XFELの概要とSACLAの特徴

理化学研究所 放射光科学総合研究センター 矢橋牧名

Makina YABASHI: Overview of XFEL and SACLA

An overview of XFEL and SACLA is presented. Typical experimental methods for XFEL sources are introduced. Following a historical review, unique features of SACLA and future perspectives are summarized.

1. はじめに

X線自由電子レーザー (X-ray Free Electron Laser: XFEL) は、今世紀になって実用化された新しいX線光源である。米国LCLS (Linac Coherent Light Source) に続き、2012年には、日本のXFEL施設SACLA (SPRING-8 Angstrom Compact free-electron LAser)^{1),2)} がユーザーファシリティとしての運用を開始し、本特集号で紹介されるように目覚ましい利用成果が報告されるようになった。一連の急激な発展は、近年の光科学技術史のうえでも特筆すべき成果と言えよう。

XFELは非常にユニークな特徴をもつが、とりわけ従来のX線光源との顕著な違いの1つは、そのパルス性にある。XFEL光源は、増幅作用により、単一パルス内に膨大なX線光子を生成する。しかも、パルス幅はフェムト秒オーダーと極端に短く、高い空間コヒーレンスも有する。このような超高輝度XFELパルスは、X線管や放射光といった従来のCW的 (もしくは擬CW的) なX線光源とはまったく異なる実験デザインを可能とし、新しいサイエンスの開拓を牽引している。

拙稿では、本号中の各記事の紹介を兼ねながら、XFELの概要とSACLAの特徴について簡潔にまとめてみたい。2章では、XFELの典型的な使い方について紹介する。3章では、XFELの歴史とSACLAのあゆみを概観する。SACLAのユニークな特徴を紹介した後、今後の展望を述べる。

2. どのように使うのか

XFELのユニークな光特性を十二分に活用するために、使う側においても新たな概念の導入と手法の開発が行われてきた。ここでは、その典型例を紹介したい。最も基本的な概念の1つが、「diffraction-before-destruction (破壊前の回折計測)」である。^{3),4)} 強度の高いXFELを試料に照射すると、激しい電離過程を経て試料内の原子は変位し、ついにはクーロン爆発によって試料は破壊されてしまう。

しかし、XFELのフェムト秒のパルス幅は、照射後に原子が動き始める時間 (サブピコ秒からピコ秒のオーダー) より十分短いため、試料の分子構造が変化する前のオリジナルの情報を、回折・散乱・分光などのX線分析手法によって取得することが可能となる。例えば、生体高分子の結晶構造解析において、放射光を含む従来のCW光源では、長時間のX線照射が引き起こす試料の化学的な損傷が問題となっていた。これを抑制するために、試料を低温に冷却するという方法が適用されてきたが、損傷の影響を完全に回避することは不可能であった。これに対し、岡山大学の沈建仁教授らは、SACLAを利用して、光合成の鍵を握る光化学系タンパク質の無損傷の分子構造を決定することに成功した。⁵⁾ また、XFELによって、試料がおかれた環境 (温度・湿度・pHなど) を自在に制御しながら精密構造解析を行うことも可能となった。さらに、入射X線の光子密度を高めていくことにより、ナノ結晶、二次元結晶や単粒子といった微小な試料に対しても、CW光源の限界を超えた空間分解能を達成することができる。生きた細胞のコヒーレント回折イメージング⁶⁾ について、西野吉則氏らの記事を参照されたい。

また、XFELの極短パルス特性を活かすと、フェムト秒の時間分解能で分子構造や電子状態の変化を追いかける、いわゆる「molecular movie (分子動画)」の撮影が可能となる。⁴⁾ 具体的には、系に刺激 (ポンプ) を与え、一定の時間間隔 (ディレイ) をおいてXFELによって状態をプローブするという、ポンプ・プローブ法が用いられる。この技法は、すでにフェムト秒光学レーザーの利用研究において広く用いられてきたが、ポンプとして光学レーザー、プローブとしてXFELパルスを用いることにより、オングストロームの空間分解能とフェムト秒の時間分解能の両立が初めて実現された。光がトリガーになって引き起こす超高速の化学反応や物性変化の起源に迫ることができる期待されている。本特集号には、膜タンパク質、⁷⁾ 光触媒⁸⁾ などへの応用例が南後恵理子氏、上村洋平氏、福澤宏宣氏らによってまとめられている。

さらに、X線光学系を用いると、XFELを極小サイズに集光し、X線の強度を飛躍的に高めることができる。この超高強度X線によって、従来は不可能であった、X線強度に対する物質の非線形な応答を顕在化させることが可能になる。例えば、よく知られたX線の光電効果の過程では、原子がX線光子を吸収し内殻（主にK殻）の電子を放出するが、オーグメント過程若しくは蛍光過程によって、アト秒からフェムト秒のオーダーでL殻の電子が遷移し、K殻の空孔は再び埋められる。しかし、系が緩和する前に次のX線光子がくると、K殻に空孔をもった原子（中空原子：hollow atom）と相互作用することになり、通常とはまったく異なる振る舞いを示す。従来光源ではこのような状態の確率は無視できるほど小さかったが、XFELを用いると、中空原子が多数を占める状態を生成することさえ可能となる。^{9),10)} 1960年代のレーザーの出現によって非線形光学の研究が一気に花開いたように、XFELによって「非線形X線光学」が目覚ましい発展をとげようとしている。詳しくは米田仁紀氏の記事を参照されたい。

3. XFELの歴史

3.1 揺籃期から超大型施設へ

次に、XFELの歴史を簡単にひも解きたい。自由電子レーザー（FEL）は、スタンフォード大学の博士課程の学生であったJohn Madeyによって1960年代末に着想され、1970年代に赤外領域で実証された。¹¹⁾ これは、電子を高速に加速する加速器と、電子を磁場で蛇行させるアンジュレータを組み合わせたものである。最大の特徴は、光増幅をするための非線形媒体として、従来のレーザーと異なり原子に束縛されていない「自由な」電子を用いており、レーザーの波長と電子ビームエネルギーの間に単純なスケール則が成り立つ、すなわちビームエネルギーを上げていくことで短波長化が可能、という点にある。しかしながら、ここで開発されたFEL装置には、光をアンジュレータ内で多数回往復させるための光共振器が用いられており、紫外線より短い波長領域で動作させるのは実際には困難であった。1980年代に、光共振器を使う代わりに、長尺のアンジュレータを用いた「自己増幅自発放射（Self Amplified Spontaneous Emission：SASE）型」のFELが、イタリアとロシアのグループによって提案された。^{12),13)} 1990年代には、高エネルギー加速器技術の進歩、特に電子銃の低エミッタンス化が進み、短波長領域でFELを実現する可能性が見えてきた。1992年には、UCLAのClaudio Pellegriniが、波長1 ÅのSASE-XFELを提案した。これは、スタンフォード線形加速器センター（現SLAC加速器研究所）において1960年代に建設された2マイル線形加速器が生成する、加速エネルギー50 GeVの電子ビームを使って硬X線FELを実現するというものであり、後のLCLS計画へと発展して

いった。LCLSは、2マイル線形加速器の一部を用いた、ビームエネルギー14 GeVのXFEL施設として、2000年代に整備が開始された。2009年4月に、世界で初めて波長1.5 Åの硬X線FELの発振に成功した。¹⁴⁾

一方、ドイツでは、1990年代に、高繰り返しの超伝導加速器を利用したリニアコライダー計画（TESLA計画）の策定が進められた。当時の欧州の高エネルギー物理学研究の拠点であったドイツ電子シンクロトロン（DESY）に、超伝導加速器システムのR&DのためにTESLA Test Facility（TTF）が建設されたが、そこにアンジュレータを付加することにより、SASE-FELの試験も並行して進められた。2000年には当時の世界最短波長（109 nm）の深紫外FELの運転に成功した。¹⁵⁾ その後もTTFは増強を重ね、2005年に極端紫外（Extreme Ultraviolet：EUV）領域のFELのユーザー施設FLASHとして衣替えし、現在に至っている。また、TESLA計画の一部には、超伝導加速器ベースのXFEL施設の建設が含まれていたが、これは欧州のプロジェクトEuropean XFEL計画へと発展し、2009年に建設が開始された。European XFELは、DESYキャンパスからハンブルク郊外にかけて全長3 km以上のトンネルを掘り、17.5 GeVの超伝導加速器を収容するというきわめて大がかりな施設である。2016年に建設が完了し、機器の立ち上げが進められている。ちなみに、TESLA計画の本体であるリニアコライダー計画は、2004年に、国際プロジェクトInternational Linear Collider（ILC）計画に統合され、現在も検討が続けられている。

3.2 コンパクトXFELの提案とSACLAの登場

前節でみたように、XFEL計画は、もともと米国・欧州の超大型の高エネルギー加速器プロジェクトを母体として始まった。したがって、きわめて大規模な施設と、それを建設・運用する多大なコストが前提とされていた。しかしながら、単一の目標を追求する高エネルギー加速器と異なり、XFEL光源は、多様性を身上とする光科学のニーズに応え続けるためのツールであり、世界に1つか2つしか施設がないという状況では、飛躍的な発展は難しい。この問題を解決するには、装置のコンパクト化を推進し、建設・運用コストを低減させることがきわめて重要である。さらに、コンパクト化によって、光源の安定性や制御性も格段に向上することが期待される。

このような背景のもと、理研播磨において、2000年代初頭より、コンパクトXFELの実現可能性の検討が始まった。特に重要なパラメータは、電子ビームのエネルギーである。FELの波長はビームエネルギーの2乗に反比例するため、短波長化のためには電子ビームのエネルギーを高くするというのが従来の常識であり、結果として長大な加速器を必要としていた。一方で、FELの波長はアンジュレータの周期長にも比例する。したがって、短周期長のアンジュレータが実現できれば、ビームエネルギーを抑

図1 SACLAとSPring-8。(SACLA and SPring-8.)

制しながら短波長FELを生成することが可能になる。

このためのキーテクノロジーとして、真空封止型アンジュレータの利用が提案された。この日本発の技術は、従来とは異なり磁石列をすべて超高真空内に配置することで、対向する磁極間の間隙をぎりぎりまで狭くし、短周期長でも十分な揺動磁場を与えるというものである。1990年代に建設されたSPring-8の蓄積リングに本格的に導入され、放射光向けのデバイスとしては十二分な実績を積んでいた。これに、高加速勾配のCバンド加速器システムと低エミッタンス熱電子銃を加えた3つの要素技術の開発が、2001年に開始された。さらに、これらを組み合わせたコンパクトXFELシステムの実証機として、ビームエネルギー250 MeVのSCSS試験加速器の建設が2004年から進められ、2006年には波長49 nmのEUV-FELの生成に成功した。^{16),17)}

このような技術革新を基盤に、2006年、XFEL施設SACLAの建設が開始された。2011年3月には、当初の計画どおり建設を完了(図1)、同年4月より精密調整を開始し、6月には当時の世界最短波長の1.2 Åで硬X線FELの生成に成功した。2012年3月から利用運転を行っている。

このSACLAの成功は、超大型の規模でなくてもXFEL施設が建設・運用できるということを証明したことにはかならず、世界各国を大いに刺激した。特に、スイス・ポールシェラー研究所(PSI)と韓国・ポハン加速器研究所(PAL)は、SACLAに類似したコンパクトXFEL施設の建設を開始し、2016年には、それぞれEUV領域、硬X線領域におけるFEL生成に成功した。European XFELとともに、2017年より利用運転が開始される予定である。

4. SACLAのユニークさ

前章でみてきたように、XFELはまだ歴史が浅い光源であり、さまざまな最新テクノロジーの投入が継続して行われている。特に、SACLAは、世界初のコンパクトFELとして構想されたこともあって、他施設とは明確に異なるいくつかの特徴を有している。ここでは、その一端を紹介したい。

XFEL加速器は、入射部、主加速器部、アンジュレータの3つのセクションから構成される。このうち、入射部

は、電子ビームの素性を支配するためきわめて重要である。SACLAの入射部には、他施設で一般的なRFフォトリソカソード電子銃とは異なり、熱電子銃と多段バンチ圧縮システムの組み合わせが採用されている。結果として、電子バンチの中で限られた時間領域にXFELパルスの発振が集中するようになり、10フェムト秒以下という超短パルス幅で、50 GW以上という高いピークパワーを常時供給することが可能となった。これに対して、LCLSでは、1パルス当たりのフォトン数はSACLAより多いが、パルス幅も数十フェムト秒と長いので、ピークパワーに換算するとSACLAのほうが上回っている。Diffraction-before-destruction法や、非線形X線光学など、「切れのいい」超短パルスを必要とする実験には有利である。

また、アンジュレータに関して、LCLSやFLASHでは、磁極間のギャップが固定されたデバイスが用いられており、波長を変更するにはビームエネルギーを変える必要がある。一方で、SACLAの真空封止アンジュレータは、磁極間のギャップを可変にすることによって、ビームエネルギーを固定したまま、広い範囲にわたって波長を迅速に走査することが可能である。また、全長5 mのアンジュレータが総数で約20台用いられているが、上流セクションと下流セクションのギャップ値を異なる値に設定することにより2色のXFELが生成でき、さらにセクション間のシケインを利用することにより2色のパルスの時間間隔を最大数100フェムト秒まで、サブフェムト秒の精度で制御することが可能である。¹⁸⁾ この2色XFELパルスは、X線ポンプ・X線プローブによる超高速ダイナミクスの探査¹⁹⁾や、非線形X線光学の実験¹⁰⁾において強力なツールとなっている。

また、わが国は、X線オプティクスの研究開発において、半世紀にわたって優れた成果を上げてきた。XFEL向けの開発でも、世界をリードしている。その1つが、集光ミラーの開発である。今世紀に入って、大阪大学の山内和人教授のグループは、Elastic Emission Machining(EEM)による超精密加工技術に基づくX線集光ミラーを開発し、SPring-8において7 nmという極小ビームサイズを実現した。この技術がSACLAにも活用され、ビームサイズを50 nmまで絞ることにより、世界最高のX線強度 10^{20} W/cm²を達成した。²⁰⁾ この超高強度X線を用いて銅原子を励起することにより、世界初の硬X線原子レーザーが実現された。¹⁰⁾ また、XFELのスペクトルを高分解能かつシングルショットで計測するために、高精度ミラーと結晶分光素子を組み合わせたX線スペクトロメータが開発され、²¹⁾ XFELパルス幅の推定²²⁾や、dispersive型のXFEL吸収分光法²³⁾に応用された。さらに、XFELのパルスを光学系で2つに分割し、ディレイをつけて再結合する、split-and-delay光学系の開発²⁴⁾が、世界に先駆けて進められている。

XFELのパルス性を活かすには、シングルショットで計測することが必須となり、多チャンネルの信号を同時に測る二次元検出器の役割がきわめて重要となる。SACLAでは、CCD技術に基づいた高速の二次元検出器(Multiport CCD: MPCCD検出器)²⁵⁾を開発し、多くの利用実験に安定的に適用している。さらに、検出器、データ取得システム、試料チャンバーなどの各コンポーネントを一体化したシステムを構築し、高度な利用を実現している。ビームラインや利用システムの詳しい情報は、本号の登野健介氏の記事を参照されたい。

5. 今後の展望

3章で述べたように、2017年以降、XFEL施設は日米の二極から、欧州・アジア勢も加えた多極へと拡大していく。このような状況の中で、SACLAは、国際的なプレゼンスを維持しながら、サイエンス・イノベーションのさらなる活性化に貢献することが求められる。前章で紹介したような特徴を一層先鋭化させると同時に、XFELをもっと使いたいという利用者からの旺盛な要求に応えるため、SACLAでは、利用機会の拡大を図ってきた。2014年には、2本目の硬X線FELビームラインとしてBL2を建設した。2017年からは、SACLA加速器からの電子ビームをパルスごとに振り分けることにより、²⁶⁾既存のBL3との並行利用を開始する予定である。また、軟X線FEL専用加速器として、SCSS試験加速器をSACLAアンジュレータホールに移設し、2016年より利用を開始した。

また、SACLAは産業イノベーションへの貢献も期待されている。これまでみてきたように、XFELを利用するには新たな手法や装置を用いる必要があり、供用当初は、非専門家や企業が主体となった利用は容易ではなかった。この状況を改善するために、2014年度より、SACLAでは「SACLA産学連携プログラム」(2016年より「SACLA産業利用プログラム」に改称²⁷⁾)を実施してきた。これは、企業、XFEL利用に習熟した利用者(主に大学・研究機関)、SACLA施設の3者が協力して、産業利用振興に必要な調査研究を行うものである。これまでの取り組みによって、産業界の利用が着実に拡大し、2016年度には成果専有利用も開始された。特に、XFELのコヒーレントな超短パルスを使うことで干渉計測などのX線精密計測が容易となり、さまざまな応用につながると期待される。

最後に、世界の潮流に目をむけたい。LCLSでは、既存の施設に加えて、4 GeVの超伝導線形加速器を配備し高繰り返し(〜1 MHz)の軟X線FELを実現する「LCLS-II」の建設を開始した。2020年を目処に利用が開始される予定である。さらに、超伝導加速器を8 GeVまで増強し硬X線領域まで拡大する「LCLS-II-HE」計画も検討されている。これらは、きわめて高い平均輝度が期待

されるが、光学系や試料への熱負荷を考えると、シングルパルス当たりの光量を落とさざるを得ない。また、巨額の建設・運用コストも要する。一方で、SPRING-8、ESRF、APSなどの第3世代放射光源は、「回折限界放射光源(Diffraction Limited Synchrotron Radiation: DLSR)」へのアップグレードを計画しており、サイエンスケースでも重複する部分が増えてくる。両者の特徴を理解しながら、適切に使い分けていくことが重要となろう。さらに将来の大きな目標として、蓄積リングベースのCW-XFEL光源の実現に向けた議論が世界各所で始まっている。テクノロジーの進化の大きな流れをしっかりとらえながら、サイエンスを創っていくことが求められる。

文 献

- 1) T. Ishikawa, *et al.*: *Nat. Photonics* **6**, 540 (2012).
- 2) M. Yabashi, H. Tanaka and T. Ishikawa: *J. Synchrotron Rad.* **22**, 477 (2015).
- 3) R. Neutze, R. Wouts, D. van der Spoel, E. Weckert and J. Hajdu: *Nature* **406**, 752 (2000).
- 4) K. J. Gaffney and H. N. Chapman: *Science* **316**, 1444 (2007).
- 5) M. Suga, *et al.*: *Nature* **517**, 99 (2015).
- 6) T. Kimura, *et al.*: *Nat. Commun.* **5**, doi:10.1038/ncomms4052 (2014).
- 7) E. Nango, *et al.*: *Science* **354**, 6319 (2016).
- 8) Y. Uemura, *et al.*: *Angew. Chem., Int. Ed.* **55**, 1364 (2016).
- 9) H. Yoneda, *et al.*: *Nat. Commun.* **5**, 5080 (2014).
- 10) H. Yoneda, *et al.*: *Nature* **524**, 446 (2015).
- 11) L. R. Elias, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **36**, 717 (1976).
- 12) A. M. Kondratenko and E. L. Saldin: *Part. Accel.* **10**, 207 (1980).
- 13) R. Bonifacio, C. Pellegrini and L. M. Narducci: *Opt. Commun.* **50**, 373 (1984).
- 14) P. Emma, *et al.*: *Nat. Photonics* **4**, 641 (2010).
- 15) J. Andruszkow, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3825 (2000).
- 16) T. Shintake, *et al.*: *Nat. Photonics* **2**, 555 (2008).
- 17) M. Yabashi, *et al.*: *J. Phys. B* **46**, 164001 (2013).
- 18) T. Hara, *et al.*: *Nat. Commun.* **4**, 2919 (2013).
- 19) I. Inoue, *et al.*: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113**, 1492 (2016).
- 20) H. Mimura, *et al.*: *Nat. Commun.* **5**, 3539 (2014).
- 21) M. Yabashi, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **97**, 084802 (2006).
- 22) Y. Inubushi, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **109**, 144801 (2012).
- 23) T. Katayama: *Appl. Phys. Lett.* **103**, 131105 (2013).
- 24) T. Osaka, *et al.*: *Opt. Express*, **24**, 9187 (2016).
- 25) T. Kameshima, *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 033110 (2014).
- 26) T. Hara, *et al.*: *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 033110 (2014).
- 27) <http://xfel.riken.jp/topics/20160328.html>

プロフィール

矢橋牧名 Makina YABASHI
理化学研究所 放射光科学総合研究センター
RIKEN SPring-8 Center
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
1-1-1 Kouto, Sayo, Hyogo 676-5148, Japan
e-mail: yabashi@spring8.or.jp
最終学歴: 博士(工学)
専門分野: X線光学
現在の研究テーマ: X線光学
趣味: ピアノの練習