

## 3-2 ビームライン・実験ステーション

SACLAは、世界で初めてのコンパクトXFEL施設として、2012年3月から供用運転を開始した。2012年度は、通年の供用運転として初年度にあたる。施設者・利用者双方が経験を積み議論を重ねたことにより、年度の後半では、実験の信頼性と効率を大幅に向上させることができた。

また、利用運転と並行して、ビームライン光学系・診断系、並びに実験装置・手法の開発も積極的に行ってきた。特に、光特性の診断結果から、SACLAのパルス幅は、当初想定されてきた値よりかなり小さく、通常運転時で10フェムト秒以下であることがわかり、ピークパワーも40 GW以上という高い値が見込まれている。さらに、空間的にビームを絞ってパワー密度を上げるために、大阪大学・東京大学との共同研究のもと極限集光光学系の導入も進めた。このような空間・時間的に極めて高い密度のX線を利用することにより、X線量子光学・非線形光学・高エネルギー密度科学などの先端的な分野において世界をリードする成果が出始めている。一方で、産業利用も含む汎用的な利用を進展させるための技術開発も極めて重要であり、利用者と協力しながら進めている。

本章では、はじめにビームライン・実験ステーションの高度化の概要を述べ、次いでハードウェア、ソフトウェアの具体的な開発状況を紹介し、利用実験の概要をまとめる。

最後に、長年にわたってSCSS試験加速器の利用にご尽力された永園充チームリーダーが、2012年8月に不慮の事故により急逝された。これまでの数々の貢献と業績に深く感謝を捧げるとともに、心からご冥福をお祈りしたい。

XFEL研究開発部門  
ビームライン研究開発グループ  
矢橋 牧名

### 3-2-1 ビームライン・実験ステーションの高度化

2012年3月より、硬X線FELビームライン (BL3) および広帯域自発光ビームライン (BL1) の供用が開始され、52件の利用実験課題が2012年度内に実施された。いずれの課題もBL3を利用して実験が行われた<sup>[1, 2]</sup>。実験の舞台となったのは5つの実験ステーション (EH1～5) であり、上流から、先進オプティクス (EH1)、ポンプ・プローブ (EH2)、コヒーレント集光 (EH3)、大型装置 (EH4)、SACLA-Spring-8相互利用 (EH5) という構成になっている。初期の立ち上げフェーズに必要な実験の多様性を確保するために、これらの実験ステーションでは、個別の利用実験装置は可搬式を原則としている。また、基幹実験システムとしてフェムト秒同期レーザーシステム<sup>[3]</sup>、1マイクロ集光装置<sup>[4]</sup>等が常設されている。

利用実験と並行してビームラインと実験ステーションのアップグレードを行った。次節で述べる新規装置の導入のほか、光診断システムの精度向上、ビームライン機器制御ソフトの安定性向上とユーザーインターフェースの整備など、ハードウェアとソフトウェアの両面で高度化が進められた。相互利用実験施設においては、大強度レーザー導入のためのクリーンハッチが建設された。また、ビームタイムが有効に利用されるように、実験準備のための環境を充実させた。例えば、各種顕微鏡等を備えた試料準備室、同期レーザーのオフライン試験設備などが整備された。さらに、実験ステーションの実験装置の入れ替えを効率良く安全に行うために、精密アライメントシステムを導入し実施した。

### 3-2-2 利用実験装置の開発

ダイヤモンド移相子、回折格子型ビームスプリッター<sup>[5]</sup>、2段集光システム、アライバルタイミングモニター、SFX (Serial femtosecond crystallography) 装置などの開発を進め、XFELを用いて試験実験を行った。各装置の主な機能と応用例を表1にまとめた。詳細な仕様などの情報は、

表1 2012年度に開発が進められた利用実験装置の例。

名称	主な機能	応用例
ダイヤモンド移相子	偏光制御	磁性試料の電子状態観察
回折格子型ビームスプリッター	ビーム分割 (測定用と参照用の光の供給)	X線分光計測
2段集光システム	ナノスケール集光	X線非線形光学
アライバルタイミングモニター	XFELと同期光学レーザー間の到達遅延時間計測	ポンプ・プローブ実験一般
SFX装置	微結晶の回折像計測	微小蛋白質結晶の構造解析
高強度レーザー	100 mJ フェムト秒パルスの供給	ポンプ・プローブ実験

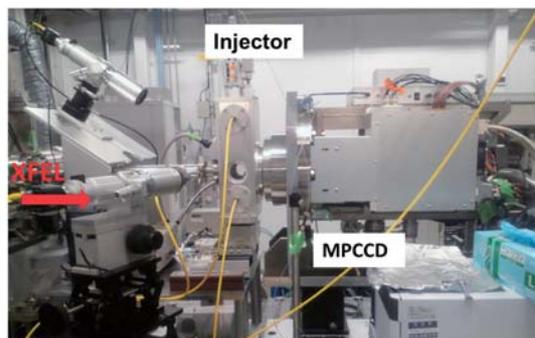


図1 EH3に設置されたSFX装置の写真。XFELビームは、KB光学系によって1  $\mu\text{m}$ に集光される。

SACLAのホームページ等にて公開を進めている。

一例として、SFX装置の写真を図1に示す。文科省XFEL重点戦略課題の岩田想グループと連携して開発整備が行われている。主として、試料チャンバー、試料インジェクターとしての液体ジェットノズル、MPCCD (multiport CCD) 検出器によって構成されている。液体に懸濁させた数ミクロンのタンパク質結晶をインジェクターから導入し、1ミクロン集光装置からの集光ビームを照射することができる。MPCCDは約110 mm  $\times$  110 mmのセンサー面を有している。図1に示した検出器はSWD (Short working distance) 型と呼ばれ、試料とセンサー面の距離(カメラ長)を50 mm程度まで短くできるような構造となっている。試験実験では、カメラ長60 mm (角度範囲 $\pm 43^\circ$ )でリゾチーム結晶の回折パターンを測定した。単一パルスの露光で取得した回折像を数千枚取得し、電子密度の再構成に成功した。測定と解析の効率を高めるため、引き続き実験装置とデータ処理システムの開発を進める予定である。

### 3-2-3 XFEL光診断

XFEL光診断は、実験データの解析に必須であるとともに、加速器運転の安定化・高度化にとっても非常に重要である。SACLAでは、ビームラインに常設されている光診断機器によって日常的なXFEL光のパラメータの測定が行われている。さらに、より高度な光診断を行うための先進的な測定装置の開発も行われている。ここでは、後者の取り組みを紹介する。

#### ・絶対強度計測<sup>[6]</sup>

産業技術総合研究所で開発された極低温X線放射計と、ドイツのDESY (Deutsches Elektronen-Synchrotron) およびPTB (Physikalisch-Technische Bundesanstalt) にて開発されたGMD (Gas Monitor Detector) を用いて、XFELのパルスエネルギー計測を行った。一次標準測定器である極低温X線放射計を用いることで、硬X線FELの絶対強度測定に初めて成功した。測定結果を用いてBL3の強度モニター(薄膜散乱型モニター)の校正を行

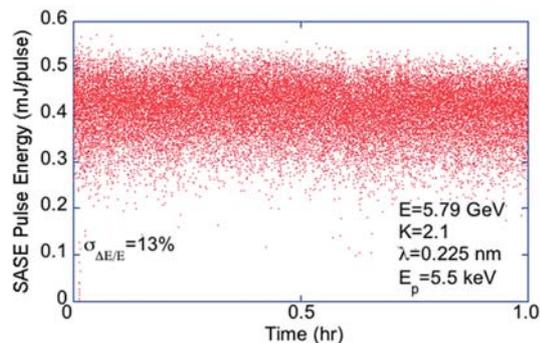


図2 ショット毎に測定されたSACLA BL3のXFELパルスエネルギー。

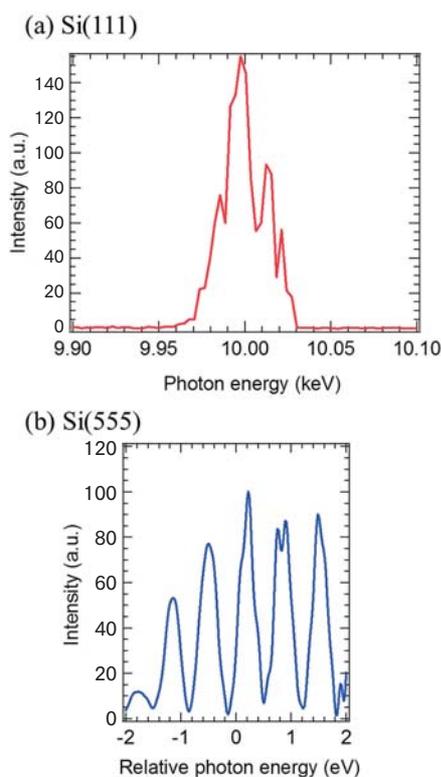


図3 光子エネルギー10 keVにおけるXFELのスペクトル。(a) Si(111)反射を利用して測定されたスペクトル。(b) Si(555)反射。

うことで、常に絶対強度データが得られるようになっていく。薄膜散乱型モニターによる測定例として、パルス毎のエネルギーを図2に示す。

#### ・高分解能スペクトル計測<sup>[7]</sup>

楕円ミラーとシリコン結晶分光器を組み合わせた高分解能スペクトロメーターを開発し、ショット毎のスペクトル計測を行った。図3(a)に10 keVにおけるスペクトルを示す。Si(111)反射を用いてXFELのバンド幅全体にわたって記録されたスペクトルである。図3(b)は、Si(555)の反射面を用いて分解能を高めた場合のデータである。XFELのバンド幅の一部(約4 eV)が切り出されており、SASE型XFELに特徴的なスパイク構

造が観測されている。各スパイクの幅からXFELのパルス時間幅を評価することができ、図3 (b) の場合の時間幅は8.9 フェムト秒 (半値全幅) と見積もられた。

・ タイミングジッター計測

XFELによって誘起される固体の過渡的な可視光透過率の変化を利用し、XFELと同期光学レーザーの到達時間ジッターを計測した。様々な条件におけるデータを集積し、ジッターの評価を進めている。なお、計測システムは、XFELと同期光学レーザーの相対的な到達時刻モニターとして整備が進められている。

・ 波面計測

スイスのPSI (Paul Scherrer Institute) と共同研究により、グレーティング干渉計を利用してXFELの波面評価を行った。

・ XFEL用光学素子の損傷に関する研究<sup>[8]</sup>

XFEL用光学素子の開発のため、光学素子評価用の装置が整備された。シリコンやSiO<sub>2</sub>といった光学素子材料の損傷閾値の測定や、損傷メカニズムに関する研究が実施された。また、多層膜光学素子の反射率測定なども進められている。

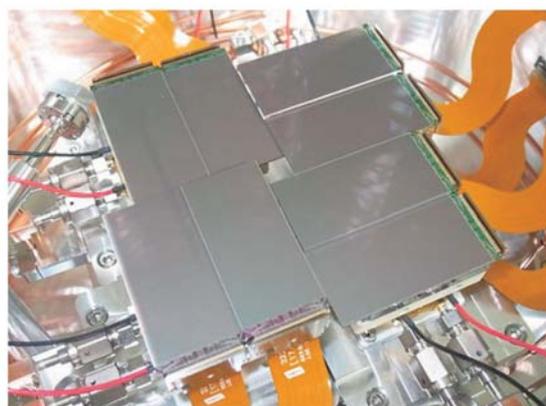


図4 8枚センサーアレイの例。

の光強度が非常に強いため、放射光利用実験と異なり、単一パルス照射で試料が破壊されるケースが多い。この場合、パルス毎に試料交換が必要となる。加えて、レーザーの発振原理上X線ビーム特性 (強度・スペクトル) がパルス毎に変動する。したがって、光源の特徴を最大限に引き出し、正確に実験データを解釈するにはパルス毎のX線信号の検出・データの取得が必要となる。

これらの条件を踏まえ、検出器への要求仕様として以下の3つをおいた。1) フェムト秒スケールのX線パルス内に飛来する数多くの光子を、パルス毎に広いダイナミックレンジで検出できること、2) SACLAの繰り返しレート最大値 (60 Hz) に対応するフレームレートでデータの取得すること、3) 2次元広角信号を検出すること。これらを全て同時に満たすXFEL利用実験に適した検出器は市販では存在しないので、SACLA独自で開発を行っている。SACLAでは、それぞれの要求仕様を満たすために、1) 耐放射線構造・積分型センサー (CCD)、2) Multi-port 読み出し・二相CCD、3) センサーモジュールのタイリング機構によるセンサーアレイ (図4) という手法をとった。

現行のMPCCD検出器の達成性能はピーク信号が

XFEL利用研究推進室

先端光源利用研究グループ

登野 健介

ビームライン研究開発グループ

ビームライン開発チーム

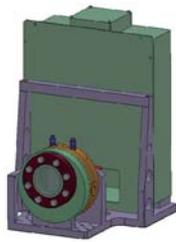
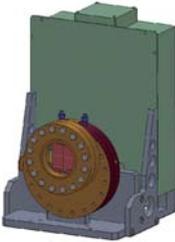
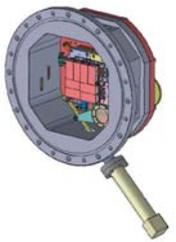
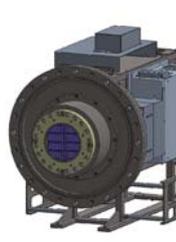
犬伏 雄一

### 3-2-4 検出器

SACLAの基幹検出器としてX線2次元検出器: Multi-port CCD検出器 (以下、MPCCD検出器) を開発し、2012A期より供用を開始している。

SACLAにおけるXFEL利用実験はX線のパルス当たり

表2 SACLA利用実験にて供用中の検出器一覧。

検出器 タイプ				
	MPCCD single	MPCCD dual	MPCCD octal	MPCCD SWD octal
Image Format	512 × 1024 25.6 × 51.2 mm <sup>2</sup>	1024 × 1024 54.6 × 52.1 mm <sup>2</sup>	2048 × 2048 ~ 110 × 110 mm <sup>2</sup>	2048 × 2048 pixels ~ 110 × 110 mm <sup>2</sup>
使用環境	大気中	大気中	真空中	大気および真空
2012年度 供用数	2	1	1	1

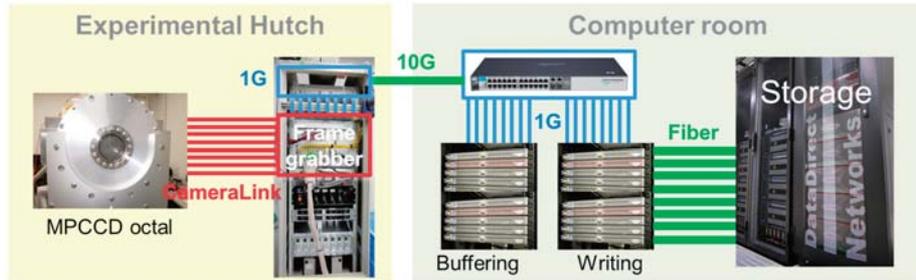


図5 MPCCD octal検出器のDAQシステム配線図。

2100 photons/pixel@6 keV、システムノイズ0.18 photon/pixel@6 keVでX線に対する1光子検出が可能であり、高いダイナミックレンジを持つ。フレームレートは30 Hzを達成している。多様な実験に対応すべく4種のカメラヘッドを整備しており(表2)、センサーアレイの異なるMPCCD検出器: single・dual・octalの3種が2012A期スタート時から供用中である。加えて、2013年3月にサンプルとセンサー面の距離を短くすることでより広角信号をカバーするMPCCD short working distance octal検出器の開発を完了し、2013A期より供用を行う予定である。

### 3-2-5 実験データ収集(DAQ)システム

1枚のMPCCDセンサーの画像データ(~0.5 Mpixel\*2 byte)は「①センサーモジュール→②読み出しボード→③フレームグラバボード→④バッファ用計算機→⑤書き込み用計算機→⑥キャッシュストレージ」の順に流れる。①にてX線強度を電荷量に変換、②にて電荷量をデジタル信号に変換、③にてデジタル信号を計算機用のデータに変換、④にてデータをバッファ、⑤が④のデータを⑥に書き込む。これらのルートの中で~60 Mbyte/sec (~0.5 Mpixel \* 2 byte \* 60 Hz)以上の帯域を確保し、60 Hzの画像データ取得を実現する。検出器システムを①~⑥の1モジュール単位から成るシステムで構成しており、図5のようにセンサー数の異なるカメラヘッドでもネットワークスイッチと10G Ethernetを使用し、同システムでデータ取得が可能である。カメラヘッドのセンサーアレイ画像は「タグ」と呼ばれる電子ビームショットIDを元に、同期された画像データをソフトウェアで一つの画像として再構築する。光強度測定用のフォトダイオードなどのデータ量が小さな各種モニター値(0次元データ)については、リレーショナルデータベースMySQLを利用した同期収集データベース(DB)へ常時保存している。

保存されたデータは、ファイル内に階層構造を持つHDF5形式にて提供しており

(SACLA run data format)、キャッシュストレージおよびDBからデータ解析システム(後述)にダウンロードしてデータ処理することが可能である。SACLA run data formatは、ショットID、光源・実験・検出器情報を含み、高速なファイル読み出し・データ相関・高効率な大容量データハンドリングが可能である。一方、10センサー(octal + dual)を用いた場合、キャッシュストレージからデータ解析システムへの転送速度が現状で2 Hz弱であり、実験データ収集よりrun data (HDF5) ファイル取得が遅いという問題がある。データ転送速度の向上は今後の課題である。

MPCCD octal検出器を用いるコヒーレント回折イメージング(CDI)や微小結晶構造解析(SFX)では、XFEL光の試料へのヒット率が高々50%程度である。実験条件を効率よく最適化するためには、実験中にオンラインでヒット率を判定できることが望ましい。2012年度は、CDI向けに、指定する領域(ROI)の回折強度の平均値を利用して、ヒットデータを高速にスクリーニングするLow-level Filtering手法を開発し、データ収集システムに組み込んだ。画像データをキャッシュストレージに保存するのと並行して、ROIでの回折強度の平均値をバッファ用計算機で計算し同期収集DBに保存する。Low-level Filtering GUI(図6)

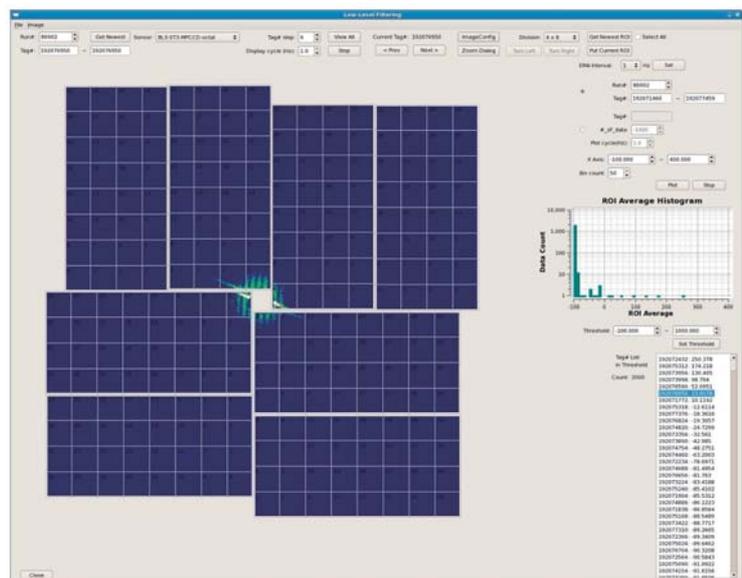


図6 ヒットデータを選別するためのLow-level Filtering GUIとその検出例。

を利用し、DBに登録されたROI平均値データを解析することで、ヒット率をオンラインで判別することが可能である。ヒットデータのみをデータ解析システムにダウンロードすることが可能であり、Low-level filtering機能を利用することで高速に実験データを取得・処理することができる。

### 3-2-6 データ解析システム

SACLAでは、データの1次解析用として約13 Tflopsの計算能力をもつデータ解析システムをユーザーに提供している。このシステムは、計算ノード（12コア×80ノード=960コア）、大容量メモリ（1 TB）計算機、データ転送用ノード、ログイン用計算ノードなどからなる。これら全てのノードが約8 GByte/secで読み書きできる170 TBの容量をもつ共有ファイルシステム（Lustre ファイルシステム）に接続しており、大容量のデータを高速アクセスしてデータ解析を行うことに最適化された構成となっている。

開発環境としては、Intel C/Fortranなどのプログラミング言語とIntel MKLなどの数値計算ライブラリが利用可能である。また、数値計算、可視化、プログラミングのための高水準言語による対話型の環境であるMATLAB（4ライセンス）もユーザーに提供している。

ジョブ実行環境としては、Torque/Mauiシステムを採用しており、ユーザーはこれを利用することでデータ処理の負荷分散が容易に実現できる。TorqueではX環境に対応したインタラクティブジョブを利用することが可能であり、ソフトウェア開発時などに実行結果を確認しながら計算する必要がある場合や、大量メモリを利用するデータ可視化などに有用である。

XFEL利用研究推進室  
先端計測・解析技術グループ  
城地 保昌、亀島 敬

### 3-2-7 利用実験の概要と成果

2012A期（2012年3月～7月）には25件の課題が実施された。分野・手法別の内訳は、X線回折イメージング: 12件、タンパク質結晶構造解析: 1件、超高速物質材料科学: 4件、高エネルギー密度科学: 3件、X線非線形光学・原子分子光学（AMO）: 5件、であった。2012B期（2012年9月～2013年3月）は27課題が採択され、X線回折イメージング: 7件、タンパク質結晶構造解析: 2件、超高速物質材料科学: 8件、高エネルギー密度科学: 4件、X線非線形光学・AMO: 6件、であった。産業界からは2件が採択されている。また、約4分の1が海外からの提案である。幾つかの成果例を下記に示す。

#### ・ポンプ&プローブ実験

レーザーブースに設置されているXFELと同期したチタンサファイアレーザーをポンプ光、XFELをプローブ光

とした各種のポンプ&プローブ実験が実施された。ポンプ光の波長はCPA、OPA、高次高調波の各波長を要望に応じて供給した。X線回折、X線散乱、X線吸収分光等と多岐にわたる計測手法を用いて、ピコ～フェムト秒の時間スケールの物質の構造変化や電子状態の変化を観測した。

#### ・原子分子光学

1マイクロサイズに集光されたXFELをキセノン等の希ガスに照射し、光電子、イオンの計測を行った。その結果、X線による多光子逐次電離が生じ、25価以上もの多価イオンが生成されることが明らかとなった<sup>[9]</sup>。

#### ・X線非線形光学

XFELを1マイクロサイズまで集光しクリプトンガスに照射することで、K殻電子が2個とも電離された状態（ダブルコアホール）の生成に成功した<sup>[10]</sup>。

XFEL利用研究推進室  
先端光源利用研究グループ  
登野 健介  
ビームライン研究開発グループ  
ビームライン開発チーム  
犬伏 雄一

#### 参考文献

- [1] K. Tono et al.: *New J. Phys.* **15**, (2013) 083035.
- [2] H. Ohashi et al.: *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* **710**, (2013) 139.
- [3] T. Sato et al.: *J. Phys. Conference Series* **425**, (2013) 092009.
- [4] H. Yumoto et al.: *Nature Photonics* **7**, (2013) 43.
- [5] T. Katayama et al.: *Appl. Phys. Lett.*, (2013) in press.
- [6] M. Kato et al.: *Appl. Phys. Lett.* **101**, (2012) 023503.
- [7] Y. Inubushi et al.: *Phys. Rev. Lett.* **109**, (2012) 144801.
- [8] T. Koyama et al.: *Opt. Exp.* **21**, (2013) 15382.
- [9] H. Fukuzawa et al.: *Phys. Rev. Lett.* **110**, (2013) 173005.
- [10] K. Tamasaku et al.: *Phys. Rev. Lett.* **111**, (2013) 043001.

### 3-2-8 SCSS 試験加速器

SCSS 試験加速器（SCSS）は、我が国独自のコンパクトなXFELシステムの総合性能を検証するために、2005年に建設された。2006年に初のレーザー増幅を観測し、2007年に極紫外（EUV）領域のSASE-FEL出力飽和を達成した<sup>[1]</sup>。さらに、XFEL利用のR&Dとして、2007年10月からEUV-FEL光の試験的利用を開始し、2008年5月から公募による利用運転を行った。2012年度は、利用運転とともに、シード型FEL実現に向けた研究開発、及びFEL高度化に向けた加速器研究開発が行われた。

このようにSCSSは、当初の想定をはるかに上回る成果を生み出すことができた。SACLAの供用運転も順調に立ち上がっており、SCSSは、2012年度末をもって利用運転を一旦終了した。

XFEL研究開発部門  
 ビームライン研究開発グループ  
 矢橋 牧名

### SCSS試験加速器の利用

2012年度は3回の公募が実施され、総計14研究課題が実施された。利用分野は、原子分子光学<sup>[2]</sup>、非線形光学、固体科学、回折イメージングとなっている。2012年度以降に出版された論文を以下に示す。

固体材料科学（研究代表者：大阪大学教授 猿倉信彦）

- K. Yamanoi et al. "Time-Resolved Pump and Probe Experiment for Wide-Gap Semiconductors Using Free Electron Laser and Synchronously- Operated Femtosecond Laser" *Japan. J. App. Phys.* **52**, (2013) 040203.
- Y. Shinzato et al.: "Vacuum Ultraviolet Fluorescence Spectroscopy of Nd<sup>3+</sup>:LaF<sub>3</sub> Using Femtosecond Extreme Ultraviolet Free Electron Laser", *Appl. Phys. Exp.* **6**, (2013) 022401.
- K. Yamanoi et al.: "Optical properties of hydrothermal-method-grown ZnO crystal as EUV laser diagnostics material", *J. Crystal Growth*, **362**, (2013) 264.

原子分子分光（研究代表者：東北大学教授 上田 潔）

- A. Sugishima et al.: "Charge and energy transfer in argon-core-neon-shell clusters irradiated by free-electron-laser pulses at 62 nm", *Phys. Rev. A*, **86**, (2012) 033203.

原子分子分光（研究代表者：名古屋大学教授 菱川明栄）

- Y. Hikosaka et al. "Resonances in three-photon double ionization of Ar in intense extreme-ultraviolet free-electron laser fields studied by shot-by-shot photoelectron spectroscopy", *Phys. Rev. A*, **88**, (2013) 023421.

### EO タイミング制御によるシード型FELの高度化

多くのXFEL施設ではレーザー発振を行うために自己増幅自発放射（SASE）方式が用いられているが、得られるレーザー光の時間・周波数スペクトルはスパイク形状を有し、さらにショットごとに揺らぐという性質をもっている。時間コヒーレンスの高いパルス光を生成するために、外部より時間的・空間的に高いコヒーレンスを有するシード光を入れて増幅を行うシード型FELが提案されている。我々は、SCSSにおいて、フェムト秒高出力チタンサファイアレーザーの高次高調波をシード光として用い、極端紫外領域である波長61 nm、及び53 nmのシード型FEL発生に初めて成功した<sup>[3]</sup>。

外部からのコヒーレント光をシード光として用いる場合、電子バンチとシード光パルスのタイミングジッターやタイミングドリフトにより、シードFELの出力ゆらぎが大きくなり、発生頻度も減少する。そこで、SCSS試験加速器の診断セクションに電気光学（Electro-Optic, EO）効果を利用したタイミングモニターを導入し、シード光の遅延装置にフィードバック制御を行うことで出力の改善を行った。図1に実験装置図を示す。EOタイミングモニターは、EO結晶（ZnTe）を利用して、チャープしたレーザーパルスに電子バンチの痕跡を偏光変調として刻印するものであり、楕円偏光化した偏光成分を偏光スプリッターでスペクトル強度変調として計測することで、電子バンチのタイミング情報が得られる（スペクトラルデコーディング）。図2にEOサンプリングによるタイミング信号を示す。このタイミング情報をもとに、高次高調波をドライブするレーザーシステムのタイミング信号又は遅延ステージにフィードバック制御を行う。

以上の結果、タイミング制御を行わない状態では、シードFELの発生頻度が0.4%程度であったものが、タイミン

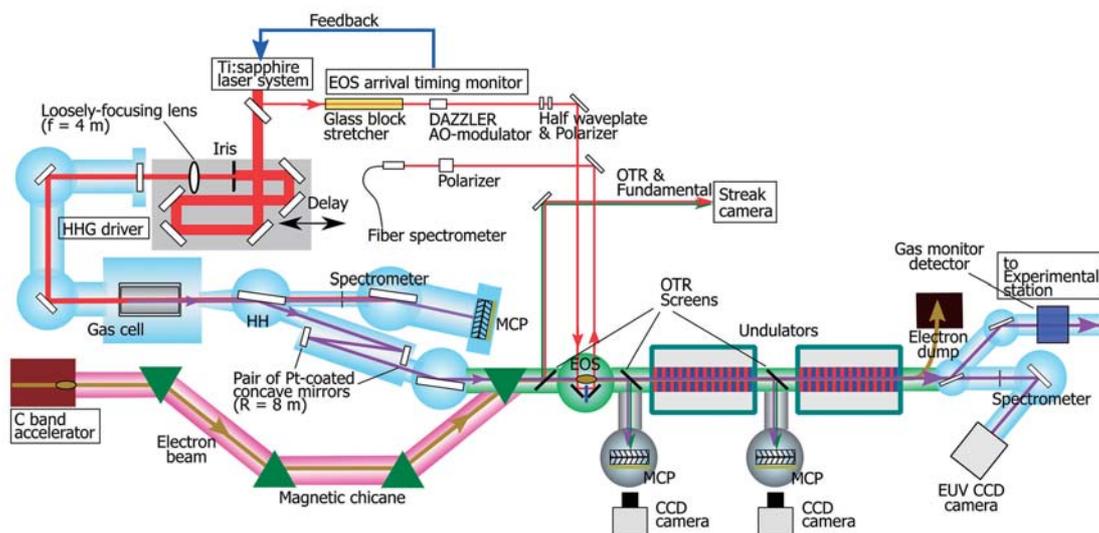


図1 HHGシード型FELにおけるEOタイミング制御の実験セットアップ。

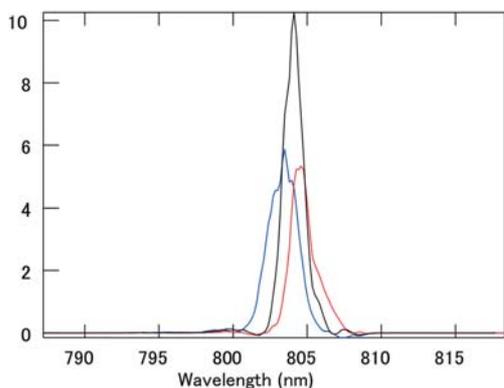


図2 EOサンプリングによるタイミングシグナル。

電子バンチとレーザーパルスが重なると黒ラインのように強い信号が得られる。赤ライン、青ラインは、それぞれ電子バンチに比べ、レーザーパルスが早い、遅いタイミングを示す。

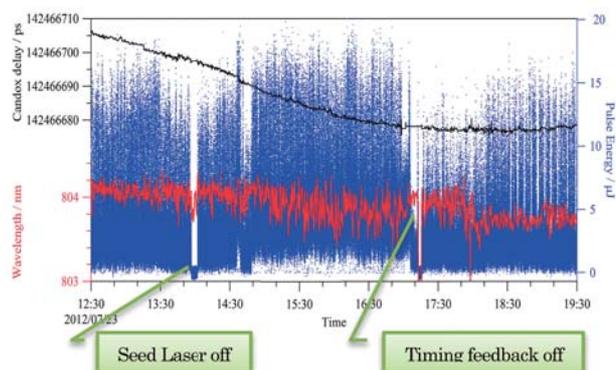


図3 シードFELにおける出力(青)、Delay設定値(黒)、波長(赤)のトレンドグラフ。

グ制御を行うことで約25%に向上し、最大出力20  $\mu\text{J}$ が得られた。図3にガスモニターで測定したFEL出力のトレンドグラフを示す。シード光を遮ると出力がほぼゼロになり、タイミング制御を止めることで、数 $\mu\text{J}$ まで減少することがわかる。また、タイミング制御を継続することで、約25%の発生頻度を半日以上維持できることを示しており、光源として、ユーザー実験に十分利用できる出力を達成できたといえる。

#### 参考文献

- [ 1 ] T. Shintake et al.: “A compact free-electron laser for generating coherent radiation in the extreme ultraviolet region” *Nature Photonics* **2**, (2008) 555.
- [ 2 ] M. Yabashi et al.: “Compact XFEL and AMO sciences: SACLA and SCSS” *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46** (2013) 164001.
- [ 3 ] T. Togashi et al. “Extreme ultraviolet free electron laser seeded with high-order harmonic of Ti:sapphire laser” *Opt. Express* **19**, (2011) 317.

XFEL利用研究推進室  
先端光源利用研究グループ  
富樫 格