

X線自由電子レーザー SACLA

兵庫県西部の播磨科学公園都市で2012年に共用を開始した世界で二例目のX線自由電子レーザー SACLAは、日本独自技術を駆使したコンパクト設計に大きな特徴がある。その建設計画の概要を紹介するとともに、光源としての特徴、フォトン・ビームラインと光学系を概説し、「分析」への応用の幾つかを議論する。特に、過渡状態を分析するX線光源として今までにない特徴を持っている。

石川 哲也

1 はじめに

本稿では、2012年3月に共用運転を開始したX線自由電子レーザー SACLAに関して、その基本的な特性を概観し、施設整備の現状を紹介した上で、「分析」分野でどのような使い道があるのかを展望する。もとより、新しいプローブが生まれた時点で、その利用方法のすべてを語りつくすことは不可能であることは十分に認識したうえで、管見を述べてみたい。

X線は波長の短い電磁波であり、1895年にレントゲンによって発見されて以来¹⁾、科学技術の多くの分野で利用されてきた。初期にはその透過性の高さから現在でも広く用いられている医学診断への応用が注目されたが、1911年に、ラウエによって結晶によるX線回折現象が発見されるに至って²⁾、物質の原子レベルでの構造解析に不可欠なプローブとなり、現在では分子量数百万に及ぶ巨大生体高分子の構造解析を可能としている。可視光と同様ではあるが波長が3桁程度短い電磁波であるX線は、原子の内殻エネルギー準位を反映した吸収スペクトルや蛍光スペクトルを与え、これらは原子種や化学状態に特有であるため元素分析や化学状態分析に利用されている。

一方で、レーザーは、多数の励起状態にある原子や分子が、誘導放出によって脱励起しコヒーレントな電磁波を出すものである。その原型はマイクロ波領域の電磁波に対し、アンモニア分子を用いて1953年にタウンズによってメーザーとして作り上げられた³⁾。可視光領域のレーザーは、1960年にマイマンにより、ルビーレーザーとして完成した⁴⁾。その後、非常に多くの種類のレーザーが開発され、幅広い科学技術分野に利用されている。また、半導体レーザーが発明され、レーザーの小型化が進み、CDやDVDの読み取りに利用されるに至って、一家に一台以上の割合で普及することになっ

た。レーザーは、波の位相が揃った光源であり、その利用により「位相」を情報として使うことが可能となった。例えば、三次元の物体像をつくるホログラフィーは、位相の揃った光波、換言すればコヒーレントな光波での干渉現象を利用したものであり、レーザーの利用によって初めて実現したものである⁵⁾。

SACLAはX線のレーザーであり、両者の特徴を兼ね備えている。光で物を見るとき到達可能な空間分解能の限界は、一般には光の波長の程度である⁶⁾。そのため、光でナノメートルの世界を見るためにはナノメートル以下の波長の光、すなわちX線が必要になる。この領域の最も進化した光源は放射光であったが、それといえどもレーザーのようなコヒーレント光源ではなかった。原子の世界を位相情報も含めて見るためのX線レーザーは、レーザーの歴史の非常に初期の段階から有用性が認識され、その実現に向けて多くの努力が続けられてきたが、従来の方式のレーザーで回折領域のX線を発生することには、様々な困難があった。原理的な波長の制約を取り除く方法としての自由電子レーザーは1970年に提案され、世界中で多数の装置が建設されてきた⁷⁾。これは、加速器の直線部に挿入したアンジュレーターの両側に高反射率ミラーを置くことによって共振器を構成し、その中で光と電子の相互作用によって電子を光の波長間隔に整列させ、整列した電子がコヒーレントに運動することによって、コヒーレントな電磁波を放射するものである。しかし、共振器を構成するための高反射率ミラーが存在しないという技術的問題から、X線領域への到達は困難であった。ところが1990年代に、共振器に代えて長いアンジュレーターを利用する自己増幅自発放射 (self-amplified spontaneous emission; SASE) 型自由電子レーザーが提案された⁸⁾。その実現のためには、高品質電子ビームが要求され、リング型加速器ではなく線型加速器をベースとすることによって、技術的にも自由電子レーザーがX線領域に到達する可能性が高まった。これを受けて、米国とヨーロッパで高

SPring-8 Amgstrom Compact Laser; SACLA.

エネルギー線型加速器と長いアンジュレーターとの組み合わせによる X 線自由電子レーザー施設建設計画が策定された^{9),10)}。

日本では、2001 年度から理化学研究所播磨研究所において、KEK と SPring-8 で開発されてきた真空封止型アンジュレーターを利用することによって X 線自由電子レーザーを小型化するための検討が始まり、要素技術研究開発プロジェクトが開始された。翌 2002 年度に、線型加速器のエキスパートである新竹積氏（当時高エネルギー加速器研究機構助教授）を主任研究員として招聘し、極めてオリジナリティの高い要素技術開発によって、2003 年度末頃には、X 線自由電子レーザー施設建設の技術的見通しが立ち、2005 年度に 250 MeV の試験加速器、SPring-8 Compact SASE Source (SCSS) を製作することになった。これと平行して、X 線領域の自由電子レーザーの設計検討が進められたが、2006 年度に始まった国の第三期科学技術基本計画で、「国家基幹技術」としての位置づけがなされ、2006 年度から 2010 年度までの 5 年計画で、8 GeV 線型加速器をベースとした SASE 方式 X 線自由電子レーザー施設を建設することになった¹¹⁾。この施設のハードウェアは 2010 年度末に完成し、SPring-8 Angstrom Compact free electron Laser および略称として SACLA の名前がつけられた。約 3 か月の加速器調整の後、2011 年 6 月に 10 keV でのレーザー発振を観測し、世界で二つめの硬 X 線レーザーを実現した。2012 年 3 月からは SPring-8 と同じように一般共同利用に供されている。

2 SACLA の特徴¹²⁾

X 線自由電子レーザーは、2001 年の研究開発開始時点では未踏であった硬 X 線領域のコヒーレント光という科学技術への強力なツールを提供するものである。光源としての性能は、波長 0.1 nm 以下の X 線領域で、SPring-8 の 10 億倍以上のピーク強度を持つ完全空間コヒーレントなパルス光を発生し、そのパルス幅は SPring-8 の 1/1000 以下のフェムト秒 (10^{-15} 秒) に迫るものとなる。このような性能向上は、フォトンファクトリーのような第二世代放射光施設から、SPring-8 に代表される第三世代放射光施設への性能向上と比較してもはるかに大きい。

この性能の向上は多数の電子が出す X 線がコヒーレ

ントに干渉することによって生ずる。SASE 方式の X 線自由電子レーザーは図 1 に示すように、低エミッタンス電子銃から出た電子ビームが線型加速器で加速され、長いアンジュレーターで発光する構成となっている。線型加速器は低エミッタンス電子銃からの電子ビームの品質を落とさずに加速することが可能である。アンジュレーターに入った電子ビームは最初不規則に並んで光を出す。アンジュレーター内を進行する際に光と電子の相互作用により、電子が光の波長に並ぶようになる。光の波長に並んだ電子が、アンジュレーターの中でコヒーレントに運動して光を出すと、その光はコヒーレントに重なって強め合う。多数の電子に位相関係が存在しない蓄積リングのアンジュレーターでは、 N 個の電子が出す光の強さは 1 個の電子が出す光の強さの N 倍であるが、コヒーレントに強めあう自由電子レーザーの場合には N^2 倍の強度となる。アンジュレーターで光を出した後の電子ビームは電磁石などによって軌道を曲げてダンプに落とし、直線的に進む光だけを実験装置に導いて利用する。

既に述べたように、このような優れた光源は海外でも欧米の 2 箇所で開催が進められており、米国 LCLS は 2009 年に世界で初めての X 線自由電子レーザーとして発振した¹³⁾。それらとの比較を表 1 に示す。日本の計画の大きな特徴は、欧米の 1/4 以下の規模で欧米とほぼ同等、あるいはそれ以上の性能を出す点にある。この小型化には、真空封止アンジュレーターの採用による磁場周期の短縮、磁場周期の短縮による必要電子ビームエネルギーの低減、線型加速器に高周波加速管を採用することによる加速勾配の増大と、その結果としての線型加速器長の短縮等が複合的に寄与している。しかし、すべてをコンパクトにするためには、今までに例のない高品質電子ビームが必要となり、それを供給するための新型電子銃の開発を要請された。また、加速器やアンジュレーターは全長にわたって誤差数 μm 以下の設置精度が要求され、そのための技術開発が行われた。

X 線自由電子レーザーを実現するためには、非常に小さな空間領域に多数の電子を押し込める必要がある。電子は負の電荷を持つので互いに反発し合い、微小空間に閉じ込めることは困難である。しかし、加速された電子では相対論的効果によって反発力が小さくなり、原理的には実験室系からみた微小空間に大量の電子を詰め込

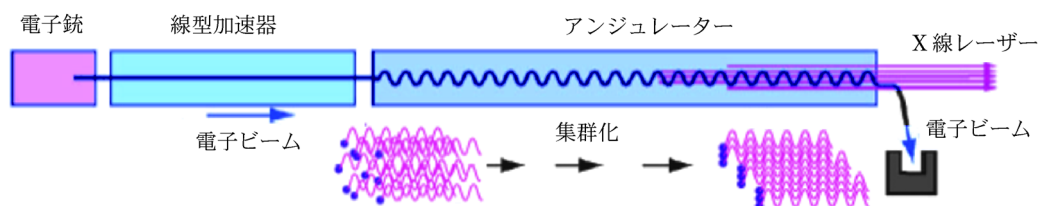


図 1 X 線自由電子レーザーの構成

表1 欧・日・米の X 線自由電子レーザー計画

我が国と欧米における XFEL 開発計画

	【欧州】 DESY : Deutsches Elektronen Synchrotron (ドイツ電子シンクロトロン研究所) European X-ray Free Electron Laser	【日本】 理化学研究所 & 高輝度光科学研究センター	【米国】 SLAC : Stanford Linear Accelerator Center (スタンフォード大学線型加速器 研究センター) LCLS : Linac Coherent Light Source
全長	3.3 km	0.7 km	4 km
発振波長	0.085 nm	0.06 nm	0.15 nm
レーザー発振 に必要な加速 エネルギー (その分だけ加速 器が必要)	25 GeV アンジュレーター周期長: 50 mm	8 GeV アンジュレーター周期長: 15 mm (アンジュレーター周期長が短いほど、必要エネル ギーを抑えることができる)	15 GeV アンジュレーター周期長: 30 mm
総コスト	9.08 億ユーロ (約 1300 億円)	369 億円	6.15 億ドル以上 (約 720 億円)
運転開始	2013 年	2010 年	2009 年~2010 年
特徴	EU 等 13 ヶ国共同プロジェクト プロトタイプ機にて、波長 13 nm の レーザー発振に成功	世界最高性能を世界に先駆けて 実現。SPring-8 と XFEL が共存す る世界唯一の放射光研究拠点。	DOE 研究施設整備計画において プライオリティ第 3 位に位置付 け。既存施設の活用により、3 億 ドル以上を節減



ドイツ・ハンブルグ



SPring-8
XFEL 建設予定地



米国カルフォルニア州

むことが可能になる。日本の X 線自由電子レーザー計画は、このことに基づいて、加速しながら進行方向の電子ビームサイズを圧縮していく方式をとっている。この考え方は、欧米の RF レーザー電子銃によって最初から高密度電子ビームを作ってそれを高勾配加速器で加速するのは対照的であるため、当初は理解を得られなかった。しかし、2005 年に試験加速器を製作し、2006 年に波長 49 nm での自由電子レーザーを実現¹⁴⁾すると、筆者らの考え方の正しさが認められ、小規模な SASE 型自由電子レーザーに採用しようという動きがヨーロッパを中心に始めている。

単体としての性能のほかに、日本の計画には SPring-8 と同一サイトに建設されるという大きな特徴がある。完成した施設全景を図 2 に示す。また全システムの概念図を図 3 に示す。X 線自由電子レーザー用の線型加速器は SPring-8 の 1 km ビームラインと平行に設置されている。SPring-8 蓄積リングから遠い側に電子銃が設置され、線型加速器で電子が加速される。線型加速器終端には、振り分け電磁石が設置され、5 本の平行な FEL ラインと、SPring-8 入射ラインの総計 6 本の電子ビームトランスポートに電子ビームを振り分けることができる。各 FEL ラインでは長尺アンジュレーターで X 線レーザー光を作り、蓄積リング棟の近くに設置される実験研究棟に導かれるが、初期段階では 5 本のうちの 2 本にアンジュレーターが設置されており、中央の BL3 が硬 X 線 FEL ライン、端の BL1 が広帯域自発光ラインである。実験研究棟の後方には、SPring-8 からの放射光を導入することが可能な相互利用施設があり、X



図 2 SACLA 全景

線自由電子レーザーでポンプし、放射光 X 線でプローブするような測定手法が利用可能となる。また、一つの試料を X 線自由電子レーザーと放射光の様々な計測手法を組み合わせ、多角的に理解する新しい方法論の開発が可能となるだろう。

このように光源としてのピーク性能で比較すると SPring-8 をはるかに超えたものとなるが、もちろん弱点がないわけではない。一つは繰り返しであり SPring-8 が最大約 500 MHz の繰り返しを持つのに対して SACLA は最大でも 60 Hz である。また、ピーク強度が非常に大きいため、多くの場合 1 パルスを試料に当てると試料は破壊されるので、同一試料での時間経過計測は厳密な意味では不可能である。このため、同一試料の時間経過は SPring-8 で計測し、SACLA では瞬間瞬間の計測を行うといった使い分けが重要となる。

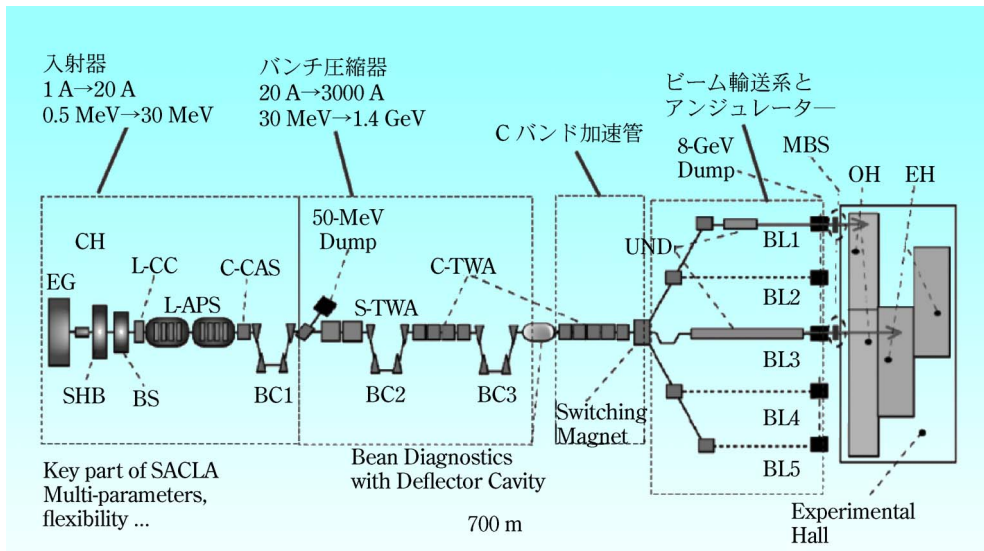


図3 SACLA システム概要

3 SACLA のフォトン・ビームラインと光学系

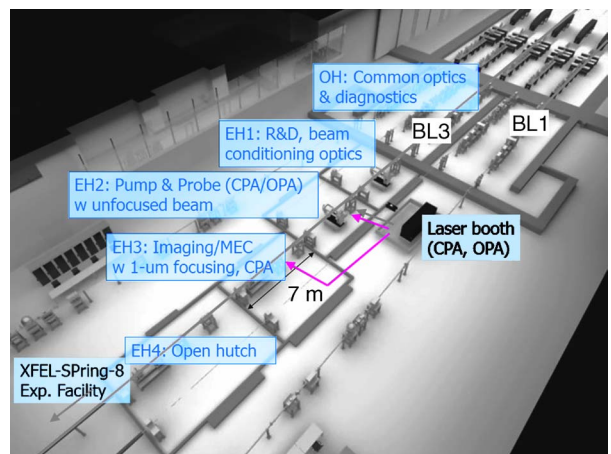
SPring-8 のような放射光蓄積リングの場合には、加速器が完成し運転を開始すれば、すぐさまある程度の放射光を使うことが可能となるが、X線自由電子レーザーでは、加速器が完成してからレーザー光を出すまでに様々な調整が必要となる。これは加速器技術として非常に面白いものを含んでおり、特にアンジュレーターをどのように調整するかが要となる。これらの加速器技術の詳細は本稿の読者の興味の範囲外だと思われるが、関心があれば田中による解説¹⁵⁾を参照されたい。アンジュレーター調整はフォトン・ビームラインを有効活用することにより、極めて迅速かつ合理的に進められることを見いだした。これには、フォトン・ビームラインが加速器コミッショニング以前にほぼ完成していたことが大きく寄与しているが、本章ではこのフォトン・ビームラインを概観する。

図4に示すSACLAの実験研究棟が完成したのは2010年5月末であり、それ以降フォトン・ビームラインの建設と実験ハッチの建設が急ピッチで進められた。

フォトン・ビームラインの基本的な設計概念はSPring-8のビームラインと同一である。将来的に5本のラインが約2 m 間隔で平行に配置されるという幾何学的特徴から、光学ハッチを建物建設と同時にコンクリートで建設し、実験ハッチはSPring-8と同様に鉄-鉛-鉄の構造体で遮蔽する構造とした。5本のラインに対して光学ハッチは2室となっており、片側に3本分、逆側に2本分が收容される。フォトン・ビームラインのフロントエンド部はアンジュレーターが収納されているアンジュレーターホール内に設置することにより、全体的なスペースを節約している。現在整備されているライン



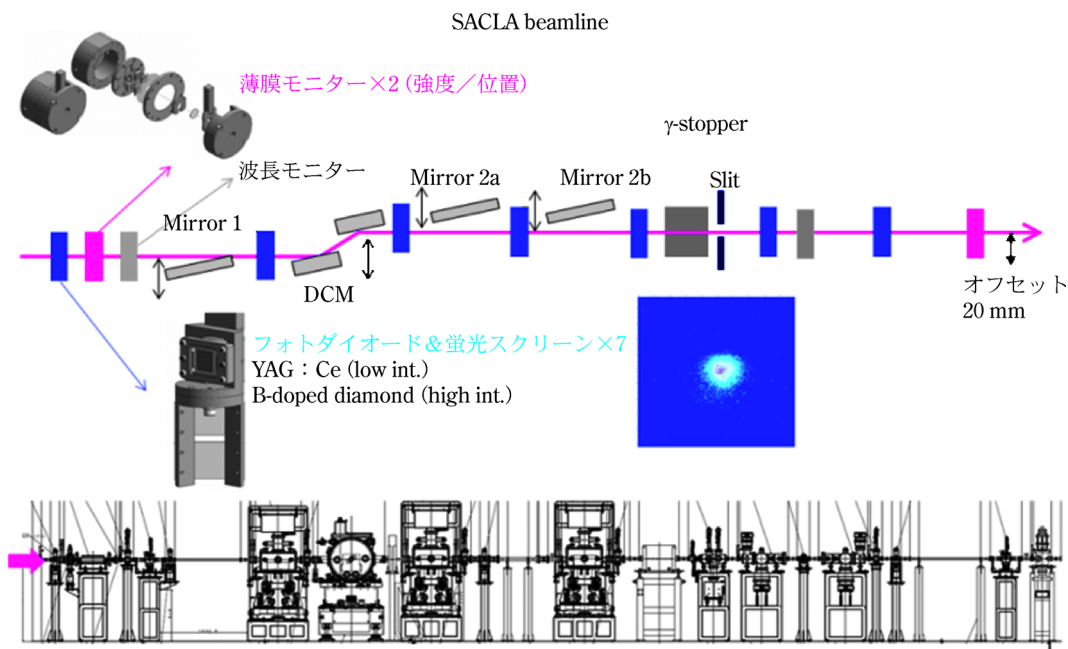
図4 SACLA 実験研究棟



OH (光学ハッチ)：共通光学系と診断系，EH1 (実験ハッチ 1)：R&D およびビーム整形光学系，EH2 (実験ハッチ 2)：非集光ビームによるポンプ・プローブ計測，EH3 (実験ハッチ 3) 1 μm 集光ビームによるイメージング/極端条件下物性研究，EH4 (実験ハッチ 4) オープンハッチ，Laser Booth：レーザーブース，XFEL-SPring-8 Exp. Facility：相互利用実験施設

図5 SACLA ビームライン鳥瞰図

は硬自由電子レーザーとしてのBL3と広帯域光を利用するBL1であるが、ここではBL3について紹介する。



Mirror 1：第一ミラー，DCM：二結晶分光器，Mirror 2a：第二ミラー a，Mirror 2b：第二ミラー b， γ -stopper：ガンマ線ストッパー，Slit：スリット

図 6 SACLA BL3 の光学系

ビームライン全体の鳥瞰図を図 5 に示す。

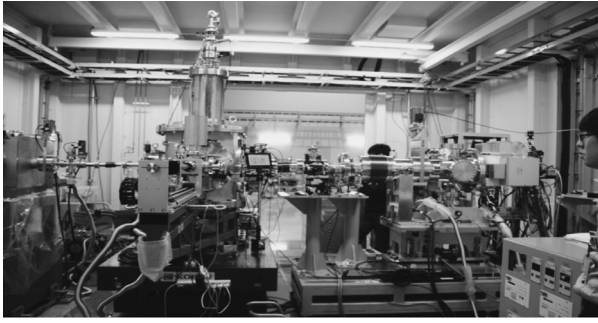
硬 X 線自由電子レーザービームライン BL3 の光学系を図 6 に示す。この光学系は、ミラーモードと分光器モードで運用されるが、ミラーモードには照射角 4 mrad の「低エネルギーミラーモード」と照射角 2 mrad の「高エネルギーミラーモード」がある。いずれのモードでも、光源からのダイレクトビームと、実験ハッチに導かれるビームの間には 20 mm のオフセットがある。二つのミラーモードでは、初段ミラー (Mirror 1) は共通で、後方に低エネルギー側を受ける Mirror 2a と高エネルギー側の Mirror 2b が独立に設置されている。三つのミラーはそれぞれビームからの退避が可能であり、二結晶分光器を用いる分光器モードでは、すべてのミラーが光軸上から退避される。二結晶分光器は、Mirror 1 と 2a の間に設置されていて、その分光結晶としては Si 111 が使用されている。Mirror 2b の後方にガンマ線ストッパーが置かれ、電子ビーム軸上で発生した制動放射ガンマ線が実験ハッチに届かないように遮蔽する。低エネルギーミラーモードでは 3~7.5 keV の X 線が、高エネルギーミラーモードでは、3~15 keV の X 線が利用でき、「分光器モード」では 4~30 keV の X 線を利用することができる。

ビームライン光学系には、光学調整や計測パラメーターモニターのために 7 台のフォトダイオード/スクリーンモニターと 2 台の薄膜散乱位置強度モニター、1 台の波長モニターが設置されている。スクリーンとしては、低強度光に対応する YAG と、高強度に対応するポロンドープダイヤモンドの二種類が準備されている。薄

膜散乱位置強度モニターは入射光を薄膜に通したときに生じるコンプトン散乱 X 線を四つのフォトダイオード検出器で計測し、散乱強度の総和から入射強度を、対向する検出器間での散乱強度の差からビーム位置をモニターするものである¹⁶⁾。波長モニターはナノ形状多結晶ダイヤモンドでできた薄膜からのデバイエーションリングを二次元検出器で計測することにより、X 線波長を評価するために用いられる¹⁷⁾。

図 6 に OH で示される光学ハッチ内の光学系で整形された X 線レーザー光は、タンデムに四つ並べられた実験ハッチ EH1~EH4 内に導かれる。EH1 は R&D やビーム整形光学系の設置に用いられる。EH2 の脇にレーザーブースが置かれ、長波長レーザー光が EH2 と EH3 に導入される。EH2 には、長波長レーザー光と X 線レーザー光を用いたポンプ・プローブ実験装置が入る。EH3 には、KB ミラー集光系が置かれ、焦点位置では 1 μ m 径の集光ビームが得られる。ここでは、イメージング研究や極端条件下材料科学研究が行われる。EH4 はオープンハッチであり、ユーザーが持ち込んだ装置を入れて使うことができる。実験研究棟内の実験ハッチはここまでだが、ビームラインは更に後方に延び、建物から一端出て、XFEL-SPring-8 相互利用施設に入る。相互利用施設では、SACLA の X 線レーザーと SPring-8 のアンジュレーター X 線が同一試料上に導かれ、二つのビームを用いたポンプ・プローブ計測が可能となる。

実験ハッチ内で利用実験に用いるための装置は、施設側と外部の大学等とが協力して開発してきた。すでに 2 台のイメージング装置、ポンプ・プローブ計測装置、



左の上流側から、集光ミラー、クライオ試料チェンバーが並び、フライトパスを経て右端の Octal MPCCD 検出器で散乱イメージが記録される

図7 SACLA でのクライオ試料イメージング装置

AMO 実験装置などが整備されてきているが、一例としてイメージング装置の配置例を図7に示す。

4 SACLA の「分析」への応用

SACLA に限らず、世界中の X 線自由電子レーザー施設の計画段階で、利用方法として検討されたのは、(i) 結晶でない単粒子からの X 線コヒーレント散乱を用いたイメージング、(ii) X 線領域でのポンプ-プローブ計測、(iii) 非常に強い X 線レーザーと物質との相互作用によって生ずる諸現象の基礎研究、などである。世の中の新光源の常として、光を見てから次々と新しい利用法が考案されているが、ここでは上述の三つのカテゴリーを解説し今後の分析分野への応用可能性を含めて展望したい。

4.1 X 線コヒーレント散乱イメージング

私たちが眼でものを見る場合、対象物から散乱された光 (= 波長 $0.36 \sim 0.83 \mu\text{m}$ の電磁波) を、眼の水晶体 (= 光学レンズ) で網膜上に結像し、そこで光シグナルを電気シグナルに変換して脳に送り、対象物の形状や色を認識している。波長の短い X 線でも、水晶体に匹敵するような高性能光学レンズが存在し、また十分な空間分解能を持つ検出器が存在するのであれば、同様な結像系を構成することによって原子レベルの実像観察が行えるのであるが、残念ながら X 線領域にはそのようなレンズや検出器は存在しない。レンズの作用は数学的にはフーリエ変換で表されるので、対象物から散乱された X 線波動場が位相を含めて解^{わか}っていれば、それを数学的にフーリエ変換することによって実像を得ることが可能である。しかし、現状の X 線検出器は位相の消えた強度のみを記録するものであり、その強度データだけでは実像の回復はできない。ところが、入射電磁波が空間的にフルコヒーレントである場合、対象物からの散乱強度をナイキスト周波数より細かい間隔でサンプリング (オーバーサンプリング) すると、強度情報から位相情報を回復することが原理的に可能となり、散乱強度情

報のみから実像を数学的操作によって求めることが可能となる。このイメージング手法は、コヒーレント散乱イメージング法と呼ばれ、1999年に軟 X 線領域で実験的に示されて¹⁸⁾以来、SPring-8 を含む多くの第三代放射光施設や X 線自由電子レーザー施設で精力的に研究が進められている¹⁹⁾。

第三代放射光施設では、アンジュレーター光の中心部をピンホールで切り取るによりコヒーレント成分を選択して実験を行うが、現状で数 nm の空間分解能に到達している²⁰⁾。この場合には、X 線強度は試料を破壊するには至らないので、試料を回転させ異なる方向からの散乱パターンを計測することによるトモグラフィー計測が可能となり、三次元イメージング像を再構築することができる。

X 線自由電子レーザーからの超高強度 X 線を用いると、1パルスの照射によって試料は壊れてしまう。したがって、同一試料を回転することによるトモグラフィー計測は不可能であり、三次元像を得るためには異なる考え方が必要となる。同じあるいは類似の形の試料を大量に準備できる 1 分子のイメージングのような場合には、様々な方位からの多くのイメージから三次元像を再構成する。細胞中のオルガネラのように、一つ一つは厳密には同じ形ではないにせよ、ほぼ同一の形をもつものについても、同様に三次元像を再構成することが可能となろう。また非常に対称性の高い、ある種のウイルスやある種のナノ粒子の場合には、対称性を利用することによって、一方位のみ散乱データから 3 次元実空間像の再構成に進み得る場合もあるだろう。

計算機シミュレーションの結果によれば、分子量 100 万程度のタンパク 1 分子を考えると、100 nm 径の 8 keV の X 線光子が 10^{12} /秒あると、原子分解能での構造解析が可能になる²¹⁾。SACLA や LCLS は現状では 1 μm 径に $10^{10} \sim 10^{11}$ /秒程度の X 線光子が来るので、1 分子構造解析が可能になる入射光子密度に対して 3~4 桁不足している。これは、光源側でのシーディング技術による強度増強や集光技術の改良などによって、十分克服可能な範囲に入っているため、近い将来 1 分子構造解析にしての X 線強度面からの隘路^{あいろ}は解消される。但し、試料のハンドリングにはまだ様々な問題があり、今後の研究開発が待たれている。コヒーレント散乱イメージングに関しては、散乱パターンの数学的性質を利用した超解像の可能性の検討がなされるべきであろう。

SACLA には、クライオ EM に対応するコヒーレント散乱イメージを計測するための実験装置「KOTOBUKI」と、単一分子、液滴中分子などからのコヒーレント散乱イメージを計測するための「MAXIC」の二つの実験装置が準備され、それぞれ一般共用に供されている。これらの詳細に関しては、SACLA のウェブサイトを参照されたい²²⁾。

4・2 X線ポンプ・プローブ計測

超高速光パルスを二つ使って、片方で光誘起反応を起こさせ、他方でその影響を計測する「ポンプ・プローブ計測」は、超高速レーザーの開発とともに生まれ、1999年 Zewailはこの開発と応用に対してノーベル化学賞を授与された²³⁾。従来フェムト秒レーザー等の超高速レーザーの一つのパルスを光学的に遅延時間のついた2パルスに分割して、一方をポンプ光、他方をプローブ光として用いることにより、光誘起反応後の光学応答が時間的に変化する様子を計測する方法として開発されたものであるが、X線自由電子レーザーでは、レーザーと自由電子レーザーの独立2光源を用いたポンプ・プローブ計測が主流となる。

可視や赤外レーザーをポンプ光として用い、X線でプローブすれば、原理的に原子分解能での電子や原子核の動きを捉えることが可能になる。またX線をポンプ光として用いると、内殻励起後の動的過程の追跡が可能になる。X線でのプローブを前項のコヒーレント散乱イメージングと組み合わせることによって、高速での試料の溶解、蒸発、昇華などのプロセスによるナノ粒子試料等の形状変化を原子レベルで追跡することが可能となろう。広い意味での光誘起プロセスとしてのレーザー圧縮による高圧相転移や、レーザープラズマ生成過程なども、原子レベルでの理解が可能となろう。

しかし、現状では独立なクロックで動いている二つの超高速パルス光源を同期させて利用するために、パルス間の時間ジッターが大きな問題となる。現段階で、ポンプ光、プローブ光ともにさほどの困難なくパルス幅10フェムト秒とすることができるが、パルス間隔の時間ジッターは数百フェムト秒におよび、これを抑えることが非常に重要な課題となっている。時間ジッターを抑えることと並行して、二つのパルスの到着時間を精密計測し、パルス間隔もデータとして取得する「ポスト・アナリシス」も、様々な方法が検討されている。例えばLCLSではGaAs結晶がレーザー照射によってX線吸収率が変化することを利用して、ポンプレーザーとプローブX線の到着時間を正確に測る試みがなされており²⁴⁾、SACLAでも同様な方法の採用が検討されている。

X線自由電子レーザーのX線パルスを遅延時間のついた同一光軸上の2パルスに分割するX線パルススプリッターも、完全結晶光学系の組み合わせを用いて開発されている。X線を数十 μm 程度の薄い結晶のブラッグ反射と透過によって二つの光路に分割し、結晶光学系を用いて遅延時間を作り、再び薄い結晶を用いて二つのパルスを同一光軸上に戻してやる(図8)。一方の光路を作る結晶を動かすことによって光路長を変化させることが可能であり、そうすることによってオートコリレーターとして働き、X線パルス幅の測定に利用することができる。また、時間間隔可変な二つのX線パルスが

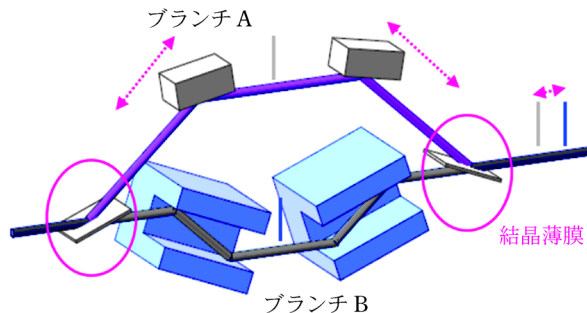


図8 X線パルス・スプリッター・ディレイ

得られることから、X線光子相関分光計測²⁵⁾に利用することができる。

4・3 X線レーザーと物質の相互作用

非常に強いX線レーザーが物質に当たる場合の相互作用は、通常の弱いX線の場合とは変わってくる。周波数が大きなX線領域では、一定の光電場にたいするポンデラモティブエネルギーは小さくなり、「強光子場」領域とされる場のパワー密度も周波数の低い可視光領域に比べれば大きくなる。

SACLAでは、実験ホールでの1 μm 集光によって 10^{17} W/cm^2 オーダーのパワー密度が実現され、さらに相互利用実験施設での50nm集光では 10^{21} W/cm^2 オーダーのパワー密度が実現される。X線領域でのパワー密度としては、未踏の領域に入り、物質との相互作用の観点からも、あまりよく解っていない領域に突入することになる。

3月の供用開始から本原稿を準備している7月までに、ある程度重たい原子でもK殻の二つの電子が共にはじき出される「ダブルコアホール」状態の形成が可能であり、精密構造解析を行う際に必要となるX線の原子散乱因子の異常分散補正項に高次の効果を含める必要があることが明らかになった。

その他にも、光が強いことによる様々な「非線形現象」が見え始めている。強力なX線レーザーと物質の相互作用に関しては、早晚徹底したレビューが必要となるだろう。

4・4 その他

4・1で、単一分子でのタンパク構造解析には現状の光子密度では足りないことを述べたが、LCLSでも事情は同様で、タンパク分子の構造解析に対する新しいアプローチが試みられている。現状の第三世代放射光を用いた構造解析でのボトルネックは結晶成長となっており、X線結晶構造解析に利用可能な数十 μm サイズの結晶が得られるかどうか、構造解析の成否を決める一要素となっている。しかし、膜タンパク等の結晶化が難しいとされてきたタンパクでも、 μm サイズの微小結晶はでき

ていることが解ってきており、このような小サイズの結晶を大強度の X 線自由電子レーザーで照射して、結晶構造解析手法で原子座標を決定する試みが始まっている。

一方で、第三世代放射光で構造解析が行われた試料であっても、照射中での試料ダメージが問題になる場合が多々あり、大強度 X 線自由電子レーザーでシングルショットのデータ収集を行うことによってダメージを回避する試みが行われている。

5 おわりに

本稿では X 線自由電子レーザー SACLA を紹介し、その利用法についての管見を述べたが、一般の利用を開始して半年もたない段階での展望であるため、可能性の極々一部分に過ぎないことには十分にご留意いただきたい。そうではあっても、半年の利用を経て、SACLA が大活躍しそうな領域は「過渡状態」の計測であることは、一層明白になってきつつある。これから数年間は、様々な進展が期待されるので、ぜひご注視いただければ幸甚である。

本稿は、プロジェクトを代表して執筆したものであり、その内容はプロジェクトメンバーや共同研究者の努力の賜物である。多数にわたるため個々のお名前は挙げることはしないが、深く感謝する。

文 献

- 1) W. C. Röntgen : *Ann. Phys.* (second ser.), **64**, 1, 13, 19 (1898).
- 2) L. V. Azaroff : “*X-ray Diffraction*”, (1974), (McGraw Hill, New York).
- 3) J. P. Gordon, H. J. Zeiger, C. H. Townes : *Phys. Rev.*, **95**, 282 (1954).
- 4) T. Maiman : *Nature* (London), **187**, 493 (1960).
- 5) 例えば, P. Hariharan : “*Basics of Holography*”, (2002), (Cambridge University Press, Cambridge).
- 6) 例えば, E. Hecht : “*Optics 4th Edition*”, (2002), (Addison Wesley, Boston).
- 7) J. M. J. Madey : *J. Appl. Phys.*, **42**, 1906 (1971).
- 8) R. Bonifacio, C. Pellegrini, L. Narducci : *Opt. Commun.*, **50**, 373 (1984).
- 9) <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls/> (2012 年 10 月 9 日確認)
- 10) <http://xfel.de.de> (2012 年 10 月 9 日確認)
- 11) 第三期科学技術基本計画 (<http://www8.cao.go.jp/cstp/kihonkeikaku/honbun.pdf>) (2012 年 10 月 9 日確認)
- 12) SPring-8 Compact SASE Source (SCSS) : Conceptual De-

sign Report (<http://www-xfel.spring8.or.jp/SCSSCDR.pdf>) (2012 年 10 月 9 日確認)

- 13) P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. Bucksbaum, R. Coffee, F.-J. Decker, Y. Ding, D. Dowell, D. Edstrom, A. Fisher, J. Frish, S. Gillevich, J. Hastings, G. Hays, Ph. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, M. Messerschmidt, A. Miahnahri, S. Moeller, H.-D. Nuhn, G. Pile, D. Ranter, J. Rzepiela, D. Schultz, T. Smith, P. Stefan, H. Tompkins, J. Turner, J. Welch, W. White, J. Wu, G. Yocky, J. Galayda : *Nature Photonics*, **4**, 641 (2010).
- 14) T. Shintake, H. Tanaka, T. Hara, T. Tanaka, K. Togawa, M. Yabashi, Y. Otake, Y. Asano, T. Bizen, T. Fukui, S. Goto, A. Higashiya, T. Hirono, N. Hosoda, T. Inagaki, S. Inoue, M. Ishii, Y. Kim, H. Kimura, M. Kitamura, T. Kobayashi, H. Ohshima, K. Onoe, K. Shirasawa, T. Takagi, S. Takahashi, M. Takeuchi, K. Tamasaku, R. Tanaka, Y. Tanaka, T. Tanikawa, T. Togashi, S. Wu, A. Yamashita, K. Yanagida, C. Zhang, H. Kitamura, T. Ishikawa : *Nature Photonics*, **2**, 555 (2008).
- 15) 田中 均 : SPring-8 利用者情報, **17**, 42 (2012).
- 16) K. Tono, T. Kudo, M. Yabashi, T. Tachibana, Y. Feng, D. Fritz, J. Hastings, T. Ishikawa : *Rev. Sci. Instrum.*, **82**, 023108 (2011).
- 17) Y. Inubushi et al. : *Rev. Sci. Instrum.*, to be published.
- 18) J. Miao, P. Charalambous, J. Kirz, D. Sayre : *Nature*, **400**, 342 (1999).
- 19) J. Miao, T. Ishikawa, Q. Shen, T. Earnest : *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **59**, 387 (2008).
- 20) Y. Takahashi, N. Zettsu, Y. Nishino, R. Tsutsumi, E. Matsubara, T. Ishikawa, K. Yamauchi : *Nano Lett.*, **10**, 1922 (2010).
- 21) J. Miao, K. O. Hodgson, D. Sayre : *PNAS*, **98**, 6641 (2001).
- 22) <http://xfel.riken.jp> (2012 年 10 月 9 日確認)
- 23) S. Pedersen, J. L. Herek, A. H. Zewail : *Science*, **266**, 1359 (1994).
- 24) S. M. Durbin, T. Clevenger, T. Graber, R. Henning : *Nature Photonics*, **6**, 111 (2012).
- 25) W. Roseker, H. Franz, H. Schulte-Schrepping, A. Ehnés, O. Leupold, F. Zontone, A. Robert, G. Gruebel : *Opt. Lett.*, **34**, 1768 (2009).



石川哲也 (Tetsuya ISHIKAWA)

物理化学研究所播磨研究所 (〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1)。東京大学大学院工学系研究科博士課程修了。工学博士。《現在の研究テーマ》X 線領域でのコヒーレント光学研究。《主な著書》“Handbook on Synchrotron Radiation, Vol. 3” (共著) (North Holland)。E-mail : ishikawa@spring8.or.jp