッタンスの変化が小さくなり、また、(5) パルス内のエネルギー分散の低減も期待できる。
- ii. 次に、加速空洞の形状は従来の四角形状から丸い形状に変更した。これにより、加速空洞内の電場の非線形成分を低減することができ、最も対称性が良い理想に近い RF 加速電場が実現できる。また、Q 値やシャントインピーダンスの向上にもつながった。
- iii. ハーフセルとフルセルにセル壁面を変形させる新型チューナーを取り付けた。これにより、フルセルとハーフセルの RF カップリングの調整を容易にして、加速電場分布のバランスがより高精度で得られるようにした。
- iv. ハーフセルとカソードプレートに金ロウ付けする構造を採用した。従来の RF 電子銃では、カソードプレートをハーフセルにヘリコフレックスで取り付けたため、カソードプレートとハーフセルの間に隙間ができ、放電や暗電流発生の原因となった。金ロウ付けにより、この隙間がなくなり、RF 電子銃からの暗電流が大幅に低減できる。
- v. カソードプレートにカソードプラグの挿入機構を設け、フォトカソードの交換が可能になった。これにより、透過型カソードなどの新しいフォトカソードの研究開発にもつながる。
- vi. 最後に、Iris の冷却水路形状は従来の四角形状から五角形状に変更した。シミュレーションでは、ハーフセル半径方向に熱発生量が集中しているため、ハーフセルとカソードプレートの連結部に新たに 1 系統の冷却水路を追加した。また、フルセルに取り付けられた導波管にも冷却水路を設けた。これにより、RF 共振による発生した熱を効率的に除去することができ、1kHz の高繰返し RF 電子銃の実現が期待できる。

図 5 に、新たに建設した RF 電子銃テストベンチの構成図を示す。RF 電子銃テストベンチには、RF

電子銃の後ろにソレノイド電磁石、コンデンサレンズ、試料挿入機構、さまざまなビームモニターが設けられ、ビームダイナミクスの研究が可能となり、フェムト秒短パルス電子ビームを利用した時間分解電子回折やその他のポンププローブなどの応用実験も可能である。

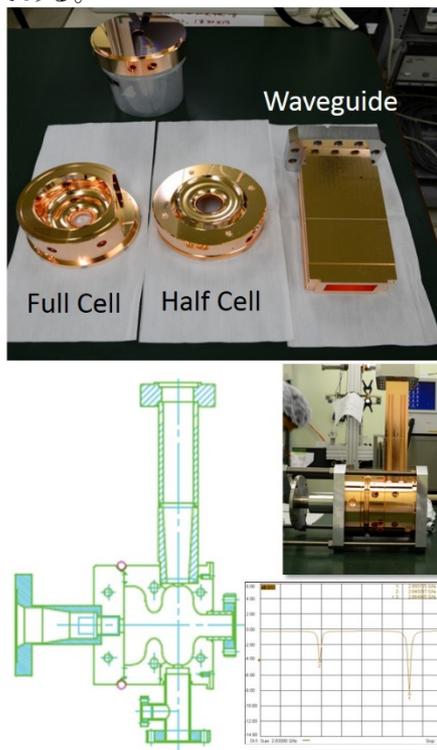


Figure 4: New RF gun with repetition rate of 1kHz.

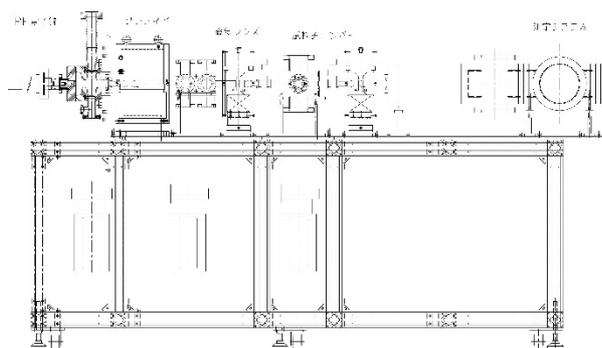


Figure 5: RF gun test facility.

3. まとめ

以上、阪大産研 S バンドフォトカソード RF 電子銃ライナックの移設とアップグレード、ごく最近完成した RF 電子銃を用いた時間分解電子顕微鏡装置、現在開発中の 1kHz 高繰返常伝導 RF 電子銃とテストベンチ装置について紹介した。阪大産研フォトカソード RF 電子銃ライナックは、極短パルス電子ビーム発生において強力な加速器となっている。この加速器を用いた高速パルスラジオリシスは、今まで未踏領域での量子ビーム誘起の物理・化学初期反

応過程が測定でき、新物質の創製と新機能の開拓、ライフノベーションの発展に極めて大きな貢献をもたらすであろう。また、フェムト秒時間分解電子顕微鏡は、フェムト秒領域の時間分解能と原子レベルの空間分解能を併せ持つ新しい測定ツールである。実現すれば、今後の超高速構造科学研究を質的に格段に深化させるであろう。

現在開発中である 1kHz の RF 電子銃は、時間分解電子顕微鏡の実用化に不可欠な電子源である。実現すれば、この RF 電子銃を用いた新しい電子顕微鏡は、電子顕微鏡の性能だけを考えても、小型かつ安価で、一般的な研究施設や研究室でも導入可能である。更に、フェムト秒の高時間分解能が付加されることを考えれば、次世代の電子顕微鏡の誕生と言っても言い過ぎではない、世界中の物質構造科学研究者が待望してやまない「夢の装置」である。

本研究の一部は、文部科学省科学研究費補助金（基盤研究（A）、26246026）「フェムト秒時間分解電子顕微鏡に関する研究」によって遂行可能となった。また、フォトカソード RF 電子銃ライナックの移設において、大阪大学産業科学研究所の谷村克己教授から多大な支援をいただいた。装置建設や運転等においては大阪大学産業科学研究所附属量子ビーム科学研究施設の教員と技術職員の方々にも最大限の協力をいただいた。関連する方々に深く感謝したい。

参考文献

- [1] J. Yang, T. Kondoh, T. Kozawa, Y. Yoshida, S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem. **75** (2006) 1034.
- [2] J. Yang, T. Kondoh, K. Kan, Y. Yoshida: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **629**, (2011) 6.
- [3] J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **637**, (2011) S24.
- [4] W. E. King, G. H. Campbell, A. Frank, B. Reed, J. F. Schmerge, B. J. Siwick, B. C. Stuart, P. M. Weber, J. Appl. Phys. **2005**, 97, 111101.
- [5] Y. Murooka, N. Naruse, S. Sakakihara, M. Ishimaru, J. Yang, K. Tanimura, Appl. Phys. Lett. **2011**, 98, 251903.
- [6] J. Yang, T. Kondoh, Y. Yoshida, S. Tagawa, Jpn. J. Appl. Phys., **44**, 8702-8707 (2005).
- [7] J. Yang, T. Kondoh, K. Kan, T. Kozawa, Y. Yoshida, S. Tagawa: Nucl. Instrum. Methods A **556** (2006) 52.
- [8] K. Kan, J. Yang, T. Kondoh, K. Norizawa, Y. Yoshida: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **597** (2008) 126.
- [9] 野澤氏、本大会の発表、発表番号 SAOM02.
- [10] <http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/bsn/KibanAKokai.pdf>
- [11] J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Murooka, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, J. Vac. Soc. Jpn. **2012**, 55, 42-49.
- [12] J. Yang, K. Kan, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, Radiat. Phys. Chem. **2009**, 78, 1106.
- [13] J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **2011**, 637, S24.
- [14] N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, K. Tanimura: J. Particle Accelerator Society of Japan, **2011**, 7, 261-270.