

■第23回日本放射光学会奨励賞受賞研究報告

XFEL の新奇特性の開拓とその利用

井上伊知郎 (理化学研究所)

1. はじめに

Self-Amplified Spontaneous Emission (SASE) 方式に基づく XFEL の登場によって、超高速化学や物質科学、生命科学、X 線非線形光学等の幅広い分野において顕著な成果が創出されている。一方で、レーザー光源の開発の歴史を鑑みると、レーザーの発明直後から短パルス・ブロードバンド・マルチパルスなどの多機能かつ高度な特性を持つレーザー光源が開発され、新しいサイエンスが切り拓かれたことは周知の事実である。X 線領域においても、高度なレーザー光源の実現は、未踏のサイエンスを切り開く駆動力となることが期待されている。

著者は、SACLA 大学院生研究支援プログラム¹⁾やその後の研究活動を通じて XFEL とその周辺技術に関する研究を行ってきた。特に興味を持って研究を推し進めてきたのが、XFEL のコヒーレンス計測などの光診断技術の開発^{2,3)}や、ダブルパルス XFEL^{4,5)}、シード化 XFEL⁶⁾、高調波 XFEL⁷⁾といった高度な運転モードとその利用技術の開拓である。本稿では、この中から (i) ダブルパルス XFEL を利用した X 線ポンプ・X 線プローブ法と (ii) 反射型セルフシードによる XFEL の狭帯域化、の 2 つの研究について紹介する。

2. ダブルパルス XFEL を利用した X 線ポンプ・X 線プローブ法

XFEL が試料に照射されると、フェムト秒の時間スケールで様々な試料の変化が生じる (Fig. 1)。まず、光電吸収によって光電子が (主に内殻から) 放出されて原子のイオン化が起こる。この励起状態を緩和するために外殻の電子が内殻に移動し、その際に蛍光 X 線や Auger 電子が放出される。これらの光電子や Auger 電子がきっかけとなって、電子雪崩と呼ばれる急激な自由電子の放出現象が

起きることによって原子のイオン化が進行する。このような「電子系への X 線ダメージ」の後に、イオン化した原子間のクーロン反発力やイオン化による原子間のポテンシャルの変化によっておこる原子位置の変位、すなわち「構造への X 線ダメージ」が生じる。電子系および構造への X 線ダメージは、フェムト秒の時間スケールで進行する。しかし、XFEL のパルス幅をダメージの時間スケールよりも短くすることで、ダメージの影響を低減させて測定を行うことが出来る⁸⁾。

これまでに、高強度の XFEL が物質に及ぼすダメージについての理論的な研究が精力的に行われてきた⁹⁾。例えば、X 線ダメージを定量的に評価するための物理モデルの開発や、それに基づく蛋白質 1 分子構造解析法の提案や可能性の検証などである。より実験的な観点からの研究として、電子系や構造への X 線ダメージが存在する条件で散乱実験を行った場合の構造解析法の研究も発展しつつある¹⁰⁾。

ところが実験に目を向けてみると、フェムト秒の時間スケールでどのように X 線ダメージ過程が進行していくのかを直接測定したという例は報告されていない。そのため、実際の試料への X 線ダメージは既存の物理モデルで十分に説明されているのか、という XFEL を利用する計測のデザインや妥当性に関わる根本的な疑問が検証されていないのが現状である。実験によって X 線のダメージ過程を定量的に測定し、XFEL による物質の「破壊の物理」を明らかにすることは X 線科学を進展させるために極めて重要な研究課題である。

そこで、著者らは SACLA の BL3 においてダブルパルス発振技術を利用した X 線ポンプ・X 線プローブ法を開発した。このダブルパルス発振技術では、全部で 21 台ある SACLA BL3 のアンジュレータを前半 (1 台目から 8 台目)・後半 (9 台目から 21 台目) の 2 つの部分に分け、それぞれで XFEL を発振させる⁴⁾ (Fig. 2)。前後半それぞれのアンジュレータギャップを異なる値にすることで、波長を離れたダブルパルスを発振させる。さらに、8 台目と 9 台目のアンジュレータの間にある磁場シケインによって、電子ビームを迂回させることで、前半からの XFEL に対する後半の XFEL の時間遅れを制御することができる。ダブルパルスの時間間隔の精度は、シケインにおける磁場の不安定性や電子ビームエネルギーの揺らぎによって決まっており、サブフェムト秒程度と XFEL のパルス幅と比較して無視できるほど小さな値に収まっている。

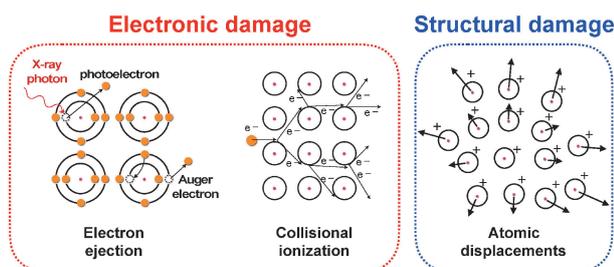


Fig. 1 (Color online) Ultrafast damage processes of matter irradiated by intense X-ray beam.

発振したダブルパルスをそれぞれ試料にダメージを与えるポンプ光、ダメージの度合いを調べるプローブ光として用いるのが X 線ポンプ・X 線プローブ法である。この方法を用いてダイヤモンドを試料として行った実験結果について以下で紹介する。

光子エネルギー6.1 keV のポンプ光、5.9 keV のプローブ光を発振させ、さらに X 線集光ミラー¹¹⁾によって130 nm (水平) × 200 nm (垂直) のサイズに集光した。集光点にダイヤモンドの薄膜 (15 μm 厚) を設置して、ポンプ光とプローブ光の時間間隔を0.3 fs から80 fs まで変えながらダイヤモンドからの111反射と220反射を測定した⁵⁾。その結果、Fig. 3 で示すような明瞭なプローブ光の散乱強

度の減衰が観測された。この結果は、フェムト秒の時間スケールでダイヤモンドの電子密度の空間分布が大きく変化していることを意味している。

ダブルパルスの時間間隔が0.3 fs の場合と80 fs の場合とでプローブ光の111反射や220反射を比較すると、80 fs の場合は0.3 fs の場合よりも10%以上反射強度が減衰している。これだけ大きな変化は構造へのダメージ、すなわち原子の格子点からの変位が大きくなっていることを意味している。各原子の原子変位が各格子点の位置を中心にしてランダムになっていると仮定して、ポンプ光照射後の原子変位の大きさの時間変化をプロットしたものを Fig. 4 に示す。この図からわかるように、ポンプ光照射後20 fs を境

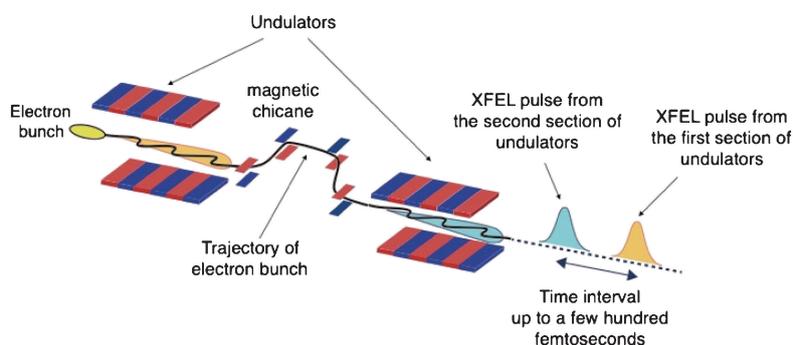


Fig. 2 (Color online) Schematic illustration of two-color double-pulse mode at SACLA.

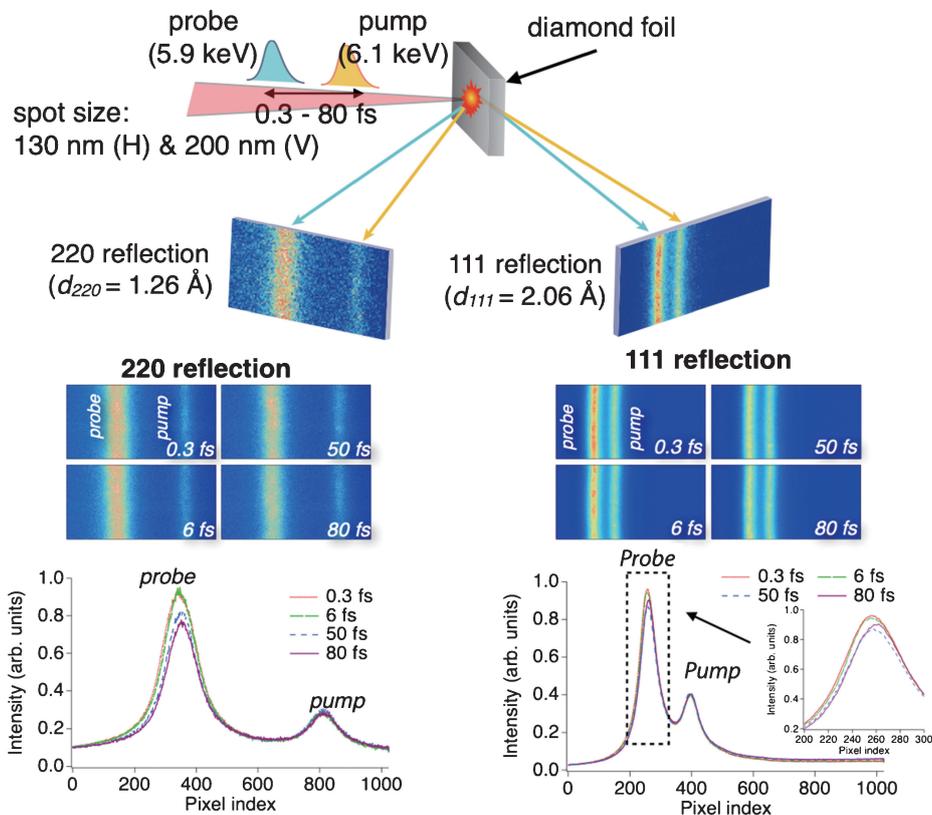


Fig. 3 (Color online) X-ray pump—X-ray probe experiment of diamond.

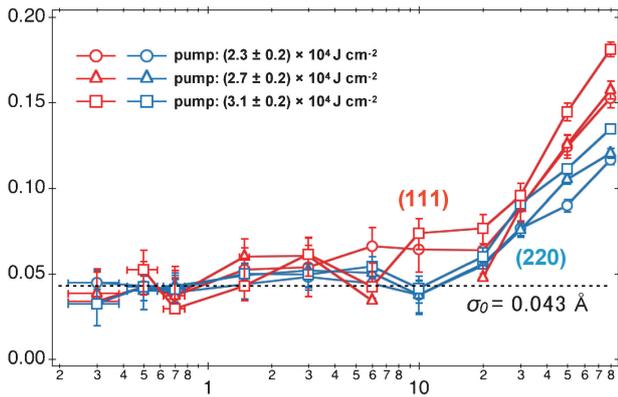


Fig. 4 (Color online) Atomic displacements of carbon atoms perpendicular to the (111) and (220) planes in diamond after irradiation of the pump pulse.

に原子変位が大きくなっていく。逆に言えば、XFELを照射してから20 fs後までは構造へのダメージはほとんど起こっていないということが実験によって明らかになった。ここで強調すべき点は、この実験におけるポンプ光はおよそ 10^{19} W/cm²と現在のXFELと集光光学素子とを組み合わせることで実現できる世界最高レベルの高強度であることである。現在のXFEL施設においては、多くの場合パルス幅が10 fs以下のXFELが利用されている（例えばSACLAでは6 fs程度）。この時間幅は、今回の実験によって分かった構造へのダメージが顕在化する時間スケールよりも短い。すなわち、現在のXFELを用いた多くの実験では、構造へのダメージを無視できることが推測された。

最後に、この実験を端緒とした最近の展開を2つ紹介したい。1つは、我々のダイヤモンドを試料としたポンプ・プローブ実験をもとに、最近DESYのグループがXFELと物質との相互作用のモデリングを行ったことである¹²⁾。彼女たちは、tight-binding近似と分子動力学シミュレーションを組み合わせた、半古典的なXFELと物質の相互作用モデルを考案した。著者らがSACLAで行った実験のXFEL強度のもとで、ダイヤモンドの破壊過程をシミュレーションした結果、構造へのダメージが顕在化する時間スケールに関して定量的により一致が得られている。すなわち、もっともらしい相互作用の物理モデルができていくことが確認されている。

2つ目の展開は、X線ポンプ・X線プローブ法を用いた電子へのダメージの過程の観測である。最近、著者らのグループが、プローブ光をより高光子エネルギーのXFELにすることでダイヤモンドの様々な面からの回折線の測定を行った。これによって、ポンプ光照射後の電子密度分布の時間変化を詳細に捉えることに成功した。そして、ポンプ光照射後20 fs以下の構造へのダメージが起きていないような時間スケールであっても価電子の電子密度分布がダイナミックに変化していくことが明らかになっ

た。この結果の解釈やシミュレーションに関して、現在上記のDESYのグループと共同研究を進めており、近日中に学術雑誌に投稿を予定している¹³⁾。

3. 反射型セルフシードによるXFELの狭帯域化

SASE型XFELでは、アンジュレータ入り口において発生する波長広がり大きな自発放射光を種としてレーザー発振が起こるため、得られるXFELのエネルギー幅($\Delta E/E$)は0.1%–1%程度と比較的大きい。そのため、広角X線散乱や各種の分光実験などでは光を単色化することが必要になる。当然ながら、単色化によってXFELは強度の大部分を失ってしまうことになる。例えば、Si(111)2結晶分光器を使ってXFELを単色化すると、分光器後のXFELのフラックスは分光器前と比較してわずか数%程度になる。

パルスあたりの光子数をできる限り保ったままXFELを狭帯域する方法として、ダイヤモンド結晶を使ったセルフシード技術が約10年前に提案され¹⁴⁾、LCLSにおいて実証実験が行われた¹⁵⁾。この方法ではアンジュレータを前後半2つのセクションに分け、その間に厚さが数100 μ mのダイヤモンドの薄い結晶を設置する。そして、前半のアンジュレータから放射されたXFELをこの結晶に透過させる。このときダイヤモンドの方位を適切に調整すると、前方ブラッグ回折と呼ばれる現象によって、透過したXFELに対して数10 fs程度遅れて狭帯域のX線ビームがwake pulseとして生じる。磁場シケインを用いて電子ビームを迂回させ、後半部分のアンジュレータ中でwake pulseと電子ビームを時空間で重ね合わせることで通常のSASE-XFELよりも狭帯域のXFELを発振させることができる。これは、後半のアンジュレータにおいて、単色のwake pulseからレーザー発振がスタートするためである。

この「透過型セルフシード」は、SACLAやPAL-XFELにおいても実現している¹⁶⁾。しかし、シードXFELを実験に応用したという報告はこれまでの所ほとんど無い（著者の知る限り出版された論文は1報のみである¹⁷⁾）。その理由として、第一に挙げられるのはシード調整の難しさである。透過型セルフシードでは、wake pulseだけではなくダイヤモンド結晶を透過してきた前半のアンジュレータからのSASE-XFELも後半のアンジュレータに入射する。このSASE-XFELの“コンタミ”のために、wake pulseの強度や方向、ビームの形状などのビームパラメータを測定することが難しい。マシンの調整が手探りにならざるを得ず、非常に長い調整時間が必要になるという問題点があった。

著者らはよりシンプルなアプローチとして、Siのチャンネルカット結晶を用いた「反射型セルフシード」を検討した（Fig. 5）。この方法では、ダイヤモンドの薄結晶の代わりにチャンネルカット結晶におけるブラッグ反射によって前半のアンジュレータから放射されたXFELを単色化

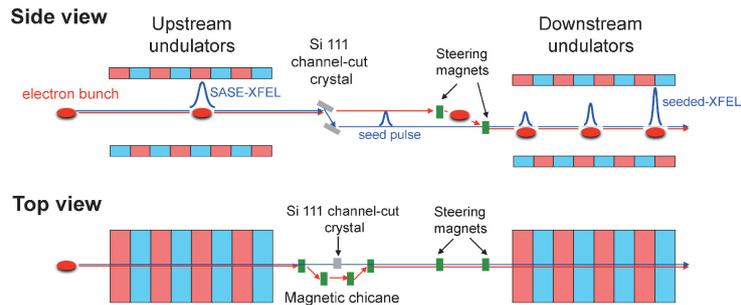


Fig. 5 (Color online) Schematic illustration of reflection self-seeding using micro channel-cut crystal monochromator.



Fig. 6 (Color online) Group photo taken after we firstly observed narrow-band XFELs generated by reflection self-seeding.

する。そして、生成された単色光を種（シード光）として後半のアンジュレータにおいてレーザーを増幅させる。

反射型セルフシードでは、単色のシード光のみが後半のアンジュレータに入射する。このことによって、アンジュレータや電子加速器の調整が透過型セルフシードと比較して格段に簡単になる。さらに、透過型セルフシードと比較して高効率にシード光を作り出すことができる（入射 SASE-XFEL の強度に対する生成されるシード光の強度の比は、同程度のバンド幅のもとで、透過型セルフシードと比較して数倍から数10倍）。これによって前半のアンジュレータ部で大強度の XFEL を放射させずとも十分な強度のシード光が生成できる。すなわち、前段アンジュレータ部での XFEL 放射に伴う電子ビームの質を抑えることが可能になり、透過型セルフシードの場合よりも高強度の狭帯域レーザーを実現できる。

反射型セルフシードを実現するためには、チャンネルカット結晶による光学的な遅延時間と磁場シケインを使って実現できる電子ビームの遅延時間とを同じにする必要がある。SACLA の場合、実現できる最大の電子ビームの遅延時間は約300 fs である（8 GeV の電子ビームを使う場合）。一方で、ギャップが10 mm 程度の通常のチャンネルカット結晶を用いると光学的な遅延時間は10 ps 程度になり、電子ビームの遅延時間の最大値を大きく超えてしまう。この課題を解決するために、理研の大坂らを中心とした SACLA のチームは、ギャップがわずか90 μm の Si(111)

チャンネルカット分光器を制作し¹⁸⁾、光学遅延を電子ビームの遅延時間の最大値よりも十分に短い、100 fs 程度に抑えることを実現した。

このマイクロチャンネルカット結晶と名付けたユニークな分光器を SACLA の磁場シケイン部分に設置し、2018 年の1月から反射型セルフシードのコミッションを開始した。当初の思惑通り、反射型セルフシードの調整は非常に簡単で一回目のコミッションであっさりと狭帯域の XFEL の発振に成功した。Fig. 6 は、このときに seeded-XFEL 発振を記念して撮影した写真である。その後、様々な調整法の改良を重ね、現在では8時間程度と非常に短い時間で seeded-XFEL を発振できるようになった。

Fig. 7 は、通常の SASE-XFEL と seeded-XFEL の平均スペクトルを比較したものである。セルフシードによって通常の SASE-XFEL と比較して10分の1以下のエネルギー幅を実現できている（半値全幅で3 eV 程度）。現在の SACLA のパルス幅は6 fs 程度であるので³⁾、ほぼフーリエ限界のパルスが実現されている。Fig. 7 のグラフのピーク値を見ると seeded-XFEL は SASE-XFEL の約6倍になっているが、これは SASE-XFEL と比較して seeded-XFEL の輝度やスペクトル密度が約6倍になっていることを意味している。

興味深いことに、seeded-XFEL のスペクトル幅はシード光のスペクトル幅（1.3 eV）よりも若干広い。このエネ

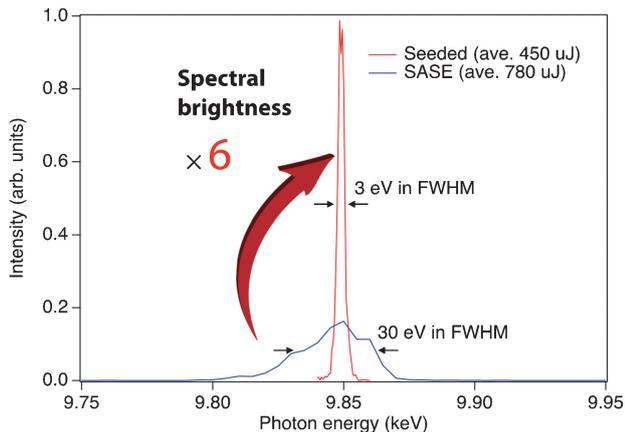


Fig. 7 (Color online) Average spectra of the SASE- and seeded-XFEL beams.

ルギー広がり電子ビームのエネルギーチャープが大きいことに起因していると考えている⁶⁾。すなわち、よりエネルギーチャープが少ない電子ビームを使用することで、seeded-XFELのスペクトル密度を今後さらに上げることができる可能性がある。

今回開発された seeded-XFEL は、2019年3月から SACLA のユーザー実験に供用される予定である。今後、様々な実験に応用され、興味深い研究成果をもたらす手助けとなることを期待している。

4. おわりに

本稿では、著者らが SACLA で行った光源技術やその利用技術に関して2つの研究を紹介した。現在は XFEL が実現してから10年が経とうとしており、タンパク質の無損傷構造解析や光学レーザーポンプ・X線プローブといった一部の実験手法は、手法開発が一段落して徐々に汎用的な手法になりつつある。では、XFELの光源技術や実験技術も定常運転に入りつつあるのだろうか。おそらくそうではないだろう。例えば、アト秒・zeptosecond のパルス幅の XFEL やシングルモードの XFEL を目指した研究は現在盛んに行われている。今後10年程度は、間違いなく XFEL 光源は性能向上や多機能化に向けて様々な進歩をし続けるであろう。また、放射光源に目を向けてみると低エミッタンスの電子ビームを利用した第4世代放射光源が登場間近である。

このように X 線科学が弛みなく発展していくなかで、今後も光学技術・光源技術開発を通じて X 線光源やその利用法の進化に貢献できるようチャレンジし続けたいと考えている。

謝辞

ここで紹介した研究は多くの方々との共同研究によるものです。学生時代の指導教官である雨宮慶幸教授（東京大学）には、博士課程において SACLA で研究をするとい

う大変得難い機会をアレンジしていただきました。理化学研究所の矢橋牧名グループディレクターには、博士課程在学中は受け入れ研究者として、現在は直接の上司として温かく指導して頂いています。高輝度光科学研究センターの登野健介グループリーダーと犬伏雄一主幹研究員には、XFEL 実験の基礎を教えてくださいました。理化学研究所の原徹チームリーダーには加速器やアンジュレータの調整に関して様々なアドバイスを頂きました。理化学研究所の田中均部門長からは、数多くの熱い励ましを頂きました。理化学研究所の大坂泰斗基礎科学特別研究員とは、これまで多くの実験をともにやり、データ解析や装置開発などの様々な面で協力していただきました。名前を挙げた方以外にも、多くの研究者や SACLA のエンジニアの皆様の協力があって、ここで紹介した研究成果に結びつきました。この場をお借りしてお礼を申し上げます。

参考文献

- 1) http://xfel.riken.jp/topics/sacla-intern_2019.html
- 2) I. Inoue *et al.*: IUCrJ **2**, 620 (2015).
- 3) I. Inoue *et al.*: Phys. Rev. Accel. Beams **21**, 080704 (2018).
- 4) T. Hara *et al.*: Nature Commun. **4**, 2919 (2013).
- 5) I. Inoue *et al.*: Proc. Natl. Acad. Sci. USA **113**, 1492 (2016).
- 6) I. Inoue *et al.*: Nature Photon. (in press).
- 7) I. Inoue *et al.*: J. Synchrotron Rad. **25**, 346 (2018).
- 8) R. Neutze *et al.*: Nature **406**, 752 (2000).
- 9) S. P. Hau-Riege: High-Intensity X-Rays-Interaction with Matter, Wiley-VCH, Weinheim (2011).
- 10) H. M. Quiney and K. A. Nugent: Nature Phys. **7**, 142 (2011).
- 11) H. Mimura *et al.*: Nature Commun. **5**, 3539 (2014).
- 12) N. Medvedev and B. Ziaja: Sci. Rep. **8**, 5284 (2018).
- 13) I. Inoue *et al.*: in preparation.
- 14) G. Geloni, V. Kocharyan and E. Saldin: J. Mod. Opt. **58**, 1391 (2011).
- 15) J. Amann *et al.*: Nature Photon. **6**, 693 (2012).
- 16) T. Inagaki *et al.*: Proc. FEL2014, 603 (2014).
- 17) L. B. Fletcher *et al.*: Nature Photon. **9**, 274 (2015).
- 18) T. Osaka *et al.*: arXiv:1811.01860 (2018).

● 著者紹介 ●



井上伊知郎

理化学研究所 放射光科学研究センター
XFEL 研究開発部門 ビームライン研究
開発グループ ビームライン開発チーム
基礎科学特別研究員

E-mail: inoue@spring8.or.jp

専門：非晶質の X 線散乱, X 線自由電子レーザーの光診断や実験技術開拓

【略歴】

2011年3月東京大学工学部物理工学科卒業。2016年3月東京大学大学院新領域創成科学研究科物質系専攻博士課程修了。博士(科学)。同年4月より現職。