

利用系グループ活動報告

XFEL 利用研究推進室 先端光源利用研究グループ

公益財団法人高輝度光科学研究センター
XFEL 利用研究推進室 登野 健介

1. はじめに

2012年3月に供用を開始して以来、SACLAは8年以上にわたってX線自由電子レーザー(XFEL)を利用した研究の舞台となっている¹⁾。供用開始当初からの利用機会増大の要求に応えるため、3本のビームラインの同時並行運転が2017年より開始され、2019年度には6,400時間以上のビームタイムがユーザーに提供された。また、2色XFEL発振、セルフシード型XFELの実現といった光源の高度化とともに、ビームライン光学系、共用実験装置、ハイパワー光学レーザーなどの利用実験システムの高度化が継続的に実施されてきた。最近では、SACLAの高品質電子ビームをSPRING-8蓄積リングに入射するスキームの確立など、SPRING-8のアップグレードに向けた研究開発も進められている。さらに、機械学習を取り入れた加速器調整、ビームライン光学系の自動調整、利用実験の遠隔参加など、利用運転の新たなフェーズへの移行を見据えた開発も行われている。

新しい光源であるSACLAの利用研究を速やかに発展させるためには、施設の運転・高度化から利用支援までの活動がシームレスにつながっている必要がある。このため、JASRI・XFEL利用研究推進室と理研・放射光科学研究センターXFEL研究開発部門が綿密に

連携し、利用研究の展開を進めている。

先端光源利用研究グループのミッションは、SACLAをはじめとした最先端光源を利用して世界最高水準の研究を展開することである。以下に、主な活動内容を挙げる。

- ・XFEL利用研究のための実験装置・手法の開発
- ・XFELや先進光学レーザー等を利用した研究の推進
- ・SACLAの利用実験支援

本グループは実験技術開発チームと光学基盤開発チームから構成されている。実験技術開発チームは、ビームライン光学系・診断系などの基盤装置やエンドステーション装置など、XFEL利用実験に必要な装置群の開発と高度化を行う。光学基盤開発チームは、XFELと先進光学レーザーを同時に利用する実験システムの開発と高度化を主に行っている。

XFELを利用する研究分野は、構造生物学、材料科学、超高速化学、X線光学、原子分子科学、高エネルギー密度科学など多岐にわたり、必要となる研究手法も様々である。多様なバックグラウンドを有するメンバーが各々の専門性を活かすとともに、理研とJASRIの関連部署に加え、国内外の大学・研究機関とも密接に協力して活動を進めている。

表1 SACLAの標準的な光特性

	BL1	BL2/BL3
光子エネルギー	40-150 eV	4-20 keV
最大繰り返しレート	60 Hz	60 Hz (BL2/3 単独運転時) 30 Hz (BL2&3 同時運転時)
パルス当たりの光子数	~5 × 10 ¹² @100 eV	~3 × 10 ¹¹ @10 keV
エネルギー幅 (ΔE/E)	~3%	~0.5% ~0.01% (分光器使用時)
パルス幅	~30 fs	< 10 fs

2. XFEL 利用研究のための実験装置・手法の開発

2.1. 利用基盤の整備と高度化

XFEL 利用実験の基盤となるビームライン光学システム^[2,3]、光診断システム^[2,4,6]、X線集光システム^[7,9]、同期光学レーザー^[2,10]などの装置の開発と高度化は、本グループの最も重要な活動のひとつである。

SACLA の XFEL ビームラインでは、ピークパワーの高いフェムト秒 X 線パルスが最大 60 Hz で供給される (表 1)。このため、ビームライン光学システムや集光システムには、X 線照射への高いダメージ耐性が備わっている。また、XFEL のコヒーレンスを保つため、極めて高い品質の光学素子が利用されている。光診断システムは、シングルショット計測が基本となる XFEL 利用実験で用いられるため、シングルショットで XFEL の特性を測る性能を有している。

ハイパワーレーザーや超短パルスレーザーなどの先進光学レーザーも SACLA の重要な光源であり、XFEL の短いパルス幅を活かした時間分解計測のために多用される。これらの光学レーザーには、長期間の利用に耐える信頼性に加えて、XFEL パルスとの高い同期精度が求められる。大型加速器と光学レーザーの同期は世界的にも重要な技術的課題となっており、SACLA においてはフェムト秒領域の同期精度を実現している^[10]。

以上のような、ほとんど前例の無い基盤装置を施設内外の研究者と協力して整備し、SACLA ビームラインの安定運用を実現している。

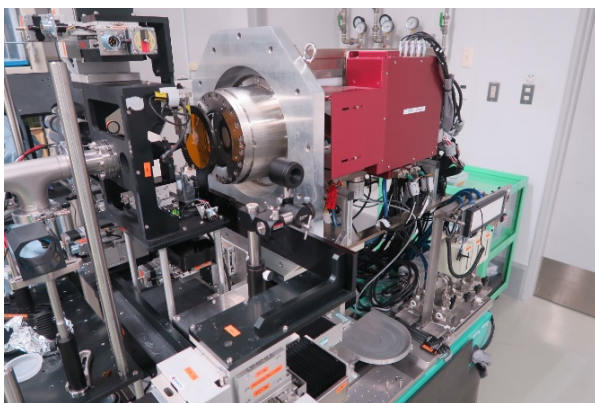


図 1 微結晶構造解析用プラットフォーム DAPHNIS。実験に必要な機器一式が組み立てられた状態で可搬式の架台に搭載されており、効率的に運用することができる。

2.2. 利用手法および共用実験装置の開発

新しい光である XFEL を広く研究に応用するためには、利用手法の確立と、利便性の高いエンドステーション装置の整備が必要である。本グループは、ユーザーとも協力して利用手法の開発を行うとともに、共用実験プラットフォームを整備して新しい手法の展開を進めている。SACLA で行われる多様な実験に対応するため、プラットフォームの多くは可搬型となっており、ビームタイムごとに入れ替えて運用される。可搬型実験プラットフォームの例を以下に挙げる。

- ・コヒーレント X 線回折イメージング用の MAXIC (Multiple Application X-ray Imaging Chamber)^[11]
- ・微結晶構造解析用の DAPHNIS (Diverse Application Platform for Hard X-ray Diffraction in SACLA) (図 1)^[12,13]
- ・時間分解分光・散乱計測用の SPINETT (SACLA Pump-Probe Instrument for Tracking Transient Dynamics)^[14]

一方で、大型の真空チャンバーが含まれるなど、入れ替えに適さない一部のプラットフォームは実験ハッチに常設されている。例えば、ハイパワーレーザーを利用する実験では真空環境下での測定が基本となるため、大型の真空チャンバーを基礎とした常設の実験プラットフォームが整備されている (図 2)^[10,15]。ここで紹介した実験プラットフォームの詳細については文献を参照していただきたい。

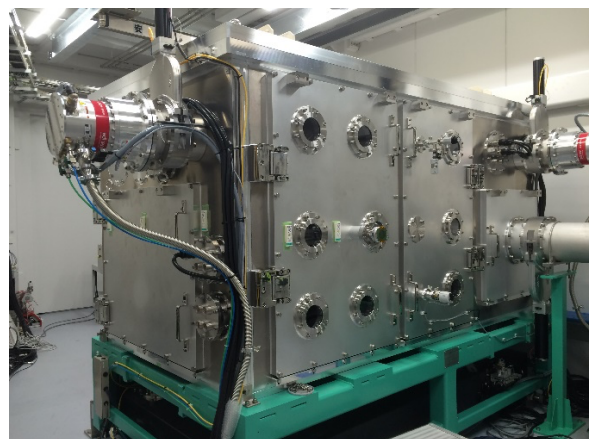


図 2 高エネルギー密度科学実験プラットフォーム。XFEL とハイパワーフェムト秒レーザーの同時利用実験が可能である。大型の真空チャンバーを基礎とする装置が実験ハッチ (BL2 EH6) に常設されている。

2.3. 先進的装置、実験手法の開発

基盤装置の整備を通じて XFEL の利用研究を広く展開することに加えて、先進的な装置や利用手法を開発して新たな研究分野を開拓することも、本グループの重要な役割である。所内および所外の協力者とともに開発した先進実験システムの多くは、既にユーザー実験で利用されている。ここではいくつかの例を簡単に紹介する。

シングルショットスペクトロメーターは、単一の XFEL パルスのスペクトルを精密に測定できるシステムである^[4]。XFEL の精密診断に利用されるほか、X 線非線形光学の実験にも応用されている^[16,17]。

先進集光光学系として、XFEL ビームを約 50 nm および約 100 nm まで集光できるシステムが整備され、共用装置として利用されてきた^[8,9]。これらのナノ集光システムは非常に高い X 線強度 (10^{20} W/cm²) を実現するものであり、非線形 X 線光学実験などで活用されている。さらに、XFEL ビームを 10 nm 以下に集光する光学システムの開発も進められている^[18,19]。

パルス到達タイミング診断システムは、XFEL と光学レーザーの相対時間差をパルス毎にフェムト秒の精度で計測できるものである^[14,20]。ポンププローブ計測の時間分解能を大いに高めることができ、化学反応過程の観測などに利用されている^[21]。

分割遅延光学システムは、入射する XFEL パルスを 2 分割し、両パルス間の時間差をフェムト秒の精度で制御できるものである^[22,23]。これにより、高い精度で物質のダイナミクス計測が可能になる。

新しい特性を持つ XFEL の生成法も開発されており、新規利用法の開拓につながっている。例えば、2 色 XFEL 発振法により、光子エネルギーの異なる 2 つの XFEL パルスを生成することが可能である^[24]。しかも、両パルス間の時間差をフェムト秒の精度で制御することができる。物質の超高速ダイナミクスや、X 線非線形光学現象の観測などに利用されている^[17,25]。

反射型セルフシード法は、単色性の高い XFEL を生成する手法である。従来に比べて一桁程度スペクトル幅が狭く、ピーク輝度の高い光を生み出すことができる^[26]。特に単色ビームを用いる X 線回折実験や X 線非線形光学実験で効果的に利用されている。

以上の他にも、ハイパワーレーザーと XFEL の同時利用実験システム^[10,15]や軟 X 線 FEL の光学・診断システム^[6,27,28]など、新分野開拓を目指した開発が進められ

ている。また、理研・放射光科学研究センターが主催する SACLA 基盤開発プログラム、SACLA 大学院生研究支援プログラム、SACLA 産業利用推進プログラムに施設側メンバーとして参画し、ユーザーと共同で実験装置・手法の開発を行っている。

3. XFEL を利用した先端的な研究の推進

本グループでは、手法開発にとどまらず、ユーザーなどの協力も得ながら主体的に先端研究を進めている。既に多くの成果が論文等で公開されているため、ここでは数例を簡単に紹介するにとどめる。

XFEL と物質の相互作用の研究は基礎物理学として重要であるだけでなく、XFEL 利用研究の基礎となる知見を与える。例えば、XFEL 照射による物質の構造変化（損傷過程）を観察することは、無損傷構造解析の妥当性を検証することにもつながる。SACLA においては、2 色発振法を活用したポンププローブ X 線回折法により、ダイヤモンドの結晶構造変化をフェムト秒の時間スケールで追跡する実験が行われた^[25]。得られたデータより、XFEL 照射後 20 フェムト秒が経過してから構造に変化があらわれ始めることが明らかになった。この結果は、SACLA の 10 フェムト秒以下の X 線パルスによって無損傷構造解析が可能なることを示唆している。

超高速化学の分野においては、パルス到達タイミング診断システムと SPINETT を利用した化学反応ダイナミクスの追跡が行われてきた。最近では、光で励起された金属錯体の波束ダイナミクスの追跡に成功した例が報告されている^[29]。

物性科学の分野では軟 X 線 FEL を利用した研究も進んでおり、サブマイクロメートル集光システムと磁気光学カー効果測定法を組み合わせた磁性マッピングなどの成果が出ている^[30]。

4. SACLA の利用実験支援

SACLA の供用開始以来、本グループは共同利用実験の技術的支援を担ってきた。前述のように XFEL の利用研究分野は多岐に渡るため、グループの総合力を生かすとともに、施設内外の専門家の協力も得ながら支援を行っている。また、XFEL の利用実験は前例の無いものが多いため、施設スタッフが計画段階から関わり、ユーザーと強く連携して実験を進めている。共同利用の成果については、SACLA のホームページに

一覧が掲載されているので、ぜひ参照していただきたい^[31]。ここでは、代表的な数例を紹介する。

岡山大学の沈教授のグループは、XFEL のフェムト秒パルスを活用して光化学系 II (Photosystem II; PSII) の無損傷結晶構造解析を行っている。PSII は、光合成において最初の光化学反応を担う蛋白質複合体で、水を酸化して酸素を発生させるなどの重要な機能を有する。凍結結晶を用いた計測に加え、常温の微結晶を用いたポンププローブ計測も実施し、光反応サイクルにおける中間体の構造決定などの成果を得ている^[32-34]。

高エネルギー加速研究機構の足立教授のグループは、高い時間・空間分解能で化学反応の過程を追跡する研究を行っている。溶液中の金の三量体錯体 $[\text{Au}(\text{CN})_2]_3$ に光を照射すると、金原子の間に共有結合が形成される。この過程を、ポンププローブ型の溶液散乱実験によって観測し、フェムト秒領域の時間スケールで追跡することに成功した^[21,35]。

X 線非線形光学の研究は SACLA の強みのひとつであり、世界に先駆けた研究が多く行われている。電気通信大学の米田教授のグループは、ナノ集光システムを利用して高強度 X 線パルスを生成し、鉄の可飽和吸収現象を X 線領域で観測することに成功した^[16]。また、ナノ集光システムと 2 色 XFEL 発振法を組み合わせることで、世界で初めて硬 X 線領域の原子準位レーザーの発振を達成するなど、新しい研究分野の創生につながる成果が得られている^[17]。

5. おわりに

SACLA の供用開始当初は、世界で 2 つの XFEL 施設が稼働するのみであった。新しい研究分野が次々と開拓され、世界から注目を集める恵まれた時期であったと言える。現在では SACLA を含めて 5 施設が稼働しており、国際競争が激しくなっている。SACLA においては、引き続き XFEL の安定供給に努めるとともに、光学系開発や非線形光学研究などの強みを活かしたオリジナリティの高い研究を展開していく。また、確立された実験手法については汎用化を進め、利用分野の拡大をはかることも本グループの活動の柱としている。同じキャンパス内の SPRING-8 とも連携しながら、高い競争力を維持していくよう励む所存である。

参考文献

- [1] T. Ishikawa, *et al.*: *Nat. Photon.* **6** (2012) 540.
- [2] K. Tono, *et al.*: *New J. Phys.* **15** (2013) 083035.
- [3] S. Owada, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **25** (2018) 282.
- [4] Y. Inubushi, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **109** (2012) 144801.
- [5] T. Katayama, *et al.*: *Struct. Dyn.* **3** (2016) 034301.
- [6] S. Owada, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **25** (2018) 68.
- [7] H. Yumoto, *et al.*: *Nat. Photon.* **7** (2013) 43.
- [8] H. Mimura, *et al.*: *Nat. Commun.* **5** (2014) 3539.
- [9] H. Yumoto, *et al.*: *Appl. Sci.* **10** (2020) 2611.
- [10] T. Yabuuchi, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 585.
- [11] C. Song, *et al.*: *J. Appl. Cryst.* **47** (2014) 188.
- [12] K. Tono, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **22** (2015) 532.
- [13] M. Kubo, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **24** (2017) 1086.
- [14] T. Katayama, *et al.*: *Struct. Dyn.* **6** (2019) 054302.
- [15] Y. Inubushi, *et al.*: *Appl. Sci.* **10** (2020) 2224.
- [16] H. Yoneda, *et al.*: *Nat. Commun.* **5** (2014) 5080.
- [17] H. Yoneda, *et al.*: *Nature* **524** (2015) 446.
- [18] S. Matusyama, *et al.*: *Sci. Rep.* **8** (2018) 17440.
- [19] J. Yamada, *et al.*: in preparation.
- [20] T. Sato, *et al.*: *Appl. Phys. Exp.* **8** (2015) 012702.
- [21] J. G. Kim, *et al.*: *Nature* **582** (2020) 520.
- [22] T. Hirano, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **25** (2018) 20.
- [23] T. Osaka, *et al.*: submitted for publication.
- [24] T. Hara, *et al.*: *Nat. Commun.* **4** (2013) 2919.
- [25] I. Inoue, *et al.*: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113** (2016) 1492.
- [26] I. Inoue, *et al.*: *Nat. Photon.* **13** (2019) 319.
- [27] H. Motoyama, *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 1406.
- [28] S. Egawa, *et al.*: *Opt. Exp.* **27** (2019) 33889.
- [29] T. Katayama, *et al.*: *Nat. Commun.* **10** (2019) 3606.
- [30] Y. Kubota, *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **117** (2020) 042405.
- [31] <http://xfel.riken.jp/research/index.html>
- [32] M. Suga, *et al.*: *Nature* **517** (2015) 99.
- [33] M. Suga, *et al.*: *Nature* **543** (2017) 131.
- [34] M. Suga, *et al.*: *Science* **366** (2019) 334.
- [35] K. H. Kim, *et al.*: *Nature* **518** (2015) 385.

登野 健介 *TONO Kensuke*

(公財) 高輝度光科学研究センター XFEL 利用研究推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802
e-mail : tono@spring8.or.jp