

波長可変型硬 X 線分割・遅延光学系の開発： 現状と将来展望

大坂泰斗

理化学研究所放射光科学総合研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

要旨 X線光子相関分光法や X線ポンプ・X線プローブ法による、フェムト秒からナノ秒時間領域のダイナミクス測定を目指し、シリコン完全結晶を利用した硬 X線分割・遅延光学系を開発している。1つの X線パルス光を厚み約10 μm の極薄シリコン結晶により分割し、それぞれ異なる光路を伝播させた後、再び極薄結晶により同一光軸上に結合させる。一方の光路長を可変とすることで、遅延時間をゼロから最大約200 psに至るまで高精度に制御可能である。本稿では、光学系のコンセプトや結晶素子の作製、SACLAにおける評価実験に関して紹介し、X線光子相関分光法等、超高速ダイナミクス測定への応用可能性を示す。

1. はじめに

X線自由電子レーザー (X-ray Free-Electron Laser, XFEL) の硬 X線領域での発振が日本の SACLA (Spring-8 Angstrom Compact free-electron LAser)¹⁾ や米国の LCLS (Linac Coherent Light Source)²⁾、韓国の PAL-XFEL において実現し、ドイツの European XFEL やスイスの SwissFEL 等、世界各国で XFEL 施設の建設が進んでいる。空間コヒーレンス度の高い、波長が約 1 Å、パルス幅が数フェムト秒の XFEL を利用することで、原子・分子空間スケールの超高速なダイナミクスが測定可能となり、近赤外から近紫外領域の励起光照射を発端とした構造相転移³⁾ や化学反応⁴⁾ 等、これまで解明されていなかった超高速現象の過程が明かされつつある。更に、電子ビームを制御する分割アンジュレータ法⁵⁾ やツインパンチ法⁶⁾ によって、数百 fs に及ぶ時間差を有する 2色・2パルス XFEL の発生も実現しており、XFEL 照射による損傷過程の測定も報告されている⁷⁾。このように、測定対象の多くは外部刺激によって励起された現象であるが、原子・分子スケールの自発的なダイナミクスをも対象とすることで、XFEL による固体や軟体材料中の熱揺らぎの研究、生体分子のダイナミクスや化学的機能との相関の研究等、新たな研究領域の創出が期待される。

2. ダブル X 線パルス光による X 線光子相関分光法

本号の篠原佑也氏や星野大樹氏の記事にあるように、X線光子相関分光法 (X-ray Photon Correlation Spectroscopy, XPCS)⁸⁾ は、コヒーレントな X線を利用した自発的なダイナミクスの空間・時間スケールを評価可能な手

法である。しかし、一般的に対象となる時間領域は検出器のフレームレートや X線光源の繰り返し周波数によって制限され、多くはミリ秒よりも遅い時間領域 (速いものでサブマイクロ秒) を対象としている。これらの制限を突破し、より速い時間領域をカバーするため、2つの X線パルス光を利用した XPCS 法が提案されている⁹⁾。遅延を有する 2つの X線パルス光を試料に照射し、それぞれからのスペックル像を 2次元検出器によって 1フレームで取得する。両パルス光の照射位置や光特性が同一の場合、遅延時間内に動きのあった空間スケールに相当する散乱角領域において、各パルス光によるスペックル像が異なったものになることでスペックルのコントラストが低下する。従って、パルス光間の遅延時間に対するコントラスト変化を解析することで、X線のパルス幅 (XFEL の場合数フェムト秒) から X線パルス光間の最大時間差までの時間領域における自発的なダイナミクスを評価可能である。

ダブルパルス XPCS 法を実現する上で、遅延時間を有する、空間・時間・周波数特性の同一な ‘レプリカ’ X線パルス光の利用が必要不可欠である。また、微小な空間スケールに相当する大きな散乱角領域においてもコントラストの高いスペックル像を取得するためには、大きな縦コヒーレント長が要求される。ここで要求される縦コヒーレント長を簡単に見積る。散乱ベクトル q と散乱角 2θ との間には次のような関係がある。

$$q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} \quad (1)$$

λ は入射光の波長である。例えば、波長 $\lambda = 1 \text{ \AA}$ の X線を用いて $q = 2\pi \text{ \AA}^{-1}$ の構造を見る場合、散乱角 2θ は 60° となる。ビームサイズを D とおくと、試料中の異なる 2点

からある検出点までの最大光路長差 Δl は次のように見積もられる。

$$\Delta l \sim D \sin 2\theta \quad (2)$$

ビームサイズ $D = 1 \mu\text{m}$ とすると、最大光路長差 Δl は約 $0.87 \mu\text{m}$ となり、時間に換算すると約 2.9 fs となる。ここで、バンド幅 ΔE の矩形スペクトルを仮定すると、コヒーレント時間 τ_{coh} は以下のように定義出来る¹⁰⁾。

$$\tau_{\text{coh}} = \frac{h}{\Delta E} \quad (3)$$

($h = 4.14 \times 10^{-15} \text{ eVs}$ は Planck 定数)。これは、時間差 τ_{coh} の2つの光波が作る干渉縞のコントラストがゼロとなることに相当する。従って、この場合 $\tau_{\text{coh}} > 2.9 \text{ fs}$ を満たす必要があり、バンド幅 $\Delta E < 1.4 \text{ eV}$ ($\Delta E/E < 1.1 \times 10^{-4}$) の単色性が要求される。前述した電子ビーム制御による2パルスXFEL発生法では、遅延時間範囲が制限されるだけでなく、原理上単色性の高いレプリカXFELパルス光の発生は困難であり、別の仕掛けが必要となる。これ以降、光子ビームを制御する分割・遅延光学系 (Split-and-Delay Optics, SDO) に関して紹介する。

3. 完全結晶を利用した硬 X 線分割・遅延光学系

SDO とは、1つのパルス光をビームスプリッターにより分割し、それぞれ異なる光路を伝播させた後、ビームミキサによって同一光軸上、もしくは同一点に再結合させる光学系である。分割パルス光間の遅延時間は各光路長の差のみによって決定され、光源や電子機器のジッターの影響が無い。また、光路長差を可変とすることで、連続的かつ高精度に遅延時間を制御することが出来る。硬 X 線領域の分割・遅延光学系として、多層膜ミラー¹¹⁾ や位相回折格子¹²⁾ を利用した光学系が提案、構築されているが、本稿ではナノ秒に迫る大きな遅延時間生成が可能で、かつ単色化性能の高い、完全結晶を利用した SDO に着目する。硬 X 線のモノクロメータとして広く利用されている完全結晶を用いることで、単色化のみならず、他の素子と比べ X 線の偏向角を大きく変えることが出来るため、コンパクトな光学系でもナノ秒に至る遅延時間を生成可能である。

完全結晶を利用した硬 X 線 SDO は、ドイツの DESY に所属する Grübel らのグループによって世界で初めて提案、構築された¹³⁾。彼らの光学系では、ビームスプリッター/ミキサとして機能する厚み数 μm の薄いシリコン結晶2つ、並びに軌道変更のための反射素子として厚い結晶6つの計8つの結晶が用いられている。結晶面間隔を d とすると、Bragg の式は

$$2d \sin \theta_B = \lambda \quad (4)$$

と表される。この Bragg 角 θ_B が 45° (散乱角 $2\theta_B = 90^\circ$) となるような X 線の波長と結晶面を選択することで、各分割パルス光は同回数の反射、透過を経て矩形の光路を通り、同一光軸上に再結合される。4つの結晶 (各分割パスから2つずつ) が固定されたベースプレートを鉛直方向に走査することで両光路長を同時に変化させ、1軸制御による遅延時間調整を可能とした。散乱角が 90° であることから、光軸方向に 1 m 未満のスペースで最大約 3 ns の遅延時間を生成可能である。また、両方の分割パスに光学的な遅延がつくため、遅延時間ゼロへのアクセスも可能である。

本光学系の最大の制約は、波長 1 \AA 付近の硬 X 線に対して $\theta_B = 45^\circ$ を満たす必要があることである。この制約により、Si(511) 等の高次の結晶面を利用する必要があり、利用可能な X 線エネルギーも離散的になる。例えば Si(511) の場合、X 線エネルギー E は 8.39 keV ($\lambda = 1.47 \text{ \AA}$) に限定される。式(4)からもわかるように、より短い波長の X 線を利用する際は、更に高次の (d の小さな) 結晶面を選ぶ必要がある。一般的に高次結晶面の利用は高い単色化性能を示すが (この場合バンド幅 $\Delta E \sim 70 \text{ meV}$)、最終的なフラックスは小さくなる。また、8つもの独立した結晶素子を用いていることで、素子のアライメントは困難となり、ビームスプリッター/ミキサである極薄結晶の残留歪みの影響も相まって、実用レベルには至らなかった。

4. 波長可変型硬 X 線分割・遅延光学系

4.1 概要

このような歴史的背景のもと、我々は波長可変、高効率かつアライメントの容易な硬 X 線 SDO を提案した。概略図を Fig. 1 に示す。Grübel らの光学系と同様、極薄シリコン結晶であるビームスプリッター (BS) によって、独立な光路長可変パス (反射側) と光路長固定パス (透過側) とを伝播する2つの X 線パルス光に分割する。光路長可変

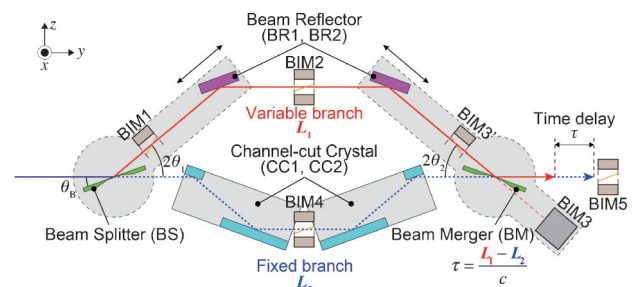


Fig. 1 (Color online) Schematic drawing of hard x-ray split-and-delay optics with Si(220) perfect crystals. Pulse energies at several points are measured with beam intensity monitors (BIMs), which consist of a thin polyimide film and one or two photodiodes.

パスでは、 2θ アーム上に設置した、厚い結晶である反射素子 (BR1/BR2) によって軌道を変化させ、再び極薄結晶であるビームミキサ (BM) によって元の光軸上に戻す。ここで、BR1/BR2 をそれぞれ 2θ 方向に走査することで光路長を変化させ、遅延時間を調整する。また光路長固定パスでは (+, -, -, +) 配置の 2 つのチャンネルカット結晶 (CC1/CC2) によって 4 回反射することで、光学遅延をつけた後、元の光軸上に戻す。

各結晶素子の入射角 ω 、並びに走査軸角度である 2θ に自由度を与えることで、広い波長範囲をカバーする。各分割パスが独立しているため、2 色・2 パルス XFEL 発生モードとの併用も可能である。また、 $\Delta E/E = 5.6 \times 10^{-5}$ である Si (220) を利用し、要求される単色性を満たしつつ、高効率化を達成する。更に、本光学系の最大の特徴と言えるが、モノリシックな結晶で 2 回の反射を行うチャンネルカット結晶を利用することで、光路長固定パスを伝播する分割パルス光の光軸は入射光軸との平行性が保たれる。従って、分割パルス光の光軸調整は光路長可変パスに対してのみ行えば十分であり、素子アライメントの劇的な簡略化が可能である。

本光学系において、X 線エネルギー範囲はチャンネルカット結晶の寸法によって、遅延時間範囲は $2\theta_B$ の角度や 2θ アーム上のリニアステージのストロークによって制限される。プロトタイプとして構築した SDO¹⁴⁾ の X 線エネルギー範囲は 6.5 keV から 11.5 keV である。また、ストロークが 70 mm のリニアステージを用いており、遅延時間範囲は $E = 10$ keV において -50 ps から 47 ps、 $E = 6.5$ keV においては最大約 200 ps の遅延時間を生成可能である。リニアステージの最小ステップは 250 nm であるため、全エネルギー範囲において 1 fs 以下の遅延時間ステップが達成される。

4.2 結晶素子

本光学系の応用展開、特に XPCS 法のような高い空間コヒーレンス度を前提とした手法には、波面を乱さない結晶素子の利用が重要である。XFEL の波面を乱しうる結晶素子は、BS/BM である極薄結晶とチャンネルカット結晶である。厚み数 μm の無歪極薄結晶の作製が難しい事は想像に難くない。チャンネルカット結晶は古くから利用されている有用な素子ではあるが、内壁面の高精度研磨が難しく、反射面に残存したスクラッチや表面粗さによるスベックルが生じる。そのため空間コヒーレンス度の重要な実験への利用は避けられていた。

筆者は、大気圧下で発生させたプラズマによる局所的エッチング手法 (Plasma Chemical Vaporization Machining, PCVM)¹⁵⁾ を利用し、高品質極薄結晶の作製¹⁶⁾、チャンネルカット結晶の平滑無歪化¹⁷⁾ を行った。加工プロセスの詳細は参考文献に任せ、ここでは SPring-8 BL29XUL の EH4¹⁸⁾ において行った結晶性評価結果を示す。この実験

ハッチはアンジュレータから約 1 km 下流に位置しており、横コヒーレント長が 10 mm オーダーの X 線が利用可能である。また、発散角をマイクロラジアンレベルに抑えつつ、大きなビームを利用できるため、結晶素子の評価には最適である。

極薄結晶の評価として (+, -) 平行配置による反射 X 線トポグラフィとロッキングカーブ測定を行った。X 線エネルギーは 10 keV であり、Si (220) 回折を利用した。なお、結晶薄化部の厚みは約 12 μm である。Fig. 2(a) に示すロッキングカーブは計算値とよく一致しており、光学系や結晶のミスカット起因の誤差程度しか確認されない。さらに、ロッキングカーブの各位置で X 線トポグラフィを計測し、歪みの空間分布を結晶面のスロープ誤差相当として求めた結果を Fig. 2(b) に示す。SACLA のビームサイズを想定した $0.5 \times 0.5 \text{ mm}^2$ の範囲内ではスロープ誤差は約 0.5 μrad (P-V) であり、二結晶法による評価では歪みの影響は無視できると言える。ただし後述するように、光源から極薄結晶素子までの距離が大きな実験配置において集光光学系と併用する際、このわずかなスロープ誤差でも焦点位置が変化し問題となる。スロープ誤差は 0.3 μrad 以下に抑える必要があると見積もられており¹⁹⁾、更なる加工精度の向上に取り組んでいる。

チャンネルカット結晶の評価として、4 回反射後の X 線プロファイルを測定した。Fig. 3 に PCVM 処理前後での

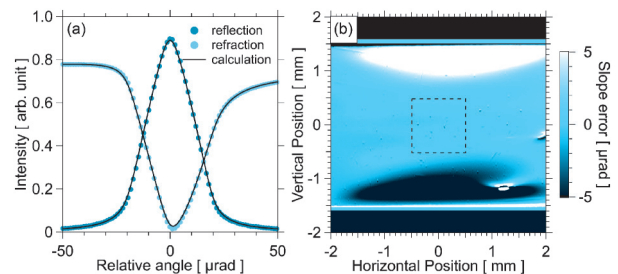


Fig. 2 (a) Measured rocking curve of a 12 μm -thick Si (220) crystal and (b) distribution of slope errors. Dashed rectangle in Panel (b) corresponds to the x-ray illumination area of 1 mm^2 at the rocking curve measurement.

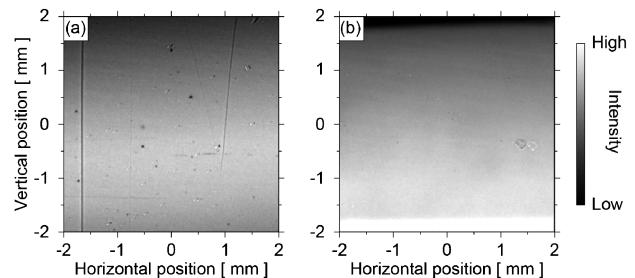


Fig. 3 Four-bounced x-ray topographs of Si (220) channel-cut crystals measured (a) before and (b) after PCVM treatment. Almost same area of the channel-cut crystals was illuminated in both measurements.

反射 X 線プロファイルを示す。X 線の光子エネルギーは 10 keV であり、ほぼ同一の領域に X 線を照射して測定した。PCVM 処理前には多くのスクラッチや欠陥由来のコントラストが確認できるが (Fig. 3(a)), PCVM により内壁反射面の表層 3–4 μm を除去することで、Fig. 3(b) に示すようにそのようなコントラストは消失し、均一な反射 X 線プロファイルが得られている。また、表面粗さは $71 \times 53 \mu\text{m}^2$ の範囲で 1 nm (rms) 以下と、一般的なエッチングプロセスでは困難な平滑面が得られている。

5. SACLA における性能評価

5.1 実験配置

上記の結晶素子を用いて、SACLA の BL3²⁰⁾において、SDO システムとしての性能評価試験を実施した。実験配置を Fig. 4 に示す。X 線エネルギーは 10 keV とし、Si (111) 二結晶モノクロメータによって単色化した XFEL を利用した。アンジュレータ下流端から約 100 m に位置する EH2 に SDO を配置した。調整機構は汎用精密ステージを組合せて構築した。各結晶間には Fig. 1 のようにカプトンフィルムを利用した透過型強度モニタ (BIM1–5) を配置しており、EH4c に常設されている強度モニタ (BIM_{EH4c})²¹⁾ も利用してショット毎の強度やその相関を評価した。BIM2 と BIM4 を水平方向に平行移動させることで、各分割パルス光のビームストップとしても利用した。結晶 BM の下流約 0.4 m、16 m に高空間分解能の間接照明型 2 次元検出器 (BPM1, 2) を配置し、光路長可変パスのアライメントに利用した。EH4c に常設されている 1 μm 集光ミラー²²⁾によって分割パルス光を集光し、径 200 μm の金ワイヤによって明視野ナイフエッジスキャンを行い、分割パルス光の集光位置やプロファイルを測定した。なお、集光ミラーは光路長固定パスからの分割パルス光を利用して調整した。また、集光点下流に配置した X 線ストリークカメラ (HAMAMATSU, C4575-03) によって、

分割パルス光間の遅延時間を測定した。

5.2 分割パルス光の強度測定

XFEL の発振に利用されている自己増幅自然放射 (Self-Amplified Spontaneous Emission, SASE) の原理上、XFEL のスペクトルは多数のスパイク構造を有しており、その強度や分布はショット毎に大きく変化する。特に結晶素子等により単色化させた際、その影響は顕著となり、各分割パルス光の強度をショット毎に測定する必要がある。2 色モードで発生させた、同軸上を伝播する 2 パルス XFEL の強度を測定するため湾曲結晶や多結晶ダイヤモンドフィルムを利用した、分光器ベースの強度モニタが開発されている^{23,24)}が、パルス間に数 eV 以上の光子エネルギー差が要求される。完全結晶を利用した SDO の場合、両者の光路を空間的に大きく分離することが出来るため、エネルギー差に依らずショット毎の強度測定が可能だと考えられる。ここでは BIM2, BIM4, そして BIM_{EH4c} の 3 箇所測定したパルス強度の相関を示すことで、強度測定の実現可能性や精度を評価する。

BIM2 と BIM4 で測定した強度の相関を Fig. 5(a) に示しており、ほぼ無相関であることが分かる。分割素子として利用した厚み約 12 μm の結晶では分割パルス光のスペクトルを重複させる事が出来ず、約 0.7 eV の中心エネルギー差を有している。これは SASE のスペクトルスパイクの幅と同等以上²⁵⁾であることから、各分割パルス光は異なるスペクトルスパイクを拾っており、強度の相関がないと考えられる。この結果からもショット毎の強度測定の重要性が伺える。

次に、片方の分割パルス光をビームストップにより遮断して、BIM2/BIM4 と BIM_{EH4c} で測定した強度の相関を Figs. 5(b), 5(c) に示す。なお、BIM_{EH4c} で測定した平均強度は光路長可変、固定パスそれぞれ 0.46 μJ , 0.30 μJ である (SASE の平均強度は光学ハッチ最上流において約 450 μJ)。BIM4 と BIM_{EH4c} との間に高い線形性が確認された。

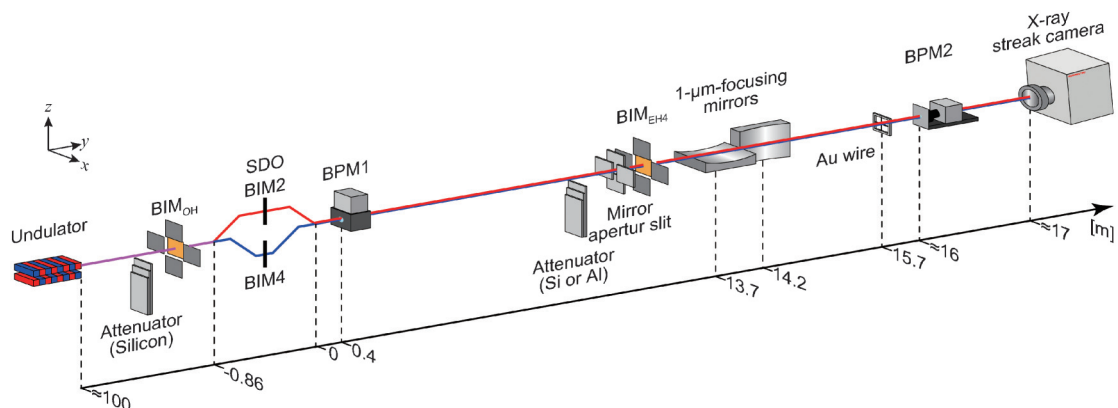


Fig. 4 (Color online) Schematic drawing of experimental setup at BL3 of SACLA. Scales show the distance from the BM crystal.

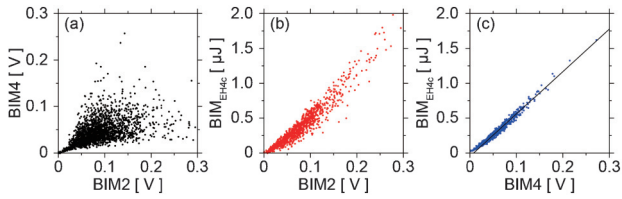


Fig. 5 (Color online) Intensity correlations between (a) BIM2 and BIM4, (b) BIM2 and BIM_{EH4c} , and (c) BIM4 and BIM_{EH4c} .

BIM4 は光路長固定パスを伝播する分割パルス光の相対強度 (I_{fix}) を、 BIM_{EH4c} では集光ミラーの開口内での両分割パルス光の絶対強度和 (I_{sum}) を測定可能である。両者に線形性が見られることから、X 線エネルギー差が十分小さい時、

$$I_{var} = I_{sum} - CI_{fix} \quad (5)$$

の関係式を用いて両分割パルス光の絶対強度を測定することが可能である。ここで I_{var} は集光ミラー開口内での光路長可変パスを伝播する分割パルス光の絶対強度であり、 C は比例定数である。BIM4 と BIM_{EH4c} との相関において、フィッティング直線からの相対誤差は標準偏差で 6.7% であることから、およそ $\pm 10\%$ の精度でサンプル上での絶対強度をショット毎に測定可能であると考えられる。なお、独立な結晶 BR2, BM の入射角誤差や極薄結晶に残留したわずかな歪みによって BIM2 と BIM_{EH4c} との相関が悪化したと考えられる。

5.3 遅延時間測定

SDO の利用実験において最も重要なパラメータの 1 つである遅延時間を、X 線ストリークカメラにより測定した。結晶 BR1/BR2 をリニアステージにより移動させ、各分割パルス光の集光位置が重複するように結晶の角度を調整した後、遅延時間を測定した。ストリークカメラの測定例を Fig. 6(a) に、結晶の移動距離 Δs ($\Delta s = 0$ は初期結晶位置) に対する遅延時間を Fig. 6(b) に示す。各分割パルス光に相当するピークの時間プロファイルは XFEL の時間プロファイルではなく、ストリークカメラのインパルス応答である。時間幅は半値全幅で 2–3 ps であり、ストリークカメラの有効時間分解能に相当する。しかし複数点のデータを用いることで、遅延時間変化の線形性や遅延時間ゼロをより精度良く導出可能である。測定した遅延時間のフィッティング直線からの誤差も Fig. 6(b) に示しており、 ± 100 fs の範囲に収まっている。従って、ストリークカメラを利用することで 100–200 fs の精度で遅延時間を決定することが可能である。ここで注意するが、フィッティング直線からの誤差はストリークカメラのピクセル分解能 (~ 0.5 ps) よりも十分小さな値であることから、測定・解析誤差由来であり、SDO の遅延時間調整精度は更に高

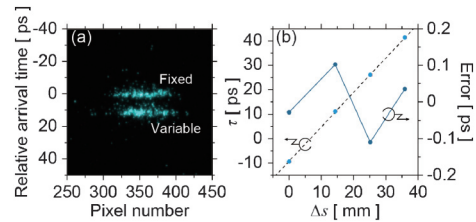


Fig. 6 Results of time delay measurements with an x-ray streak camera. (a) Example of a streak image; (b) measured delay time as a function of Δs . Dashed line represents the fitted linear function and dark data points are errors from the fitted line.

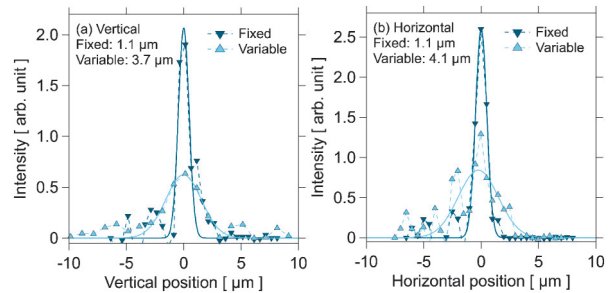


Fig. 7 Measured focal profiles of split pulses along the (a) vertical and (b) horizontal directions. Solid lines show the Gaussian fits. Similar profiles were obtained over the delay time range.

いと考えられる。

5.4 集光プロファイルとスペckル像

明視野ナイフエッジスキュン法により測定した集光プロファイルを図 7 に示す。集光位置は十分に重複しており、高精度にアライメントが行えていることが確認出来る。光路長固定パスからの分割パルス光のスポットサイズは、半値全幅で $\sim 1 \times 1 \mu\text{m}^2$ と理想通りの集光特性が得られたが、可変パスからの分割パルス光は $\sim 4 \times 4 \mu\text{m}^2$ であった。これは極薄分割結晶に残存するわずかな歪みにより反射 X 線の波面 (特に平均曲率半径) が乱され、仮想的な光源位置が光軸方向に沿って変化したことによって、集光距離がずれたためだと考えられる。この集光距離のずれをレイリー長以下に抑えるためには、極薄結晶に許容される結晶面の傾斜誤差は約 $0.3 \mu\text{rad}$ (P-V) と非常に厳しく、極薄結晶の更なる高品質化が不可欠である。

分割パルス光を利用した XPCS 法の実現可能性を検討するため、X 線小角散乱法で標準試料としてよく用いられるグラッシーカーボンからの散乱像を取得した。試料の厚みは 1 mm であり、試料から 3 m 下流に配置した Multi-Port Charge-Coupled Device (MPCCD)-Dual²⁶⁾を用いて散乱像を取得した。光路長固定パス、可変パスそれぞれの分割パルス光のみを照射して取得した散乱像の 1000 ショット平均を Figs. 8(a), (b) に示す。ビームサイズが異なるためモルフォロジーは違うが、いずれの散乱像に

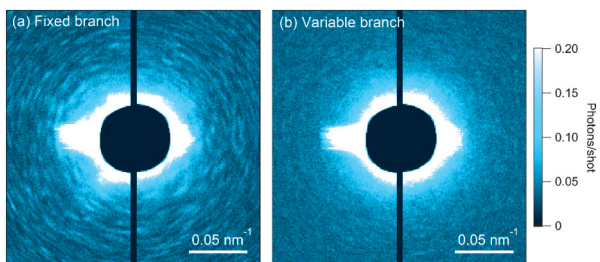


Fig. 8 Averaged scattering patterns from a glassy carbon plate with a thickness of 1 mm. Panels (a) and (b) show the patterns measured with split pulses from the variable and fixed branches, respectively.

も明らかにスペックルが確認される。シングルショットではフォトンカウンティング領域の散乱強度しか得られず明瞭なスペックルは確認出来なかったが、光子統計からコントラストを抽出可能である²⁷⁾。従って、SDOによって生成した分割パルス光でも、十分にXPCS法を行えると考えられる。

6. まとめと将来展望

Si(220)結晶を利用した硬X線分割・遅延光学系のプロトタイプを構築し、SACLAにおいて評価実験を行った。各分割パルス光の強度は±10%程度の精度で測定可能であり、集光時の空間重複も十分な精度で可能であることを示した。分割パルス光を照射してグラッシーカーボンからのスペックル像を取得し、XPCS法への適用可能性を示した。また、X線ストリークカメラによって100–200 fsの精度で遅延時間ゼロを決定できることを確認した。

より高精度な遅延時間測定法として、分割パルス光同士の間干渉測定が有力である。干渉縞のビジビリティは遅延時間が大きくなるにつれ低下し、その時間幅はコヒーレント時間に相当するため、数fsの精度で遅延時間ゼロを決定出来る。ただし、干渉縞を確認するためには分割パルス光のスペクトルが重複している必要があり、厚みが約2 μmの極薄結晶を利用しなければならない。そのためには極薄結晶作製技術の更なる向上が必須であり、現在も研究開発を進めている。

分割パルス光間のスペクトルの差は、ダブルパルスXPCS法を行う際にも注意が必要である。中心波長が異なると同じ散乱角に対応する散乱ベクトルも変化するため、測定可能な空間スケールが制限される。Si(220)回折を利用した我々のSDOでは、分割パルス光間の中心エネルギーの差 δE は少なくとも $\delta E/E > 6.0 \times 10^{-5}$ となる(中心波長の差 $\delta \lambda/\lambda$ も同値)。式(1)から、散乱ベクトルの変化 $|\delta q|$ は、

$$|\delta q| = 4\pi \sin \theta \frac{\delta \lambda}{\lambda^2} = q \frac{\delta \lambda}{\lambda} \quad (6)$$

と表される。ここで、許容される散乱ベクトルの変化をスペックルサイズの2分の1以下として簡単に見積る。ビームサイズ D に対するスペックルサイズ Δq は、近似的に

$$\Delta q \sim 2\pi D^{-1} \quad (7)$$

と表される。式(6)、(7)と前述の閾値を用いると、測定可能な最大散乱ベクトル q_{\max} は、

$$q_{\max} = \frac{\pi}{D} \frac{\lambda}{\delta \lambda} \quad (8)$$

となり、X線の波長に依らず $q_{\max} \sim 5.2 \text{ \AA}^{-1}$ (実空間スケールでは約1.2 Åに相当)と見積もられる。従って、より高品質な極薄結晶を作製し、両方の分割パルス光を1 μm程度まで集光することが出来れば、ダブルパルスXPCS法によって原子スケールのダイナミクスを測定することが可能になる。更に、将来2 μm厚の無歪結晶が実現すれば、スペクトルの重複した強度比1:1の分割パルス光が利用でき、より理想的な条件でダブルパルスXPCS法を行えると期待される。

謝辞

本研究の遂行のために多大なサポートを頂いた、大阪大学の山内和人教授、佐野泰久准教授、松山智至助教、平野嵩氏、理化学研究所の矢橋牧名博士、玉作賢治博士、香村芳樹博士、井上伊知郎博士、JASRIの登野健介博士、犬伏雄一博士、富樫格博士、そしてSACLA/SPring-8のスタッフ諸兄に深く感謝致します。本研究の一部は理化学研究所基礎科学特別研究員研究費の助成を受けて行われた。SPring-8 BL29XULにおける実験はSPring-8利用申請課題(申請番号: 20130033, 20140013, 20150075)において行った。

参考文献

- 1) T. Ishikawa *et al.*: Nat. Photon. **6**, 540 (2012).
- 2) P. Emma *et al.*: Nat. Photon. **4**, 641 (2010).
- 3) 例えば、M. C. Newton *et al.*: Nano Lett. **14**, 2413 (2014).
- 4) 例えば、K. H. Kim *et al.*: Nature **518**, 385 (2015).
- 5) A. A. Lutman *et al.*: Phys. Rev. Lett. **110**, 134801 (2013); T. Hara *et al.*: Nat. Commun. **4**, 2919 (2013).
- 6) A. Marinelli *et al.*: Nat. Commun. **6**, 6369 (2015).
- 7) I. Inoue *et al.*: Proc. Natl. Acad. Sci. USA. **113**, 1492 (2016); K. R. Ferguson *et al.*: Science Advances **2** (2016) doi: 10.1126/sciadv.1500837
- 8) M. Sutton *et al.*: Nature **352**, 608 (1991).
- 9) G. Grübel *et al.*: Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B **262**, 357 (2007); C. Gutt *et al.*: Opt. Express **17**, 55 (2009).
- 10) J. W. Goodman: *Statistical Optics* (John Wiley & Sons, Inc., 1985).
- 11) S. Roling *et al.*: Phys. Rev. ST Accel. Beams **17**, 110705

- (2014).
- 12) C. David *et al.*: *Sci. Rep.* **5**, 7644 (2015).
- 13) W. Roseker *et al.*: *Opt. Lett.* **34**, 1768 (2009); W. Roseker *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **18**, 481 (2011); W. Roseker *et al.*: *Proc. SPIE* **8504**, 850401 (2012).
- 14) T. Osaka *et al.*: *Opt. Express* **24**, 9187 (2016).
- 15) Y. Mori *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 4627 (2000).
- 16) T. Osaka *et al.*: *Key. Eng. Mater.* **523-524**, 40 (2012); T. Osaka *et al.*: *Opt. Express* **21**, 2823 (2013).
- 17) T. Hirano *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **87**, 063118 (2016).
- 18) K. Tamasaku *et al.*: *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **467-468**, 678 (2001).
- 19) T. Osaka: Doctoral Thesis (Osaka University, 2016), <http://hdl.handle.net/11094/55928>.
- 20) K. Tono *et al.*: *New J. Phys.* **15**, 083035 (2013).
- 21) K. Tono *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 023108 (2011).
- 22) H. Yumoto *et al.*: *Nat. Photon.* **7**, 43 (2012).
- 23) D. Zhu *et al.*: *Appl. Phys. Lett.* **101**, 034103 (2012).
- 24) K. Tamasaku *et al.*: *J. Synchrotron Rad.* **23**, 331 (2016).
- 25) Y. Inubushi *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **109**, 144801 (2012).
- 26) T. Kameshima *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 033110 (2014).
- 27) J. W. Goodman: *Speckle Phenomena in Optics: Theory and Applications* (Roberts & Co., Englewood, Colo., 2007); S. O. Hruszkewycz *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **109**, 185502 (2012).

著者紹介



大坂泰斗

理化学研究所放射光科学総合研究センター
基礎科学特別研究員

E-mail: osaka@spring8.or.jp

専門：X線光学，精密工学

【略歴】

2016年3月大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了。博士（工学）。2013年4月日本学術振興会特別研究員（DC1），2016年4月より現職，大阪大学大学院工学研究科 招聘研究員を兼務。

Development of wavelength-tunable hard X-ray split-and-delay optics: Current status and future perspectives

Taito OSAKA RIKEN SPring-8 Center, 1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

Abstract We have developed a hard x-ray split-and-delay optical (SDO) system based on perfect diffraction with silicon crystals for measuring dynamics at femtosecond to nanosecond time scales through x-ray photon correlation spectroscopy and x-ray-x-ray pump-probe methods. An incoming x-ray pulse is split into two pulses by an ultra-thin Si crystal with a thickness of $\sim 10 \mu\text{m}$. The split pulses propagate on different optical paths, and finally they are recombined onto a common path with a time delay by another thin crystal. Adjustment of a path length of one branch enables precise control of the time delay from zero up to 200 ps. In this topic we describe the concept of the SDO system, results of the fabrication of crystal optics and tests of the SDO system performed at SACLA. Finally, we show the feasibility of methods for measuring ultrafast dynamics with the system.