## 高繰り返し X 線チョッパーの開発

大沢仁志

(公財)高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

工藤統吾

(公財)高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

木村 滋

(公財)高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

要 旨 高繰り返し再生増幅器によるパルスレーザー照射や高繰り返し電気信号入力によるポンプ−プローブ時間分解測 定法に向け、高い繰り返し性能を持つ X線チョッパーの開発を行った。本チョッパーは52kHzと従来のチョッパーより 高い繰り返し性能を持ち、上記の時間分解測定を高い効率で行うことが可能となった。本稿ではこの高繰り返しX線チ ョッパーについて解説を行う。

#### 1. はじめに

放射光のパルス性を利用したポンプ-プローブ時間分解 測定法は、シンクロトロンから発せられる X線パルスの 中から、試料への刺激(ポンプ)と同期した必要なタイミ ングの X 線パルスを選択する事によって、原理的に X 線 パルス幅である数10 ps までの時間分解能を達成できる測 定手法である<sup>1)</sup>。この「必要な X 線パルスを選択」する手 段としては、X線パルスを分離可能な時間分解能を持つ 検出器, 例えばアバランシェフォトダイオード (APD) や PILATUS 等を使用し、電気回路系によって X 線パル スの選択を行う方法と、X線チョッパーの様に必要なX 線パルスのみ切り出して試料に X 線を照射する方法の2方 法が用いられている。X線チョッパーによるX線パルス の選択においては、電気回路による X 線パルス選択の様 に検出器に時間分解能は必要とされず、通常の測定に用い られているX線検出器をそのまま使用して時間分解測定 行うことが可能であり、また、必要とされていない時間に X線を照射することによる試料の放射線損傷の増大を防 ぐことが出来るという利点がある。これらの利点により X線チョッパーが「必要な X線パルスを選択」する手法 として多くの放射光施設で採用されている1-7)。

これまでに SPring-8 において導入されている X 線チョ ッパーでは、X線切り出しの繰り返し周波数は1kHzに 留まっていた(最高3kHzのチョッピングも可能な構造 を持っているが)1,3,4)。この繰り返し周波数は導入当時の 一般的な再生増幅器によるパルスレーザーによる繰り返し 周波数を想定して設定されたものである。一方で、繰り返 し周波数が数十~数百 kHz の再生増幅器を備えたパルス レーザーが近年発売され、さらに次世代メモリ素子などを 対象に高速な電気信号入力を利用する実験が提案されるな ど、より高い繰り返し周波数による X 線パルスの切り出

しが要求されてきている。我々は、この要望に応えるべ く、より繰り返し周波数を高めることが可能な構造を持つ X線チョッパーの開発を行った8)。

## 2. 高繰り返しかつ短時間の X 線チョッピン グを可能とする X 線チョッパーの方式

高繰り返しの X線パルスの切り出し(X線チョッピン グ)には結晶やミラーを使う方法もあるが<sup>9,10)</sup>,この場合 はX線の方向や位置がチョッピング前後で変化すること を避けることが出来ない。一方, X線遮蔽体を利用し て、必要なタイミングのみ X 線を通過させる方法の場合、 X線の位置も方向もチョッピングの前後で変化すること はなく, 実験上大変有利である。そこで, 我々は X 線遮 蔽体により X 線をチョッピングする方法を採用した。

Fig. 1は X 線遮蔽体を回転させることにより機能する各 種のX線チョッパーの動作形式を示している4,6,8)。Aは 一般的な光学チョッパーに見られる形式であり、円周に設 置されたスリットを持った X 線遮蔽円盤をモーターで回 転させ、X線をチョッピングしている。この方法ではX 線はモーターの回転軸と平行であるため、'parallel type' と呼ばれる。この方法では X 線遮蔽円盤1回転に対して, 1つのスリットで1回のX線チョッピングとなるが、多 くのスリットを持たせることが容易であるため数十kHz 以上の高繰り返しのチョッピングの達成が可能である。B では三角形のX線遮蔽体の辺にX線を通過させるスリッ トを作成し、X線をチョッピングしている。この方法は X線と遮蔽体の回転軸は垂直であるため "perpendicular type"と呼ばれている。Aと同じく遮蔽体1回転に対し て、1つのスリットで1回のX線チョッピングが可能で あるが、三角形の遮蔽体の場合、遮蔽体1回転につき最 高で3回のX線チョッピングとなり、高繰り返しのチョ

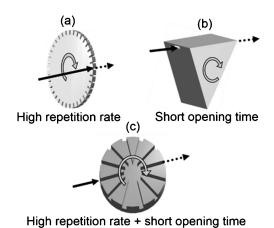


Fig. 1 Three typical X-ray chopping methods. © (2017) The Japan Society of Applied Physics

ッピングは不可能であるため専ら数 kHz までのチョッピ ングに用いられている。一方,この方法では X 線に対し スリットは上流側、下流側とそれぞれ反対方向から閉じて ゆくため, 遮蔽体が A と同じスリットの大きさと回転速 度と回転半径をもつとすると, Aに比べて半分の時間の 開口を実現することが可能となる。我々はAとBの利点 を兼ね備えたCで示す形式を採用した。X線と遮蔽体の 回転軸はBと同じく垂直であるため、"perpendicular type"の利点である開口時間が短いという特徴を持つ。X 線遮蔽体は A と同様に円盤を採用しているが, A とは違 い円周部を膨らませて, 円盤の表面に円周から中心へ向か う方向に溝を掘り、X線を通すスリットとしている。ま た遮蔽体の回転軸上に X 線を通す事により, 遮蔽円盤1 回転あたり2回X線を通過させることができるため、1 スリットあたり A や B の方法の 2 倍の X 線のチョッピン グ周波数を実現することができる。本方式はX線のスリ ットを溝とすることで、容易にスリットを X 線遮蔽円盤 上に作成することが出来るため、多くのスリットを必要と する高繰り返しなX線のチョッピングには最適な方法で あると考えている。

### 3. 高繰り返し X 線チョッパーの詳細

Fig. 2(a)は今回開発した X 線チョッパーの外観写真である8。上部は X 線遮蔽円盤を納める円形チャンバーであり,後述する下部に設置されたエア軸受モーターによって X 線遮蔽円盤を回転させている。風損とそれに伴う回転 ジッターを抑えるために X 線遮蔽円盤は真空中で回転させている。Fig. 2(b)は,上部のチャンバーを開けて撮影した X 線遮蔽円盤の写真である。 X 線は矢印で示すように直径140 mm の遮蔽円盤の中心を通るように入射する。高速回転を実現させるためには X 線遮蔽円盤は丈夫である必要があり,また,軸受の負担を軽減するために可能な限り軽い事が望まれる。この要求に応えることの出来る素材

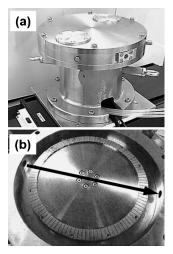


Fig. 2 Photograph of (a) the X-ray chopper apparatus and (b) the X-ray chopper disc. The arrow in (b) shows the X-ray path. © (2017) The Japan Society of Applied Physics

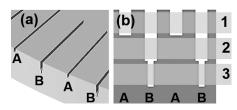


Fig. 3 (a) Computer graphic diagram of the groove structure on the chopper disc in Fig. 2(b). (b) Schematic drawing of groove design on chopper disc. © (2017) The Japan Society of Applied Physics

としてはチタンやアルミ合金をあげることが出来る。今回 の X 線チョッパーは30 keV 程度の高エネルギー X 線への 利用を考え、X線遮蔽円盤の素材にアルミ合金に比べて X線阻止能の高いチタンを採用している。X線遮蔽円盤 の円周部には Fig. 3 に示すように、円周部に遮蔽円盤の中 心に向かってAとBと深さと幅の違ったスリットがそれ ぞれ27ペアずつ等間隔に設置されている。Aのスリット サイズは深さ $500\,\mu\mathrm{m}$ ,幅 $250\,\mu\mathrm{m}$  である。B は深さ $1\,\mathrm{mm}$ までは幅250 μm と A と同じであるが、深さ1 mm から  $1.5 \, \text{mm}$  の部分の幅を $110 \, \mu \text{m}$  としている。この X 線遮蔽 円盤を SPring-8 と同期した473.38 Hz で回転させた場 合,幅 $250 \mu m$ の部分では1,170 ns,幅 $110 \mu m$ の部分では 520 ns の開口時間を得られるため, 前者は 5 bunches + 1/ 7 filling mode (バンチ間隔684 ns)<sup>11)</sup>時,後者は12 bunches + 1/14 mode (バンチ間隔342 ns)<sup>11)</sup>時にシングルパ ルス X 線を切り出すことが可能である。この様に 2 種類 の構造の異なるスリットを持つことにより、本チョッパー では2種類のチョッピング周波数と開口時間にて使用す ることが可能となっている。Fig. 3(b)の1で示すスリット の深さ500 μm までを使用した場合, A と B のスリットを 両方使用することになり、SPring-84周に1回の52.2 kHz のチョッピング周波数で機能し、Fig. 3(b) の 2,3 の

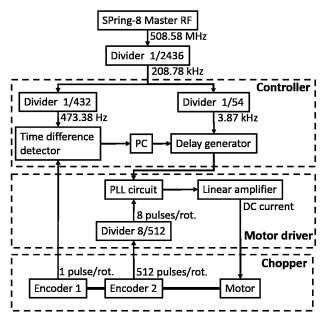


Fig. 4 Block diagram of X-ray chopper control system.

様に深さ $500 \mu m$  から深い部分を利用した場合,B のスリットのみが使用され SPring-88 周に 1 回の26.1 kHz のチョッピング周波数で機能する。さらに Fig. 3(b) の 3 で示す深さ 1 mm より深い部分を利用した場合は,より狭い開口時間にてチョッピングを行うことが可能となる。

上記のデザインのX戦遮蔽円盤を回転させて所定の性 能を発揮させるためには、X線遮蔽円盤をSPring-8と完 全に同期させて回転させる必要がある。より高回転のモー ターを採用することにより、より高繰り返しでスリット幅 を広く設定したX線チョッピングを実現できることか ら, 今回の開発においては X 線遮蔽円盤を回転させるた めのモーターとして、最高回転数波数が500 Hzであるエ ア軸受モーター (新明和工業 SPM30) を採用した。この エア軸受モーターを Fig. 4 に示す回路系を用いてモーター の回転速度と位相を SPring-8 に同期させ、 X線チョッ パーとして機能するようにしている。モーターには2種 類の出力を持つ回転エンコーダーが取り付けられており, それぞれモーター1回転につき1パルス (Encoder 1), 512パルス (Encoder 2) を出力する。Encoder 2 はモー タードライバー内で64分周され、モーター1回転につき8 パルスの信号として変換される。SPring-8の基準RF信 号を131,544分周して作成された、モーター1回転につき 8 パルスにあたる信号(制御信号: 3.87 kHz) と,上記の 分周された Encoder 2 からの信号の時間差をモータード ライバー内の PLL 回路にて検知し、それぞれの時間差が 一定になるようにモーターに印加する電流を制御してい る。これにより、モーターは制御信号、すなわち SPring-8と同期した回転速度と位相にて動作することが可能とな る。モーターは制御信号に追従した位相で回転しているの で、コントローラー内の Delay generator にて制御信号の

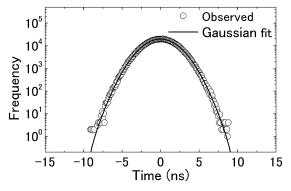


Fig. 5 Observed jitter of motor rotation vs. SPring-8 master RF.

位相を動かすことにより目的の X線パルスをチョッピングするよう X線チョッパーのタイミングを調節することが出来る。先程、本工ア軸受モーターの最高回転数波数は500 Hz であると述べたが、これは Encoder 2 の最高動作周波数の制限からくるものである。Encoder 1 はこれと同期するように SPring-8 の基準 RF 信号を1,052,352分周して作成された信号に対する時間差を数秒に1回観察することによりドリフトや回転異常の監視を行うことに使用されている。これらの制御により Fig. 5 に示す様に SPring-8 基準信号に対するジッターの半値幅 4 ns、全幅が20 ns 以内と非常に安定したモーターの同期運転が実現されている。

#### 4. 高繰り返し X 線チョッパーの性能

Fig. 6(a)-(c)は、5 single bunches + 1/7 filling mode 時 に, (d), (e)は12 single bunches + 1/14 filling mode 時に 行った X 線チョッパーの動作試験の結果である8)。動作試 験は SPring-8 BL13XU にて行った。高さ400 μm, 幅250 μm をもつ12.4 keV の X 線をチョッパーに入射した。チ ョッパーを通過した X 線を銅板にあて、散乱 X 線と蛍光 X線をAPDにて検出し、マルチチャンネルスケーラーに より時間スペクトルを測定した。Fig. 6(a)はチョッピング を行う前に測定される X 線の時間構造であり、5 single bunches + 1/7 filling mode 時に特有な684 ns の間隔を持つ 5個のシングルパルス X 線と、全周で100 mA の電流蓄積 量を保つための連続部分からなる X 線が観察されている。 Fig. 6(b)はチョッパーを動作させ、Fig. 3(b)中1で示され る部分にX線を通過させた際に観察されたX線の時間構 造である。SPring-84周に1パルスのみのX線がチョッ パーを通過し、他の部分はチョッパーにより阻止される様 子が示されている。Fig. 6(c)はX線チョッパーの高さを  $500 \, \mu \text{m}$  上げ、**Fig. 3(b)**中2の部分に X 線を通過させた際 に観察されたX線の時間構造である。Fig. 6(b)の半分,す なわち SPring-8 8 周に1回のチョッピングがなされてい る事が観察されている。Fig. 6(d), (e)は12 single bunches +1/14 filling mode 時に観察した X 線チョッピングの結

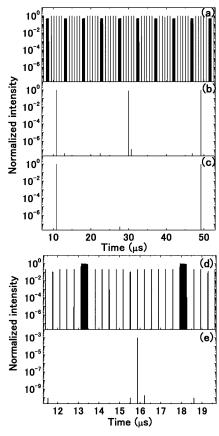


Fig. 6 Time structure of X-ray pulses obtained (a) and (d) before and (b), (c) and (e) during chopping with zone 1, 2 and 3 shown Fig. (b). (a)-(c) and (d)-(e) were observed in 5 single bunches + 1/7 filling mode and 12 single bunches + 1/14 filling mode. © (2017) The Japan Society of Applied Physics

果である。バンチ間隔は342 ns と 5 single bunches + 1/7 filling mode 時半分となるが,**Fig. 3(b)** 中 3 の部分にて X 線をチョッピングさせることにより **Fig. 6(e)**に示すようシングルバンチのみを得ることに成功している。今回開発した X 線チョッパーでは,チョッピング対象の X 線パルスに対し,対象としない X 線を 1/1000000 オーダーで遮蔽することが可能であり,多くの時間分解測定において十分なチョッピング性能を持っていると考えている。

#### 5. まとめ

我々は電気刺激や将来の高繰り返しパルスレーザーによる時間分解測定に使用する事を目的とし、SPring-84間に1回までの高繰り返し周波数を持つ、X線チョッパーの開発を行った。本チョッパーは従来のチョッパーに比べ高繰り返しであり、X線の利用率は高く、従来は非現実的であった偏向電磁石ビームラインにおけるシングルパルスX線を用いた時間分解測定も可能としている。このため、現在では本チョッパーはSPring-8BL02B1に設置され、電場印加時間分解高エネルギーX線回折実験に使用

されている $^{12,13}$ )。また本チョッパー設計時から時が経ち,シングルバンチ電流が $5\,\text{mA}$  とより高く,バンチ間隔も拡がった運転モード( $1\,\text{bunch}+11/22\,\text{filling}:$ バンチ間隔も拡がった運転モード( $1\,\text{bunch}+11/22\,\text{filling}:$ バンチ間隔  $1486\,\text{ns}$ ) $^{11}$ )による運転もなされるようになったことから,2017年現在,本チョッパーは,このバンチモード向けに改造中である。改造後は $69.7\,\text{kHz}$ , $34.8\,\text{kHz}$ , $2.8\,\text{kHz}$  と  $3\,\text{種類の幅の広い繰り返し周波数にて利用が可能となり,同時にスリット幅を拡げることにより<math>2\,\text{倍の}\,\text{X}$ 線強度を得られる予定である。

今回紹介した X 線チョッパーをベースとして、20 keV 以下をターゲットとしたアルミ合金製の X 線遮蔽円盤を持つ縦に X 線遮蔽円盤を回転させるチョッパーや,軟 X 線ビームライン向けの高真空タイプのチョッパーの開発も進めている $^{14}$ 。また,より多くのビームラインにおける時間分解測定を可能とするために,性能は劣るがより小型で安価な X 線チョッパーの開発も行っており,いつかのビームラインにおいて使用されてきている $^{15}$ 。これらの X 線チョッパーを適切に使い分けることにより様々な時間分解測定を行うことが可能となると考えている。

#### 参考文献

- 1) 足立伸一, 田中義人:放射光 20,117 (2003).
- A. McPherson, J. Wang, P. L. Lee and D. M. Mills: J. Synchrotron Rad. 7, 1 (2000).
- S. Adachi, K. Inoue, T. Oka, N. Yagi, Y. Tanaka, T. Ishikawa and Y. Shiro: AIP Conf. Proc. 705, 1383 (2004).
- 4) M. Cammarata, L. Eybert, F. Ewald, W. Reichenbach, M. Wulff, P. Anfinrud, F. Schotte, A. Plech, Q. Kong, M. Lorenc, B. Lindenau, J. Räbiger and S. Polachowski: Rev. Sci. Instrum. 80, 015101 (2009).
- 5) M. Gembicky, D. Oss, R. Fuchs and P. Coppens: J. Synchrotron Rad. 12, 665 (2005).
- M. Gembicky and P. Coppens: J. Synchrotron Rad. 14, 133 (2007).
- A. Meents, B. Reime, M. Kaiser, X.-Y. Wang, R. Abela, E. Weckert and C. A. Schulze-Briese: J. Appl. Crystallogr. 42, 901 (2009).
- H. Osawa, T. Kudo and S. Kimura: Jpn. J. Appl. Phys. 56, 048001 (2017).
- R. Tucoulou, D. V. Roshchupkin, O. Mathon, I. A. Schelokov, M. Brunel, E. Ziegler and C. Morawe: J. Synchrotron Rad. 5, 1357 (1998).
- A. Siria, O. DheZ, W. SchwartZ, G. Torricelli, F. Comin and J. Chevrier: Nanotechnology 20, 175501 (2009).
- 11) web page: http://www.spring8.or.jp/users/operation\_status /schedule/bunch\_mode
- H. Osawa, T. Ohkouchi, M. Fujisawa, S. Kimura and T. Kinoshita: J. Synchrotron Rad. 24, 560 (2017).
- S. Aoyagi, H. Osawa, K. Sugimoto, A. Fujiwara, S. Takeda, C. Moriyoshi and Y. Kuroiwa: Appl. Phys. Lett. 105, 201905 (2015)
- 14) S. Aoyagi, H. Osawa, K. Sugimoto, S. Takeda, C. Moriyoshi and Y. Kuroiwa: Jpn. J. Appl. Phys. 55, 10TC05 (2016).
- 15) C. Moriyoshi, S. Hiramoto, H. Ohkubo, Y. Kuroiwa, H. Osawa, K. Sugimoto, S. Kimura, M. Takata, Y. Kitanaka, Y. Noguchi and M. Miyayama: J.Jpn. Appl. Phys. 50, 09NE05 (2011).

#### ●著者紹介●

#### 大沢仁志

公益財団法人高輝度光科学研究センター 研究員

E-mail: hitoshio@spring8.or.jp

専門:放射光を利用した時間分解測定法 の開発

#### [略歴]

2003年9月総合研究大学院大学数物科 学研究科博士課程修了。博士(理学)。 東京大学物性研究所博士研究員,高輝度 光科学研究センター博士研究員を経て 2008年10月より現職。

#### 工藤統吾

公益財団法人高輝度光科学研究センター 主幹研究員

E-mail: kudo@spring8.or.jp

専門:回路技術などをベースとした放射

光技術分野での装置開発

#### [略歴]

1989年筑波大学大学院修士課程医科学 研究科学修了, 医科学修士。2007年総 合研究大学院大学より博士(工学)授与。 住友製薬株式会社(現:大日本住友製薬 株式会社), ツジ電子株式会社をへて 1996年から高輝度光科学研究センター。 2012年~2015年理化学研究所, 2016年 4月より現職。

#### 木村 滋

公益財団法人高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門 副部門長 E-mail: kimuras@spring8.or.jp 専門:材料評価,精密 X 線回折 [略歴]

1994年名古屋大学大学院工学研究科応 用物理学専攻博士課程終了,博士(工学)。 NEC 基礎研究所、マイクロエレクトロ ニクス研究所, シリコンシステム研究所 を経て、2002年9月より高輝度光科学 研究センター主幹研究員。2015年4月 より現職。

# Development of high repetition rate X-ray chopper system

Hitoshi OSAWA Togo KUDO Shigeru KIMURA

Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Sayo, Hyogo 679-5198, Japan

Abstract The high repetition rate X-ray chopper system has been developed for pump-probe time-resolved measurements. This chopper system has high repetition rate of 52 kHz, which is much higher than the already established choppers. This enables highly efficient pump-probe measurements for high repetition amplified pulse laser and/or electric signal stimulations.