

(SPRUC 2022 Young Scientist Award 受賞 研究報告)

ユニークな XFEL モードの開発と高強度 X 線科学への応用

国立研究開発法人 理化学研究所 放射光科学研究センター
井上 伊知郎

Abstract

X 線自由電子レーザー (XFEL) の可能性を広げるために、我々は SACLA においてセルフシード XFEL や 2 色ダブルパルス XFEL などの新しい運転モードの開発やその応用研究に取り組んできた。本稿では、これらのユニークな運転モードの原理や光特性、および高強度 X 線科学への応用について紹介する。

1. 序論

Self-Amplified Spontaneous Emission (SASE) 方式に基づく X 線自由電子レーザー (X-ray free-electron laser; XFEL) の登場によって、超高速化学、物質科学、生命科学、非線形光学など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、可視光領域のレーザー光源の歴史を振り返ってみると、約 60 年前の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・高出力などの特性を持つレーザー光源が次々に開発され、その応用によって多くの新しい研究領域が開拓されてき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への駆動力となることが期待できる。

我々は時間間隔を制御できるダブルパルス XFEL^[1] や狭帯域 XFEL^[2]、ピンクビームとモノクロビームからなる 2 色発振 XFEL^[3] といったユニークな運転モードを考案し、SACLA において実現してきた。これらの XFEL モードは数多くの実験に供与され、非線形分光や量子光学効果の探索、特殊な X 線構造解析法などの特色ある実験を可能にしている。

本稿では、これらの運転モードを紹介すると共に著者らが行っている高強度 X 線科学への応用研究を紹介する。

2. セルフシード XFEL

SASE 型の XFEL では、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 の光子エネルギーの幅 ($\Delta E/E$) は 0.1%-1% 程度と比較的大きな値

になる。そのため、 $\Delta E/E$ が 0.01% 程度以下であることが望ましい実験手法 (広角散乱や各種の分光測定など) を行う場合には、XFEL を分光器によって単色化しなければならない。当然ながら、この単色化によって XFEL は強度の大部分を失ってしまう。

パルスあたりの光子数をできる限り保ったまま XFEL を狭帯域化する方法として、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^[4]、LCLS において実証実験が行われた^[5]。この方法ではアンジュレータを前半・後半 2 つのセクションに分け、その間に厚さ数 100 μm のダイヤモンドの薄結晶を設置して前半のアンジュレータから放射された XFEL を透過させる。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 から数 10 fs 程度遅れて $\Delta E/E$ が小さな wake pulse が生じる。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 SASE 方式の XFEL よりも光子エネルギー広がり小さな 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、光子エネルギー広がり小さな wake pulse からレーザー発振がスタートするためである。

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法」を SACLA の BL3 において開発した (図 1)^[2]。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 を単色化する。

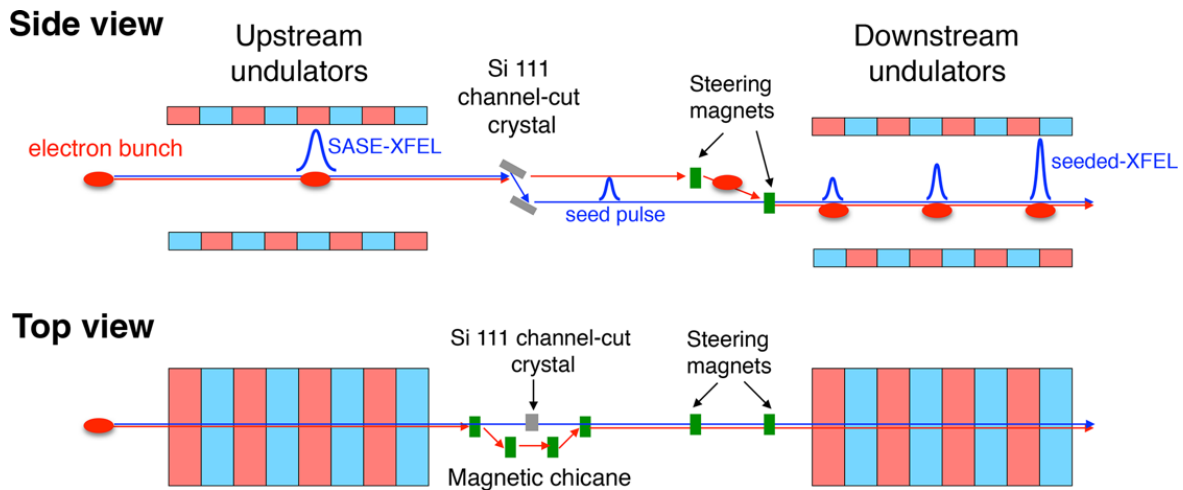


図1 SACLA BL3におけるセルフシード XFEL の発振方法の概略図。

そして、生成された単色光（シード光）から後半のアンジュレータでのレーザー増幅を開始させる。反射型セルフシード法は、透過型セルフシード法と比較して高効率にシード光を作り出すことができるという特徴があり、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（入射したXFELの強度に対する生成されるシード光の強度の比は、透過型セルフシード法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XFEL放射に伴って起こる電子ビームの質の劣化（電子エネルギーの広がり）を抑制できるようになり、高強度な狭帯域XFELを発振させることが可能になる。

反射型セルフシード法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、磁場シケインで実現できる電子ビームの遅延時間は最大300 fs

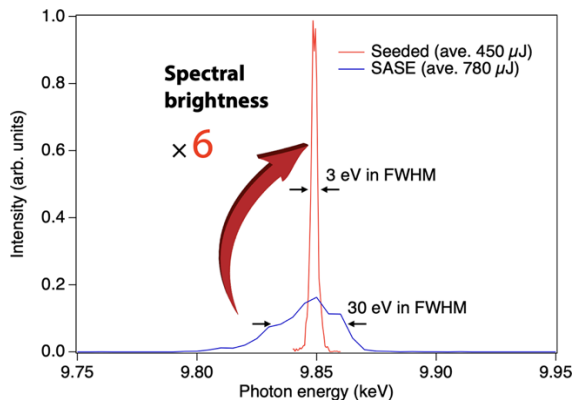


図2 通常のXFELとセルフシードXFELのスペクトルの比較。

程度である。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量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、光学遅延を100 fs程度に抑えることを実現した⁶⁾。

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月からコミッショニングを開始した。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ニングであっさり狭帯域XFELの発振に成功した。図2は、通常のXFELとセルフシード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XFELと比較して $\Delta E/E$ を約10分の1にすることに成功した。スペクトルのピーク値を比較するとセルフシードXFELの値はSASE型XFELの約6倍になっているが、これは反射型セルフシード法によって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。

3. 非線形な吸収現象を利用したセルフシードXFELの短パルス化

SACLAにおけるセルフシードXFELは、既に多くの実験に用いられている。ここでは、応用研究の例として、非線形光学効果を利用したセルフシードXFELの短パルス化について紹介する。

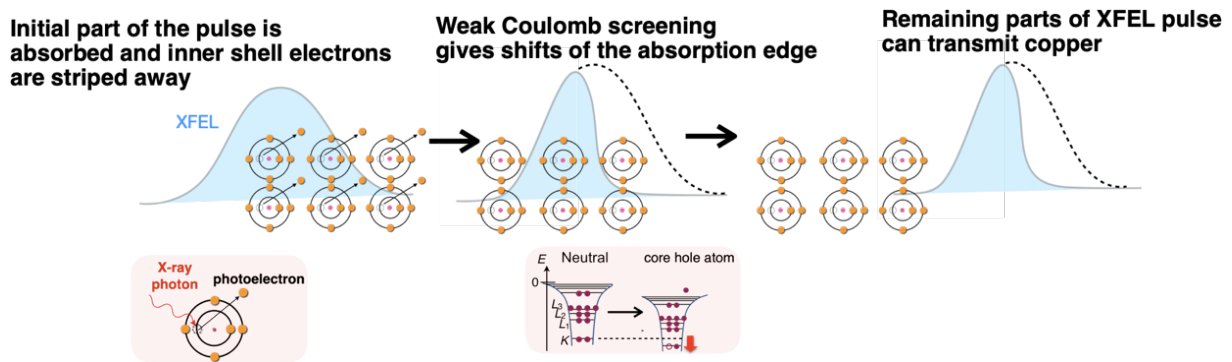


図3 ホロー原子を利用した XFEL の短パルス化のアイデア。

内殻電子の束縛エネルギー（吸収端）よりも光子エネルギーが大きな X 線が原子に照射されると、電離によって内殻に穴をもつホロー原子が生成される。このホロー原子では電気的な中性が取れておらず、原子核と電子が強くひきつけ合って吸収端がより高いエネルギーへシフトする。通常、内殻ホールはサブフェムト秒の時間スケールで埋まってしまう。しかし、 10^{19} W/cm² を超えるような非常に強い X 線強度のもとでは、物質中の大半の原子が X 線の照射中にホロー原子になる。

通常の原子とホロー原子の吸収端の違いを利用すれば、セルフシード XFEL を短パルス化することができる（図3）。そのためにはまず、XFEL の光子エネルギーが通常の状態とホロー原子の吸収端の間になるような原子を選ぶ。そして選んだ原子を含んだ物質に XFEL を入射する。するとパルスの前半部分は物質に吸収されてホロー原子が生成される一方で、後半部分はホロー原子が多く含まれるために X 線の吸収が減少する。これによってパルスの後半部分だけが選択的に物質を透過できるようになり、XFEL の時間幅が短くなる。

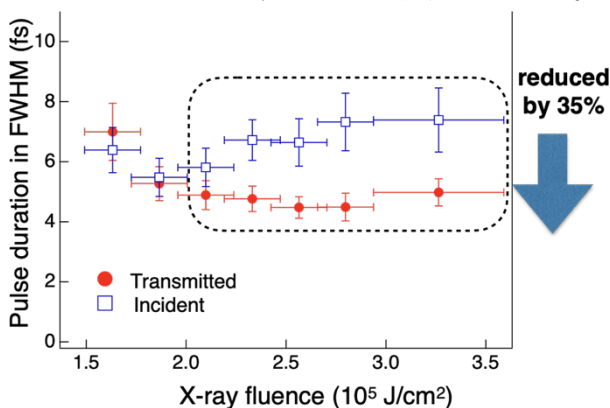


図4 銅の薄膜を透過前・透過後のセルフシード XFEL のパルス幅。

このアイデアをもとに、SACLA から出射された 9,000 keV の光子エネルギーのセルフシード XFEL の時間幅を短くすることを試みた⁷⁾。約 100 ナノメートルに集光した X 線パルスを厚さ 10 マイクロメートルの銅の薄膜に照射し、その透過光の時間幅を蛍光 X 線の強度相関計測⁸⁾によって測定した。その結果、フラックスが 2×10^5 J/cm² を超えるとパルス幅が 35% 程度短くなることが明らかになった（図4）。また、銅の薄膜を透過後のピーク強度は透過前の半分近くの値を保っており、強度を大きく損なうことなく XFEL のパルス幅を短縮できることが分かった。

詳細は他の文献^{7,9)}に譲るが、パルス幅短縮の程度は、使用する物質の厚みや XFEL の強度によって大きく変化させることができる。このホロー原子を利用したパルス幅の制御方法によって XFEL の時間幅を自在に制御することが可能になるほか、将来的にはアト秒の時間幅の XFEL を実現することが期待できる。

4. ダブルパルス XFEL

SACLA の BL3 では splitting undulator mode によって時間差を制御したダブルパルス XFEL を作り出すことができる¹¹⁾（図5）。この運転モードではアンジュレータを前半 8 台・後半 12 台に分割する。そして、前半と後半のアンジュレータギャップを異なった値にして、それぞれの区画で XFEL 発振を行うことによって波長の異なる 2 色の X 線パルスを作り出す。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ダブルパルス間の時間間隔を変化させることができる。

SACLA では真空封止アンジュレータを採用しており、ギャップを広い範囲で変化させることができる。

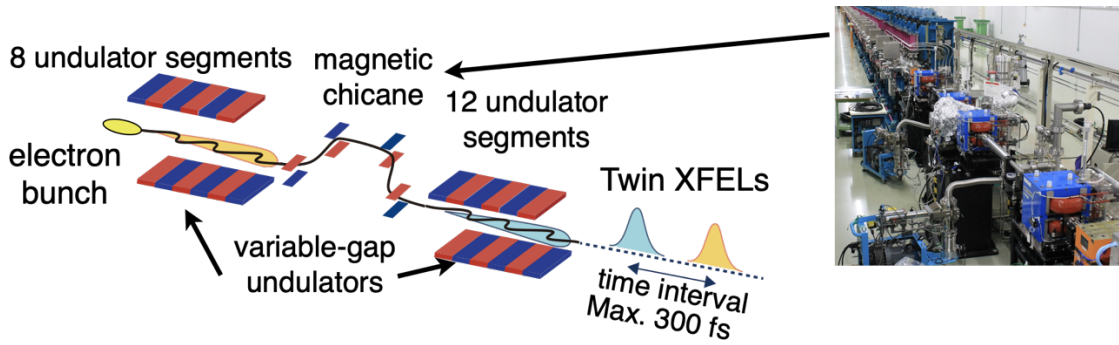


図5 SACLA BL3におけるダブルパルスXFELの発振方法の概略図。

そのため、2色の波長を最大で30%程度異なった値にすることができる。また、ダブルパルスの時間間隔のショットごとのゆらぎは1 fsよりも小さく、XFELのパルス幅(5-7 fs)^[8,10,11]と比較して十分小さいため、ダブルパルスはほぼジッターフリーな光源とみなすことができる。

最近では、アンジュレータを3つのセクションに分けて、最初の2つのセクションで上記のセルフシードを行い、最後のセクションでSASE型XFELを発振させることで、広帯域XFELと狭帯域XFELからなるダブルパルスの生成にも成功している^[3]。

5. ダブルパルスXFELを用いたX線ポンプ・X線プローブ実験

SACLAで開発されたダブルパルスXFELは、非線形光学効果の探索^[12]や異常分散を利用した構造解析^[13]などに用いられている。ここでは、著者らが行っている、高強度XFELと物質との相互作用の研究について紹介する。

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(図6)。まず、光電吸収によって原子のイオン化が起こって光電子が主に内殻から放出される。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線やオージェ電子が放出される。これらの光電子やオージェ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こり、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起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。

NeutzeらはXFELのパルス幅を数フェムト秒以下にすればパルス照射中のこれらのダメージを低減できうることをシミュレーションによって示した^[14]。さらに彼らは、XFELの光子密度を200 photons/Å²まで高めることができれば(SACLAのXFELパルスを10 nm程度に集光した場合に相当)、タンパク質を結晶化することなく構造解析できることを提唱している。XFELの短いパルスの幅を活かすことでダメージを低減させて計測を行う方式は“measurement before destruction”(あるいは回折実験を想定して“diffraction before destruction”^[15])、と呼ばれ、このコンセプトに基づいて多くの実験が現在XFEL施設で行われている。

しかし、Neutzeらのシミュレーションでは電子雪崩の影響やそれに伴う物質の電子状態の変化を考慮に入れておらず(おそらく当時の計算機能力の限界のため)、X線が引き起こす物質の変化を過小評価している可能性がある。実は、この研究から約25年経った現在でもXFELと物質との相互作用のシミュレーションを行うためには様々な近似や仮定によって計算量を現実的な値にまで抑える必要がある。そのため、XFELによって“measurement before destruction”

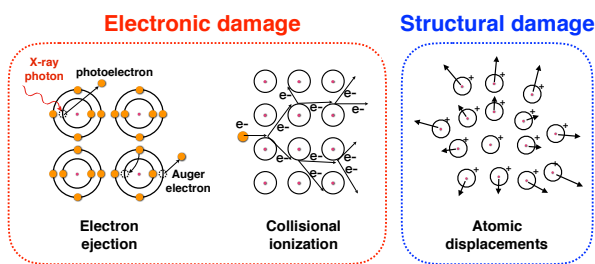


図6 XFELの照射によって生じる物質へのダメージ。

が可能になる、ということは自明ではない。

著者らは、ダブルパルスをそれぞれポンプ光・プローブ光として利用する「X線ポンプ・X線プローブ法」を開発し^[16]、XFEL 照射によって引き起こされる過渡的な物質の変化を観測してきた^[16-18]。以下ではその研究例として、ナノ集光した XFEL が照射された際のダイヤモンドの電子密度分布の時間変化について紹介する。

この研究では、ポンプ光として 200 nm のサイズに集光した光子エネルギーが 7.8 keV、パルスエネルギーが約 70 μJ、パルス幅が 6 fs の XFEL を用いてダイヤモンドを励起し、その時間変化を光子エネルギー 11.5 keV、パルス幅 6 fs のプローブ光による試料からの回折強度 (111, 220, 311, 400, 331 反射) を測定することで調べた (図 7)。図 8 は回折強度の指数間の相対値から multi-pole refinement によって求めた、原子変位と (110) 面の価電子の電子密度分布を示したものである (参考のためにダメージがない場合の電子密度分布も図に加えている)。この実験によって原子変位の増加はポンプ光照射後 20 fs までは生じないことが明らかになった。一方で、電子密度分布の変化は原子変位が生じる以前から顕在化している。例えば、ポンプ光照射後から約 10 fs 以降は、各原子の周りの価電子は等方的な分布をしている。このことは、化学結合が切断されていて各原子が周りの原子の影響をそれほど感じておらず、あたかも独立した原子のような状態になっていることを示唆している。詳細は文献^[17]で議論しているが、著者らはこれらの実験結果と理論シミュレーションによって、原子変位は電子励起がもたらす原子間ポテンシャルの変化が原因で生

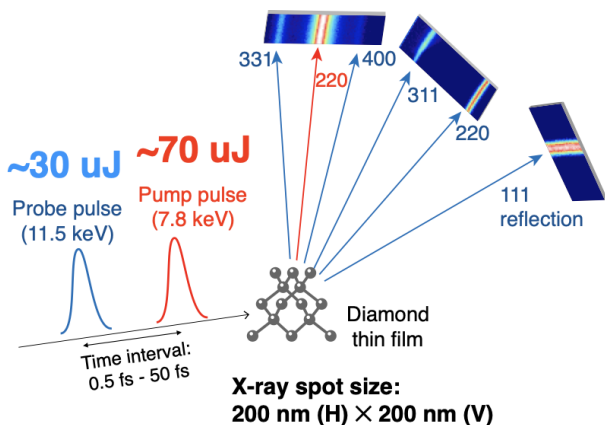


図 7 ダイヤモンドの X 線ポンプ・X 線プローブ実験。

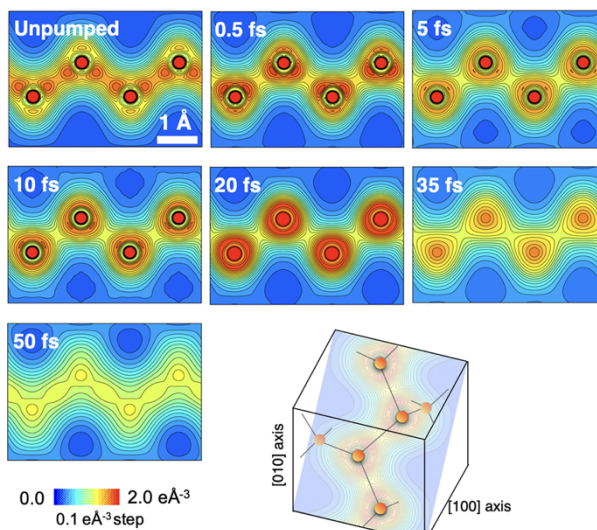
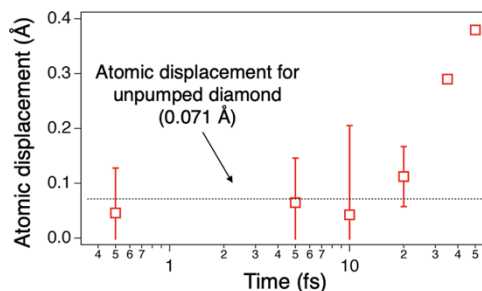


図 8 ポンプ光を照射後の原子変位と価電子の電子密度分布の時間変化。

じるものであり、原子変位が起こり始める時間は電子励起の時間スケールによって決まっていることを主張している。実験結果で興味深い点は、遅延時間が 0.5 fs の場合の電子密度分布がダメージが生じていない場合と異なっていることである。この遅延時間は XFEL のパルス幅よりも十分に小さく、ポンプ光とプローブ光は時間的にほとんど重なっている。そのため、実験結果はポンプ光の照射中でも電子密度分布の変化が起こっていることを示している。このことは、ナノサイズに集光した高強度 XFEL を物質に照射した場合には、“measurement before destruction”が成り立っておらず、原子散乱因子がパルス幅内で変化していることを示唆している。著者らは、この回折強度の非線形性を生かすことで XFEL の短パルス化を実現する研究を最近行っており、近々論文を投稿予定である。

6. おわりに

本稿では、著者らが SACLA で行った光源技術やそ

の利用技術を掻い摘んで紹介した。XFEL が実現してから約 10 年が経過し、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と言えば、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し、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。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

本稿で紹介した研究は、理化学研究所の矢橋牧名氏、大坂泰斗氏、山田純平氏 (現大阪大学)、田中均氏、原徹氏、田中隆次氏、渡川和晃氏、稲垣隆宏氏、後藤俊治氏、玉作賢治氏、石川哲也氏、JASRI の雨宮慶幸氏、登野健介氏、犬伏雄一氏、大和田成起氏、富樫格氏、大橋治彦氏、筑波大学の西堀英治教授、出口裕佳氏、笠井秀隆氏、ドイツ DESY の Beata Ziaja 教授、Victor Tkachenko 氏、Vladimir Lipp 氏、Zoltan Jurek 氏らを始めとする多くの研究者との共同研究によるものである。この場をお借りして感謝申し上げたい。

参考文献

- [1] T. Hara *et al.*: *Nature Commun.* **4** (2013) 2919.
- [2] I. Inoue *et al.*: *Nature Photon.* **13** (2019) 319-322.
- [3] I. Inoue *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **27** (2020) 1720-1724.
- [4] G. Geloni V. Kocharyan and E. Saldin: *J. Mod. Opt.* **58** (2011) 1391.
- [5] J. Amann *et al.*: *Nature Photon.* **6** (2012) 693-698.
- [6] T. Osaka *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 1496-1502.
- [7] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **127** (2021) 163903.
- [8] I. Inoue *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 2050-2054.
- [9] H. Yoneda *et al.*: *Nature Commun.* **5** (2014) 5080.
- [10] Y. Inubushi *et al.*: *Appl. Sci.* **7** (2017) 584.
- [11] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Accel. Beams* **21** (2018) 080704.

- [12] H. Yoneda *et al.*: *Nature* **524** (2015) 446-449.
- [13] A. Gorel *et al.*: *Nature Commun.* **4** (2017) 1170.
- [14] R. Neutze *et al.*: *Nature* **406** (2000) 752-757.
- [15] H. N. Chapman, C. Caleman and N. Timneanu: *Phil. Trans. R. Soc. B* **369** (2014) 20130313.
- [16] I. Inoue *et al.*: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113** (2016) 1492-1497.
- [17] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **126** (2021) 117403.
- [18] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **128** (2022) 223203.

井上 伊知郎 INOUE Ichiro

(国) 理化学研究所 放射光科学研究センター
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0802 ext 9705
e-mail : inoue@spring8.or.jp