

利用系活動報告

## 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 藪内 俊毅

### 1. はじめに

XFEL 利用研究推進室は、X 線自由電子レーザー (XFEL) 施設である SACLA 利用の高度化と汎用化を担い、SACLA における最先端の科学、応用研究を推進している。主な活動内容として、1) XFEL を利用する実験基盤や装置の整備と高度化、XFEL の利用手法の開発、2) XFEL の先端利用の開拓、3) SACLA 利用研究に対する効率的かつ効果的な支援、の3つが挙げられる。先端光源利用研究グループと先端計測・解析技術グループが連携してこれら一連の活動を実施しており、JASRI ビームライン光学技術推進室や放射光利用研究基盤センターの関連部門、理化学研究所 (理研) 放射光科学研究センター内の関連部署などとも非常に密接な連携関係にある。先端光源利用研究グループの具体的な活動については、次節以降で紹介する。

SACLA の共用運転が 2012 年に開始されてからすでに 10 年以上が経過したが、この間に SACLA を取り巻く状況は大きく変化した。世界の XFEL 施設を見ると、SACLA の共用開始当時は他に米国 LCLS が稼働していただけであったが、現在では SACLA を含めて 5 施設が稼働しており、さらに中国では 1 施設が建設中である。これら世界各地の XFEL 利用施設とは様々な面で相互協力の関係にある一方で、当然ながら競争関係にもあり、日本の科学技術や科学分野の強みなどを踏まえた上で、SACLA の特色を活かした運用と高度化を進めることが求められている。

一方で、他の XFEL 施設も含めて利用者の固定化が顕在化し始めており、利用者コミュニティの拡大や利用分野の新規開拓が共通の課題となっている。SACLA では、理研の SACLA/SPring-8 基盤開発プログラムや SACLA 大学院生研究支援プログラムの他、JASRI で行っている SACLA 試験利用などを通じてこれらの課題に取り組んでいる。本稿で紹介する事例の

一部は、これらの取り組みの成果でもある。

### 2. SACLA の利用基盤・装置の高度化と利用手法の開発

SACLA は、生命科学、物質科学、化学、原子分子光学、高エネルギー密度科学、X 線光学など幅広い分野の科学研究に活用されている。これまでに開発されてきた利用実験基盤や装置の多くは、SACLA の利用形態に即して可搬型であり、効率的に実験を行えるようユニット化されている。この背景には、SACLA の実験ハッチ (EH) の基本構成が図 1 に示すように串刺し型になっており、基本的に各実験ハッチは汎用で、その用途が特定の装置や手法に限定されないという事情がある。そのため、利用装置は実験の都度実験ハッチに設置され、利用実験に供される。他の XFEL 施設では装置や手法ごとに実験ハッチを整備し、装置は常設されていることが多く、SACLA のような装置運用をしている例は多くない。この運用では、利用効率を損なわないよう考慮した装置開発が求められるが、その点を満たすことができれば、限られたビームラインと実験ハッチにおいて、実験設計の自由度を大きく確保できるというメリットがある。ただし、この方針は必ずしも絶対視されているわけではなく、特に高い安定性が求められる装置や頻繁な移動が適切でない装置については、実験ハッチ内に常設して運用されている。全ての利用基盤・装置の開発を紹介することはできないので、ここでは近年進められてきたいくつかの特徴的な事例について紹介する。

まず初めに、SACLA の特徴の一つでもある高強度 XFEL の利用基盤について触れる。10<sup>20</sup> W/cm<sup>2</sup> に達するような非常に高い集光強度の XFEL を安定して供給できる 100 exa 集光システム<sup>[1]</sup>は、様々な X 線非線形光学<sup>[2,3]</sup>や極限環境下の科学研究<sup>[4]</sup>などに利用され、

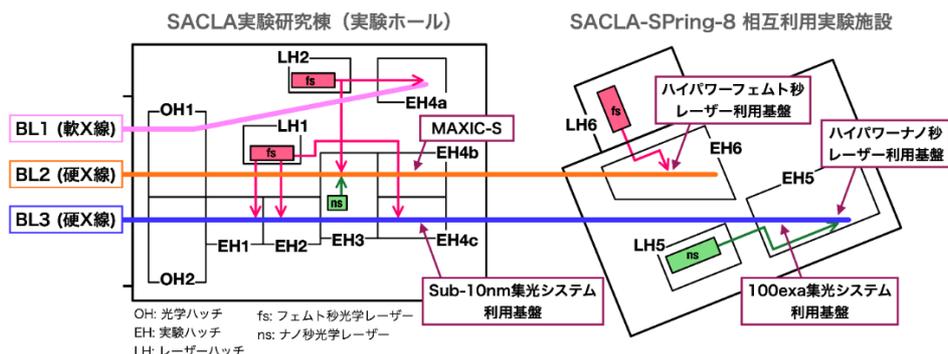


図1 SACLAのビームラインと実験ハッチの概要図。XFELは図中左側から実験ホールに輸送される。常設されている代表的な実験基盤システムについては図中に明記した。

ユニークな成果の創出を支えている。近年、より高い集光性を旨としたシステムが基盤開発プログラムなどを通して開発された<sup>6)</sup>。2022年度に共用が開始されたSub-10 nm 集光システムでは、7 nm という極めて小さな集光径が達成されている。これら2つの集光システムは利用可能な実験ハッチが固定されている。一方、硬X線用の可搬型サブミクロン集光システムの開発が現在進められている。このシステムは光学レーザーや大型検出器などと組み合わせて利用することが可能で、高強度XFEL利用の新しい展開が期待できる。

XFELの代表的な用途の一つとして、高速な現象のフェムト秒スケールでの時間分解観察が挙げられる。ポンプ・プローブ実験に代表されるこの種の実験において、誘起用のツールとして光学レーザーが広く用いられている。SACLAでは、レーザーハッチ(LH)1とLH2のmJ級の汎用光学レーザー<sup>6)</sup>やLH6の10 J級のハイパワーレーザー<sup>7)</sup>といった各種のフェムト秒光学レーザーを利用して実験できる。これらの実験では、XFELとフェムト秒レーザーが試料に到達する時刻を精密に制御することが求められる。近年、汎用光学レーザーの時間同期システムの高度化と時間同期モニタシステムの高度化が進展し、50 fs程度の時間同期精度を長時間にわたって達成している。励起用の光学レーザーとしては、ナノ秒のパルス幅を持ったレーザー群とその利用環境も整備されており、最大エネルギーが数十mJ程度の汎用小型レーザー(EH3内)と、LH5の10 J超級のハイパワーナノ秒レーザーが利用できる<sup>8)</sup>。

昨今のデジタルトランスフォーメーション(DX)の

流れに関連した取り組みについても簡単に紹介する。近年、SACLA加速器の日常的な運転には機械学習を活用した自動調整が取り入れられている<sup>9)</sup>。この自動調整を一層活用するべく、新しい設計のインライン分光器<sup>10)</sup>を2つの硬X線ビームラインに導入した。その取得データを用いて加速器の調整を行うことで、各利用実験に最適化されたスペクトルを持ったXFELの発生が可能になりつつある。また、各実験の前に行うビームライン調整に関しても、XFELの特性測定や輸送ミラーによる光軸の調整などの一連の定型作業は自動化が完了している。このような自動化は、オペレーターの負荷を軽減するだけでなく、XFEL特性の調整能力や再現性の向上にも寄与しており、実験の効率化や高精度化にも結びついている。

DX化に関連する別の事例として、リモート実験の実現に向けた実験基盤整備がある。SACLAは全利用者に占める海外機関所属者の割合が4割程度と比較的高い。2020年度に発生した新型コロナウイルス感染症の拡大とそれに伴う人的移動の制限は、特に海外の利用者に非常に大きな影響を及ぼした。このような事態を受け、SACLAにおける研究活動を長期間にわたって停滞させないことを第一の目的として、リモート実験手法の確立にむけた技術開発が進められた。関係各所から多大な協力をいただいた結果、最初のリモート実験が2021B期に海外のグループによって行われた。このリモート実験システムの開発の詳細については、別の記事<sup>11)</sup>を参照いただきたい。

### 3. XFELの先端利用手法と利用分野の開拓

本グループでは、実験基盤や装置、実験手法の開発

および高度化と並行して、XFELの新しい利用手法や利用分野の開拓も展開している。ここでは、その活動からいくつかの事例を紹介する。

自己増幅自発放射により生じるXFELは、パルスごとに異なるスペクトル構造を持つ。そのため、特にサンプルが破壊されるような実験においてX線吸収分光を行うにあたっては、シングルショットで信号スペクトルと参照スペクトルを取得することが強く求められる。これを実現するため、XFELを空間的に分解して信号と参照スペクトルを同時に取得するシングルショット分光器の利用が提案され、ハイパワーレーザー実験に適用された<sup>[12]</sup>。これにより、パルス毎のスペクトル変動についての課題を克服し、ハイパワーレーザー照射領域の電子特性を吸収分光法により観察することが可能であることが示された。

凝縮系物質科学の分野において、物質中の現象を理解し、制御することは重要な課題とされている。XFELを用いた高速な時分割測定はそのための優れた手段と考えられる。ただし、100 K以下のような低温の環境でポンプ・プローブ実験を行うには、低温試料環境を維持しつつ、光学レーザーとXFELが同時に透過できる窓材を用いる必要がある。適切な窓材を用いることで10 K以下の低温環境において時間分解X線回折実験を行えるようにし、ビスマスの光誘起コヒーレントフォノンの超高速原子運動を観測することに成功した<sup>[13]</sup>。

溶液中での化学や生命科学の様々な光反応は、溶質と溶媒の相互作用に影響されるため、溶媒のダイナミクスを理解することが重要となる。XFELを用いた発光分光と散乱の同時計測を可能にする実験システムを構築し、この溶媒の構造ダイナミクスを明らかにすることに成功した<sup>[14]</sup>。この計測手法により、光誘起される溶質と溶媒が密接に関連しており、光吸収が溶媒によってどのように影響を受けるかを、原子レベルの時空間スケールで議論できるようになった。

#### 4. SACLAの利用研究事例と支援の効率化

SACLAで行われている利用研究の事例とその利用支援の効率化に関して、近年行われた利用研究の中から特徴的な分野についていくつか紹介する。

XFELで行われる結晶構造解析は、XFELの短パルス性によって放射線損傷の影響を抑制できるのが特

徴である。この種の研究で現在最も注目されているターゲットの一つは光化学系II(Photosystem II: PSII)である。光化学反応過程におけるPSIIの中間体構造を時分割して観測する取り組みは複数の利用者グループにより活発に行われ、優れた成果が報告されている<sup>[15, 16]</sup>。結晶構造解析実験を効率的に行うため、汎用システムとしてDAPHNIS<sup>[17]</sup>がSACLAには整備されている。また、XFELの高コヒーレントな特性を活かして2次元回折像から位相回復法により試料の電子密度を再現するコヒーレント回折イメージングの実験基盤として、EH4bに常設されているMAXIC-Sがある。この基盤では100 nm級まで集光された高フルエンスなXFELパルスを利用可能で、2 nmの優れた空間分解能で試料の電子密度情報を再現することに成功しており<sup>[18]</sup>、溶液中の金ナノ単一粒子の3次元構造の再現なども行われた<sup>[19]</sup>。

XFELの短パルスかつ高輝度な特性と超短パルス光学レーザーを活用したポンプ・プローブ実験は非常に広いターゲットに対して行われている。超高速化学の分野においては、この分野に特化した共用基盤であるSPINETT<sup>[20]</sup>を活用することで効率的に実験が実施されている<sup>[21]</sup>。超高速物質科学の分野に関しては、多軸回折計と必要に応じて試料冷却装置を組み合わせた実験が硬X線FELビームラインで行われている<sup>[22]</sup>。物質科学分野では、軟X線FELビームライン(BL1)でも活発に利用研究が行われている<sup>[23]</sup>。BL1では、利用者が装置を持ち込んで実験するか、SACLA基盤開発プログラムを通じて開発されたスピントロニクスを中心とした実験装置などが利用できる。

ポンプ・プローブ実験に関連する近年の主な動きとしては、励起源の多様化があり、SACLA/SPRING-8基盤開発プログラムの下でも活発に開発が進められている。例えば生命科学分野におけるタンパク質ターゲットに関しては、光学的刺激に反応するターゲットは限られるため、基質・リガンドの添加や温度、pHなどの外部刺激によって誘起される現象を時分割測定する手法の開発が進められている。また、物質科学分野であれば、100 T級のパルス強磁場環境下での物質状態を測定することを目指した装置開発が進められており、これまでに77 Tの外部磁場によって誘起される物質状態が観測されている<sup>[24]</sup>。光学的な励起であ

っても、励起光源の波長域の拡張が利用者から期待されているため、中赤外領域やテラヘルツ領域の光源開発にも取り組んでいる。

ハイパワーレーザーが照射された物質を XFEL により超高速に観察するための実験基盤<sup>7,8)</sup>では、レーザー加工に関連する研究<sup>25)</sup>から、天体・惑星科学に関連する極限環境下の物質状態診断<sup>26,27)</sup>まで、広いトピックが扱われている。これらの実験は基本的に低いショットレートかつシングルショットベースで行われるため、実験の効率化とデータ信頼性向上にはレーザーの照射再現性の向上が極めて効果的である。そのため、レーザー装置の安定化を精力的に進めている。

極限集光 XFEL を利用できることは SACLA の大きな特色であるが、このような集光システムは調整に長い時間を要するという課題があった。これを克服するため、Sub-10 nm 集光装置の利用研究の開始にあたって新たに波面計測を活用した自動集光調整手法<sup>5)</sup>が開発された。その結果、極限集光 XFEL を利用した実験の効率が大きく改善し、更なる成果の創出につながっている<sup>4,28)</sup>。

#### 4. おわりに

冒頭でも記したように、SACLA を取り巻く環境は共用開始当時に比べて大きく変化している。XFEL 施設が増えた影響もあり、最近の利用研究成果には複数の XFEL 施設の実験結果を統合したものも目立ってきている。このような状況において、他の XFEL 施設との差別化は一層重要である。また、SPring-8-II のような第 4 世代放射光施設との共存のあり方についても検討が必要である。SACLA の独自性を高いレベルで維持するため、優れた精密光学素子とその活用技術に基づく高強度 X 線の更なる応用や、開発の進む高ダイナミックレンジ 2 次元大面積検出器の活用、新たな励起源を使ったポンプ・プローブ実験の展開などを推進する。

このような先端利用を推進すると同時に、一層高いレベルの安定性と再現性を持って利用運転を継続することも重要である。確立された利用基盤・手法については汎用化を進め、利用者コミュニティの拡大に繋げる。実験基盤や装置の性能、限られたリソースを最大限に活用していくための環境改善を進めることも必要である。すでに、並行運用している 2 つの硬 X 線

ビームラインの利用効率化に向けた活動を開始している。SACLA の存在価値を高め、高いレベルで競争力を維持するための取り組みを、SPring-8 やその他外部機関と連携して推進していく。

#### 参考文献

- [1] H. Yumoto *et al.*: *Appl. Sci.* **10** (2020) 2611.
- [2] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **127** (2021) 163903.
- [3] Y. Zhang *et al.*: *PNAS.* **119** (2022) e2119616119.
- [4] P. Heimann *et al.*: *Struct. Dyn.* **10** (2023) 054502.
- [5] J. Yamada *et al.*: *Nat. Photon.* (2024).
- [6] T. Togashi *et al.*: *Appl. Sci.* **10** (2020) 7934.
- [7] T. Yabuuchi *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **26** (2019) 585.
- [8] Y. Inubushi *et al.*: *Appl. Sci.* **10** (2020) 2224.
- [9] E. Iwai *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **30** (2023) 1048.
- [10] I. Inoue *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **29** (2022) 862.
- [11] 宮西宏併他: SPring-8/SACLA 利用者情報 **27** (2022) 282.
- [12] Y. Inubushi *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **92** (2021) 053534.
- [13] Y. Kubota *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **122** (2023) 092201.
- [14] T. Katayama *et al.*: *Chem. Sci.* **14** (2023) 2572.
- [15] A. Bhowmick *et al.*: *Nature* **617** (2023) 629.
- [16] H. Li *et al.*: *Nature.* **626** (2024) 670.
- [17] K. Tono *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **22** (2015) 532.
- [18] H. Yumoto *et al.*: *Nat. Commun.* **13** (2022) 5300.
- [19] M. Nakano *et al.*: *Optica.* **9** (2022) 776.
- [20] T. Katayama *et al.*: *Struct. Dyn.* **6** (2019) 054302.
- [21] J. G. Kim *et al.*: *Nature.* **582** (2020) 520.
- [22] Q. L. Nguyen *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **131** (2023) 076901.
- [23] K. Yamamoto *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **116** (2020) 172406.
- [24] A. Ikeda *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **120** (2022) 142403.
- [25] L. Randolph *et al.*: *Phys. Rev. Res.* **4** (2022) 033038.
- [26] T. Okuchi *et al.*: *Nat. Commun.* **12** (2021) 4305.
- [27] K. Katagiri *et al.*: *Science.* **382** (2023) 69.
- [28] I. Inoue *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **131** (2023) 163201.

藪内 俊毅 YABUUCHI Toshinori

(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 ex. 7885  
e-mail : tyabuuchi@spring8.or.jp