

■第25回日本放射光学会奨励賞受賞研究報告

X線自由電子レーザー先端利用のための新しいX線光学系の開発

大坂泰斗 (理化学研究所放射光科学研究センター)

1. はじめに

2009年に米国のスタンフォード国立加速器研究所において、世界で初めて自己増幅自然放射 (Self-Amplified Spontaneous Emission, SASE) の原理によってX線自由電子レーザー (X-ray Free-Electron Laser, XFEL) の発振が達成され¹⁾, X線計測技術に数々のブレイクスルーがもたらされた。例えば、室温におけるタンパク質の無損傷構造解析²⁾や、光学レーザー照射等の外場印加をトリガーとするダイナミクスフェムト秒分解計測³⁾, 非線形光学効果を利用した高感度化学状態計測⁴⁾等が挙げられる。

XFELの秘めたる性能を引き出し、XFEL計測技術をより一層発展させるため、新しいX線光学系の開発を進めている。数あるX線光学素子の中でも、筆者は古くから利用されている“結晶素子”に注目してきた。結晶素子とは、構造の3次元周期性に由来するブラッグ反射を利用する光学素子を指す。X線の波長を λ , 結晶格子面間距離を d とおくと、

$$2d \sin \theta_B = \lambda$$

を満たす時に強い反射が生じる。なお、 θ_B は格子面に対するX線の斜入射角であり、ブラッグ角と呼ばれる。これはブラッグの式としてよく知られており、結晶以外にも多層膜ミラー等、構造的な周期性をもった素子に対しても利用される。結晶素子の特徴はこのブラッグの式によく表されており、(1)X線の単色化が可能 (ブラッグ条件を満たす波長成分しか反射しない)、(2)X線の軌道を大きく変えることが可能 (d と λ がほぼ同等なため、 θ_B は一般的に数度から数十度となる)などが挙げられる。また、本稿で取り上げる内容とは直接関係しないが、結晶表面と格子面とが非平行な場合でもブラッグ反射は生じる。これは非対称反射と呼ばれ、(3)X線の発散角やサイズの制御が可能である。以上のように、結晶素子はX線を自在に操作可能な素子であり、X線計測技術の発展に大きく寄与してきた。

本稿では、結晶素子、特に半導体技術の発展に伴い極めて高い完全性をもった結晶インゴットが容易に入手可能なシリコン (Si) 素子を利用した、分割遅延光学系 (Split-and-Delay Optics, SDO) やマイクロチャンネルカット分光器 (μ -channel-cut monochromator, μ CCM) のSACLA⁵⁾

における開発の経緯や応用例を紹介する。

2. Plasma Chemical Vaporization Machining

開発した光学系の前に、本研究を遂行する上で重要な役割を果たした高精度加工技術を紹介したい。本研究では、筆者が所属していた大阪大学山内研究室で独自開発されたPlasma Chemical Vaporization Machining (PCVM)⁶⁾という加工技術を利用して、各種結晶素子の開発を試みた。本手法は大気圧雰囲気下で発生させたプラズマを利用したエッチング手法であり、プラズマ中の中性ラジカルと被加工物表面原子との結合・気化によって材料除去が進行するためダメージフリーな加工法であり、大気圧であるためラジカル密度が高く、高い加工能率が得られる、またプラズマ発生領域を局在化でき、高い加工空間分解能が得られ、3次元的に複雑な形状の素子にも適用可能である。そして反応性の高いフッ素ラジカルを利用することで結晶格子面に関わらず等方的な加工が可能である等の特徴を有する。更に、理由は定かではないが、シリコンに対して高精度研磨面並の表面粗さを達成できる (これまで0.13 nm RMSの表面粗さを達成している⁷⁾)。これらの特徴は結晶素子作製において最適であり、本研究を遂行する上で重要な加工技術である。

3. X線分割遅延光学系

X線SDOは1つのXFELパルスから2つの時間差を有するパルスを作り出す光学系である。概要をFig. 1に示す。SDOへ入射したXFELパルスをビームスプリッターによって2つのブランチへと分岐させ、それぞれ異なる光路を通して再びビームマージャで同一光軸 (もしくは試料点) 上へ結合させる。各ブランチ間の光路長差を可変とすることで、分割パルス間の時間差を高精度に制御可能である。本光学系を大きくX線光路を変えることのできる結晶素子で構築することで、比較的小きなスペースでナノ秒に迫る大きな時間差を生成できる。従って、他手法では困難なフェムト秒からピコ秒オーダーの自発的な揺らぎ計測を実現しうる光学系として、世界中のXFEL施設で開発が進められてきた。

マイケルソン型X線干渉計⁸⁾など、X線SDOと呼べる

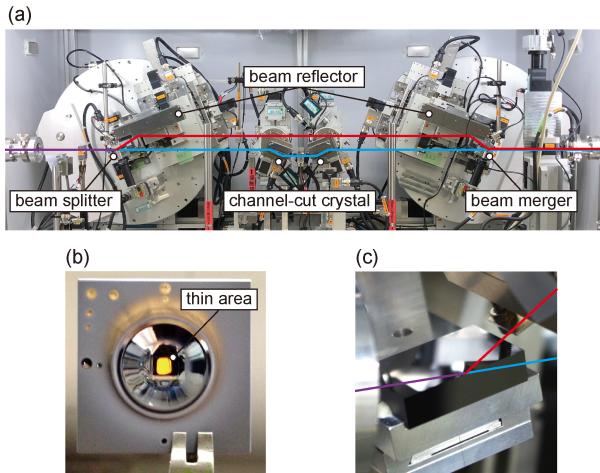


Fig. 1 (Color online) Pictures of an x-ray split-delay optical system developed at SACLA (a), a thin crystal x-ray splitter (b), and an edge-polished wavefront splitter (c). Lines indicate the x-ray beam paths.

光学系は古くから報告されているものの、ピコ秒からナノ秒という大きな遅延時間生成に主眼を置いた光学系は DESY の Roseker 氏らによって初めて提案、試験された⁹⁾。彼らの光学系は大きな遅延時間を生成するため 8 つもの結晶素子を利用しており、多大な調整時間を要する。また、光路長調整機構の簡略化や装置面積の縮小を目的として 90° 反射のみで構成されており、利用可能な X 線波長が制限される等の問題もあり、実用化には至っていない。

筆者らの開発した X 線 SDO^{10,11)} (Fig. 1a) は、2010 年に理化学研究所の矢橋氏によって提案された光学配置に基づいている。本光学系の特徴は、一方を光路長可変、他方を光路長固定とした完全に独立した 2 つのブランチへ分岐させる点にある (Roseker 氏らの光学系では、両ブランチの光路長が変わる構成となっていた)。さらに光路長固定ブランチをチャンネルカット結晶により構築している。チャンネルカット結晶とは、1 つの結晶ブロックに溝を切り、その内面で X 線を複数回反射させる素子である。制御軸数の削減のみならず、各反射の基準面である結晶格子面の平行性が担保されているため、ナノラジアンレベルの出射角度安定性が容易に達成されるといった利点がある。これらの特徴により安定性の劇的な向上とアライメントの簡略化、それによる X 線波長 (反射角) の自由度の付与を達成でき、現在稼働中の X 線 SDO の多くに踏襲されている^{12,13)}。

さて、本光学系実現に向け鍵となる素子は、X 線ビームスプリッターとチャンネルカット結晶であり、それぞれ XFEL の整った波面を乱さないという厳しい要求が課せられる。以下で各素子の開発状況を紹介する。

3.1 X 線ビームスプリッター

本研究では、2 種の X 線ビームスプリッターを開発した。

1 つは薄い結晶を利用した振幅分割素子¹⁴⁾ (Fig. 1b)、もう一方は結晶のエッジ部を利用した波面分割素子¹¹⁾ (Fig. 1c) である。前者は、原理的には X 線波面を乱すことなく 2 つの等価なビームに分岐できるため、X 線 SDO 開発当初から盛んに開発が進められた。しかし、ブラッグ反射の消費距離以下の厚み (典型的に 10 μm 以下) まで結晶を薄くする必要があり、そのような結晶素子を格子面の歪みなく作製することが極めて困難であることは想像に難くない。

筆者らは局在化プラズマを発生可能な PCVM 装置を開発し、Si 平板結晶の中央部のみにプラズマ滞在時間制御による決定論的薄化加工を施した。これにより厚いサポート領域の中央部のみが厚み 10 μm 以下である高品質かつ構造的にも堅牢な X 線ビームスプリッターの作製に成功した¹⁴⁾。本素子は Roseker 氏らの光学系にも利用されており、X 線 SDO の XFEL による世界初のデモ実験達成⁹⁾に貢献している。しかしながら、残存した PV 値 0.5 μrad 程度の格子歪み (諸説あるが、表面に付着した酸化膜等による膜応力が原因だと考えている) によって反射 X 線の波面が有意に乱されるという問題に直面した¹⁵⁾。これは分割 X 線を集光する際に顕著な影響を及ぼし、各ビームの集光位置が一致しなくなる。この問題解決には、より高精度な薄化加工やクリーン環境での素子利用が必要であり、研究開発の途上である。

波面分割素子は薄結晶スプリッターの開発状況を鑑み、より実現可能性の高い (ある意味妥協した) X 線ビームスプリッターとして提案、開発されたものである。本素子では、結晶エッジ部を X 線光軸上に挿入し、結晶に照射し反射された X 線と、単に通過する X 線とに分岐する。エッジ部の加工という技術的困難さはあるものの、厚い結晶であるため一般的な高精度研磨技術が適用でき、構造的な安定性や入手性といった面で薄結晶スプリッターに対して利点がある。本研究でも波面分割素子の有効性を確認しており¹¹⁾、SACLA の X 線 SDO をはじめとし、現在 XFEL 施設において稼働中のほぼ全ての X 線 SDO で利用されている。

3.2 チャンネルカット結晶

チャンネルカット結晶の利便性は古くから認識されており、あらゆる X 線測定装置や放射光施設において利用されている。しかし、結晶に掘られた溝の内面を利用するという構造上、高精度研磨技術の適用が難しく、一般的に平板結晶と比べ多くの研磨痕や有意な表面粗さを有する。このような表面の不完全性により反射 X 線の波面が大きく乱されるため、空間コヒーレンスが重要となる測定には利用されてこなかった。

筆者らは回転円柱電極を利用した専用の PCVM 装置を開発し、チャンネルカット結晶の溝内面の処理を実現した。その結果、前加工段階で生じたダメージが全て除去され、波面の乱れのない X 線反射光を得ることに成功した¹⁶⁾。

ここで注意したいが、PCVMは加工基準面を持たないエッチング手法であるため、積極的な表面平滑化作用はない。そのためPCVM前加工での最終表面処理を溶液エッチングではなく機械研磨とすることで、ダメージフリーかつ平滑な内面形成を実現している。本技術はSACLAで利用されている他のチャンネルカット結晶にも適用されており、ポンプ・プローブ計測の高度化に貢献している¹⁷⁾。

3.3 XFELのコヒーレンス時間測定

X線SDOの利用研究の1つとして、SACLAで実施したXFELのコヒーレンス時間測定¹⁸⁾について紹介する。これはX線SDOを干渉計として利用するものである。波面分割素子によって空間的に分かれたX線間にわずかに角度差を設けることで、各分割X線を部分的に重複させる。このとき、両ブランチの光路長差(時間差)が縦コヒーレンス長(コヒーレンス時間)よりも短い場合、重複領域に干渉縞が形成される。従って干渉縞ビジビリティの時間差依存性を測定することで、コヒーレンス時間を評価できる。

X線干渉法、特に光路長差可変の場合は、測定時間内で光路長差をX線波長(～1 Å)以下で安定化させる必要があり、技術的に極めて困難である。本研究では、XFELの超短パルス特性を利用することでこの課題を克服した。XFELの場合、シングルショットでの干渉縞観察が十分可能なほどのフォトン数(>10⁸)が1つのパルス内に含まれている。従って光路長差を安定化させる必要のある時間は最大でも100 ps程度であり、容易に達成可能である。

Fig. 2に10 keVのXFELを利用して測定したビジビリティ曲線を示す。時間差ゼロを中心として明瞭なピークが

観察された。この結果から、X線SDOを通ったXFELのコヒーレンス時間は半値半幅で5.9 fsであると評価出来た。これはX線SDOで利用されているSi 220反射のバンド幅(0.56 eV)から予想されるコヒーレンス時間とほぼ同等である。言い換えれば当たり前の結果が得られただけではあるものの、本結果は時間差をパラメータとして得られた初めての結果であり、X線SDO利用研究の実現可能性を示した重要な成果と言える。また、本測定により時間差ゼロをフェムト秒精度で決定することができるという実用上の利点も大きく、X線SDOの利用実験では毎回実施されている。

4. マイクロチャンネルカット結晶分光器

本章では μ CCM¹⁹⁾に関して紹介する。後述するように、この素子はギャップ幅がわずか100 μ m程度の超小型チャンネルカット結晶であり、SACLAにおける反射型セルフシード法の実現を目指し開発したものである。

4.1 セルフシード法

SASE型XFELの問題点として、バンド幅が広く(数十eV)、多モード発振している点が挙げられる²⁰⁾。これにより測定データの解釈が煩雑になるだけでなく、分光測定のようにバンド幅の狭いXFELが要求される場合、分光器で単色化する必要が生じ、多くのフォトンを犠牲にしてしまう。多モード発振の原因は、SASE型XFELの種光が多モードな放射光であることである。従って単色な光を種光としてレーザー増幅することが出来れば、増幅後のXFELも単色になることは容易に想像できる。

種光として機能するだけの高強度な単色X線を得るために考案された手法がセルフシード法²¹⁾である。本手法では、アンジュレータを2セクションに分割し、セクション間にX線分光器を設置する。前段のアンジュレータでXFELを発生させた後、電磁石シケインによって電子バンチとXFELとを分離し、XFELを分光器に通すことで単色なXFELを生成する。電子バンチと単色光とを時空間的に重複させた後に後段のアンジュレータへ通すことで、単色光を種光としたレーザー増幅が達成される。本手法の最大の障壁は、いかにして単色光と電子バンチとを時空間的に重複させるか、というものである。分光器でX線を単色化の際、X線を必ず迂回させる必要がある。一般的な二結晶分光器では迂回による遅延時間は数psとなる。一方で、8 GeVクラスの電子バンチを大きく迂回させることは容易ではなく、SACLAの有する高出力電磁石シケインでも最大で約300 fsにとどまる。

この課題を解決したものが、Geloni氏らによって提案された“wake場”を利用した透過型の分光器²²⁾である。素子として厚さ100 μ m程度のダイヤモンド結晶が利用される。この素子を利用した際、ごく僅かなスペクトル領域

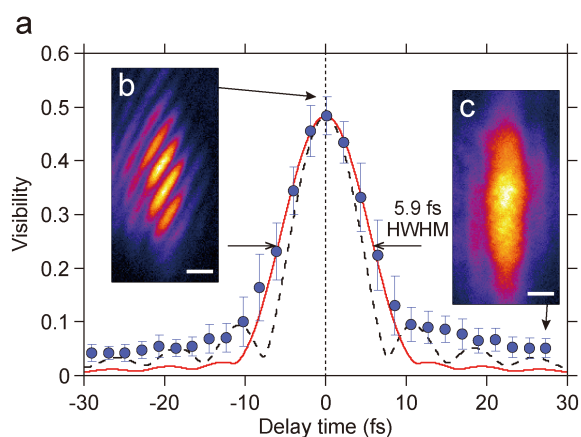


Fig. 2 (Color online) (a) Measured visibilities of interference fringes as a function of the time delay. The error bars denote the standard deviations. The black dashed line indicates the calculated curve using the theoretical spectrum of fourfold Si 220 diffractions. (b) Single-shot interference fringe with a maximum visibility of 0.55. (c) Superimposed profile measured at a delay far from zero for which the visibility is calculated to be 0.043. Each scale bar represents 100 μ m.

のみ反射され、残りの大部分は透過する。この時、透過光には数十 fs の間隔で周期的なピークが現れる (wake 場)。この wake 場は前方ブラッグ反射²³⁾と呼ばれる現象により生じており、単色性が高いことが理論的に予測されている。つまり、数十 fs 遅れた wake 場のピークと電子バンチとを重ねることで、セルフシード増幅の実現が期待され、実際に LCLS において実証された²⁴⁾。この“透過型”セルフシード法は SACLA を除く世界中の XFEL 施設で採用されている。

4.2 反射型セルフシード法

本章の冒頭で述べたように、SACLA では wake 分光器を利用した透過型ではなく、 μ CCM を利用した“反射型”セルフシード法を採用している。世界的に見ればイレギュラーな手法を採用した背景には、透過型セルフシード法によるスペクトル強度の増大が達成できなかったことがある。SACLA の電子バンチには強く圧縮されたメインピークと圧縮の弱いテールとの 2 成分があることが確認されている²⁵⁾。このテールからもメインピークから 2~3 桁弱い (が wake 場よりも強い) X 線が発生しており、wake 場が種光として機能しなかった可能性がある。二結晶分光器のような反射型の分光器であれば、結晶素子を反射した単色 X 線のみを取り出すことができるため前述の問題は解決される。また、得られる単色 X 線強度は一般的に利用される wake 場の第 1, 第 2 ピークよりも数倍以上強く、高効率な増幅も可能となる。

ここで反射型セルフシード法に適用可能な分光器の条件を見積もる。二結晶分光器により生じる遅延時間 Δt は以下の式で表される。

$$\Delta t = \frac{hg}{d_{hkl}E}$$

ここで h はプランク定数、 g は二結晶間のギャップ幅、 d_{hkl} は (hkl) 面の格子面間距離、 E は X 線の光子エネルギーである。Si(111) 結晶 ($d_{111} = 3.14 \text{ \AA}$) を利用して 10 keV において $\Delta t < 300 \text{ fs}$ を満たすためには、 $g < 227 \mu\text{m}$ である必要がある。これは一般的な二結晶分光器やチャンネルカット結晶の 1/10 以下の値である。

筆者らはこの厳しい条件を満たし、かつ調整の容易なギャップ幅 $90 \mu\text{m}$ の μ CCM を設計、試作した (Fig. 3)。この μ CCM により生じる遅延時間は 10 keV で約 120 fs であり、SACLA の電磁石シケインによって十分にカバーできる。本素子を利用することで、反射型セルフシード法によるバンド幅 3 eV の XFEL の発生に成功し、スペクトル強度を SASE と比較して約 6 倍にまで向上した²⁶⁾。

現在では、大阪大学山内研究室との共同研究により μ CCM に対しても PCVM 加工を実現し、素子の高品質化を達成している。これにより単色性の高い種光を生成可能な高次結晶面の μ CCM も利用可能となり、Si(220) μ CCM を利用して平均バンド幅約 0.6 eV の XFEL 発生を達成している²⁷⁾ (Fig. 4a)。Fig. 4b に示すように、ショット毎のバンド幅を確認すると 0.3~0.4 eV というショットも多く

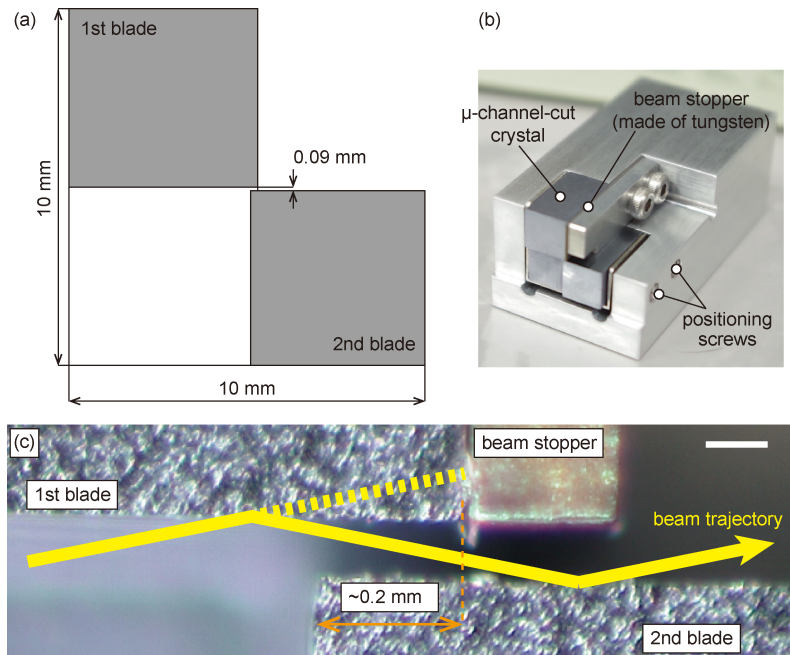


Fig. 3 (Color online) (a) Drawing of a Si(111) μ CCM. (b) Picture of the μ CCM mounted on a special holder, which equips a beam stopper made of tungsten to block the residual transmission XFEL beams. (c) Magnified image around the working area in the μ CCM. The bold line represents the beam trajectory. The scale bar in (c) denotes 100 μm .

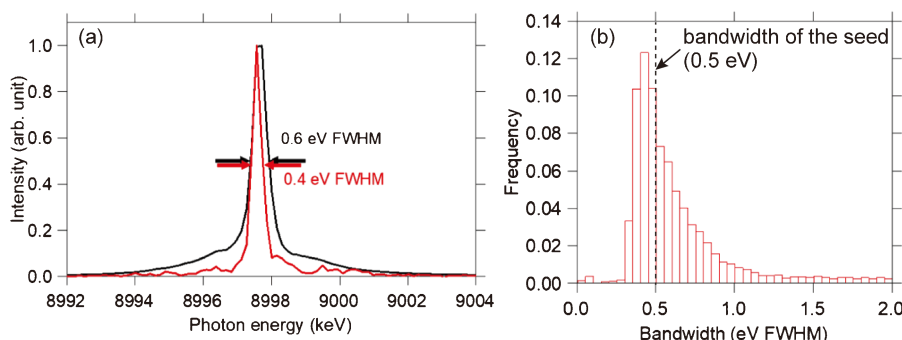


Fig. 4 (Color online) (a) Average (black) and single-shot (red) spectra of self-seeded XFEL pulses. Each spectrum is normalized by the peak value. (b) Histogram of the FWHM bandwidth of single-shot spectra.

含まれていた。SACLA のパルス幅は 6~8 fs とされており^{20,25)}、フーリエ限界に近いシングルモードの X 線レーザーであることが示唆された。

本研究で達成した反射型セルフシード法により、単色 XFEL でも 10^{19} W/cm² に迫る X 線強度を達成でき、X 線非線形光学効果のより詳細な評価や、可視光領域では一般的なビーム整形への応用²⁸⁾の扉が開かれると期待される。また、X 線 SDO のような結晶光学系との相性も非常によく、X 線 SDO により得られる分割 XFEL の強度を約 10 倍にまで高めることができています。詳細は割愛するが、これにより純水の原子スケールの揺らぎ評価²⁹⁾や、直接二光子吸収を利用した強度自己相関法によるパルス幅評価³⁰⁾が達成されている。

5. おわりに

本稿では、XFEL 計測技術のさらなる発展を目指して開発した、X 線 SDO や μ CCM による反射型セルフシード法について紹介した。結晶素子の役割は、従来の光源性能を最大限発揮することに加え、光源性能そのものを向上させることも担う時代となっている。顕著な例として共振器型 XFEL^{31,32)}が挙げられ、高品質な結晶素子により X 線共振器を組み上げることが出来れば、フーリエ限界かつ安定な X 線レーザーが実現する。冒頭でも述べた通り、結晶素子は X 線を自在に制御することのできる数少ない光学素子である。その応用性は光源性能の向上に伴って広がり、近い将来、可視光レーザーのように X 線レーザーを扱うことも可能となるだろう。今後もより高精度な、または斬新な結晶素子の開発を進め、X 線計測技術の発展に貢献していきたい。

謝辞

本研究は数多くの方々との共同研究のもと行われたものです。特に大阪大学の山内和人教授、佐野泰久准教授には学生時代から今に至るまで数多くのご助言を頂きました。大阪大学(現 日立製作所)の平野嵩博士とはともに結晶

素子開発や SPring-8, SACLA での実験においてもご協力頂きました。理化学研究所の矢橋牧名グループディレクター、玉作賢治チームリーダーには研究の進め方から実験のイロハに至るまでご指導頂きました。JASRI の登野健介グループリーダー、犬伏雄一主幹研究員には SPring-8 や SACLA での実験にご協力頂きました。理化学研究所の井上伊知郎研究員とは多くの実験をともにを行い、様々なことを学ばせて頂きました。ここには書ききれませんが、SPring-8, SACLA の関係者の皆様のご協力があって、ここで紹介した成果につながっています。この場をお借りし、御礼申し上げます。

参考文献

- 1) P. Emma *et al.*: Nat. Photon. **4**, 641 (2010).
- 2) 例えば, M. Suga *et al.*: Nature **517**, 99 (2015).
- 3) 例えば, K. H. Kim *et al.*: Nature **518**, 385 (2015).
- 4) 例えば, K. Tamasaku *et al.*: Phys. Rev. Lett. **121**, 083901 (2018).
- 5) T. Ishikawa *et al.*: Nat. Photon. **6**, 540 (2012).
- 6) Y. Mori, K. Yamauchi, K. Yamamura and Y. Sano: Rev. Sci. Instrum. **71**, 4627 (2000).
- 7) T. Osaka *et al.*: Key Eng. Mater. **523-524**, 40 (2012).
- 8) A. Appel and U. Bonse: Phys. Rev. Lett. **67**, 1673 (1991).
- 9) W. Roseker *et al.*: Nat. Commun. **9**, 1704 (2018).
- 10) T. Osaka *et al.*: Opt. Express **24**, 9187 (2016).
- 11) T. Hirano *et al.*: J. Synchrotron Rad. **25**, 20 (2018).
- 12) D. Zhu *et al.*: Proc. SPIE **10237**, 102370R (2017).
- 13) W. Lu *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **89**, 063121 (2018).
- 14) T. Osaka *et al.*: Opt. Express **21**, 2823 (2013).
- 15) 大坂泰斗: 放射光 **30**, 145 (2017).
- 16) T. Hirano *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **87**, 063118 (2016).
- 17) T. Katayama *et al.*: J. Synchrotron Rad. **26**, 333 (2019).
- 18) T. Osaka *et al.*: IUCrJ **4**, 728 (2017).
- 19) T. Osaka *et al.*: J. Synchrotron Rad. **26**, 1496 (2019).
- 20) Y. Inubushi *et al.*: Appl. Sci. **7**, 584 (2017).
- 21) J. Feldhaus *et al.*: Opt. Commun. **140**, 341 (1997).
- 22) G. Geloni, V. Kocharyan and E. Saldin: DESY, 11-162 (2011).
- 23) R. Lindberg and Yu. Shvyd'ko: Phys. Rev. ST Accel. Beams **15**, 050706 (2012).
- 24) J. Amann *et al.*: Nat. Photon. **6**, 693 (2012).
- 25) I. Inoue *et al.*: Phys. Rev. Accel. Beams **21**, 080704 (2018).

- 26) I. Inoue *et al.*: Nat. Photon. **13**, 319 (2019).
- 27) S. Matsumura *et al.*: Opt. Express **28**, 25706 (2020).
- 28) I. Inoue *et al.*: arXiv:2103.01510
- 29) Y. Shinohara *et al.*: Nat. Commun. **11**, 6213 (2020).
- 30) T. Osaka *et al.*: in review.
- 31) K.-J. Kim, Yu. Shvyd'ko and S. Reiche: Phys. Rev. Lett. **100**, 244802 (2008).
- 32) G. Marcus *et al.*: Phys. Rev. Lett. **125**, 254801 (2020).

● 著者紹介 ●

**大坂泰斗**

理化学研究所放射光科学研究センター
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月から2016年3月日本学術振興会
特別研究員（DC1），2016年4月から
2019年3月理化学研究所放射光科学研
究センター基礎科学特別研究員，2019
年4月より現職。