

1-2. ビームライン・実験ステーション・産業利用

2017年度より3本のビームラインの同時利用が本格的に始まり、供用開始から6年目にしてSACLAの利用は新しいフェーズに入った。2016年度に開始された軟X線FELビームライン（BL1）の共用に続き、2本の硬X線FELビームライン（BL2、BL3）の同時利用が2017B期から開始された。これにより、2016年度に約4000時間であった共用ビームタイムの総計が、約5500時間へと大幅に増加した。また、ビームタイムの有効利用につなげるため、フィージビリティチェックのためのビームタイム（FCBT）が2017B期より導入された。このFCBTでは、ビームタイムの1ヶ月前を目処に、最長で6時間、実際にXFELを利用して試行的な実験を行う。これにより、試料の出来具合や信号強度などの情報をあらかじめ入手でき、ビームタイムに備えることができる。

利用運転スキームの大きな変化に加えて、ビームラインと実験ステーションの高度化も継続的に進められている。2017年度には、サブペタワット級の高出力レーザーを利用した実験システムの調整運転がBL2において行われ、2018年度からの共用の準備が整えられた。BL3には、新しいナノメートル集光光学系が導入され、100ナノメートル程度の集光ビームがより安定に供給されるようになっている。また、BL3の光源部においてセルフシーディング用の反射型光学系が新しく導入され、調整実験において良好な結果が得られた。

BL1についても、光源の安定化やビームライン透過率向上などの改良が施され、光子エネルギー100 eVにおいてパルスエネルギー100マイクロジュール程度のFELを安定的に供給できるようになった。SACLAに先立って共用を始めたSCSS試験加速器における経験も活かされ、ユーザーによる利用実験は早い段階から本格化している。既に、初期のユーザーによる成果が論文として発表されはじめている。

ハードウェアを中心とした開発・高度化に加えて、実験用ソフトウェアの高度化も行われた。特に、基本的な実験操作のためのプログラミングインターフェースとして、実験制御API（Application Programming Interface）が整備された。このAPIを活用することにより、より迅速で高度な測定および解析が可能となっている。さらに、複数ビームラインの同時利用が本格化するなかで、利用支援の効率化にもつながっている。

上記のような施設の高度化を利用成果につなげるため、施設者としてXFEL利用の裾野拡大の取組みを進めている。主要な取組みのひとつが、産業利用の推進である。2014年度から開始されたSACLA産学連携プログラムは、2016年度よりSACLA産業利用推進プログラムとなり、2017年度も継続して実施されている。2017年度には6件の課題が採択され、材料の特性変化や劣化の過程など、不可逆的な変化を短時間露光の測定によって追跡する試験などが行われた。

もうひとつの主要な取組みが、若い人材の育成を目的としたSACLA大学院生研究支援プログラムである。2017年度には3人の研究生が実習を行い、軟X線のナノメートル集光システムの開発や量子電磁気学理論の検証といった特色のある研究を行った。

以下の部分では、ビームライン・実験ステーションの高度化の具体例として、反射型セルフシーディング用光学系、ナノビーム利用実験システム、高出力レーザー利用実験システム、実験制御APIの概要を述べるとともに、代表的な利用成果を紹介する。

・反射型セルフシーディング用光学系

現状のSACLAはSASE方式のXFELであるため^[1]、そのスペクトルは50 eV程度のバンド幅の中に数十の細かいスパイク構造を有している。そのため、モノクロメーターを利用して半値全幅（FWHM）1 eV程度の単色ビームを利用する場合には強度が著しく低下する。大強度かつ線幅の狭いXFELを発振するために、セルフシード方式の開発が行われてきた。当初SACLAでは、薄いダイヤモンド結晶を用いた透過型セルフシード^[2]のシステムがBL3に導入され、発振試験が行われてきた。このシステムでシーディングには成功したものの、出力の安定性が不十分であったため、ユーザー実験への提供までには至らなかった。新しい方式として、2017年度より、反射型セルフシードの開発に着手した。反射型セルフシードでは、アンジュレータ列の前半で発振したSASE-XFELをシリコン結晶のBragg反射を利用して単色化し、シード光として後半のアンジュレータで増幅する。ただし、結晶による単色化の過程で延長されるXFELの光路長を最小限にとどめる必要がある。そこで、ギャップ約90マイクロメートルのマイクロチャンネルカット結晶を利用した光学系をアンジュレータ区間

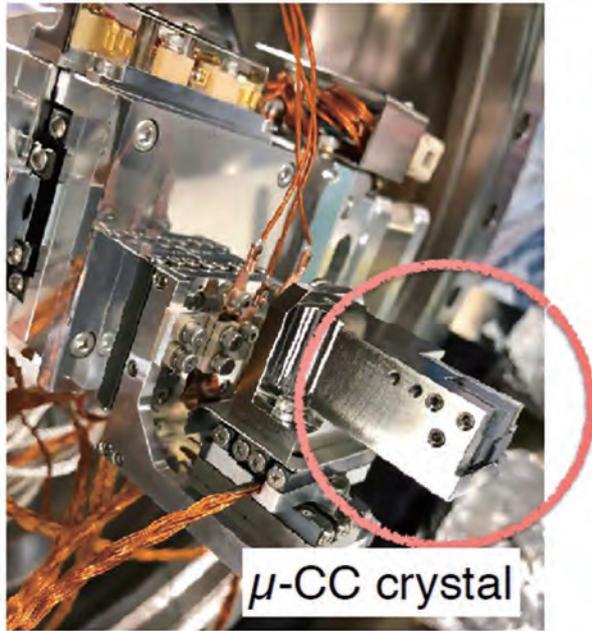


図1 BL3のアンジュレータ区間に導入されたシリコンのマイクロチャンネルカット結晶。10 keV以上の光子エネルギーにおいて、セルフシーディングにおけるXFELの遅延時間を150 fs以内に抑えることができる。

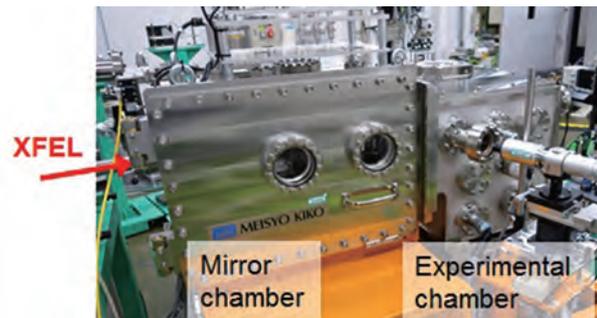


図2 新しい100ナノ集光ビーム利用実験システム。

に導入し（図1）、2018年初めより反射型セルフシーディングの試験実験を開始した。2018年度には、このシステムを利用してシード型XFELの提供を目指す。

・新100ナノ集光ビーム利用実験システム

SACLAのBL3では、2段集光システムによる50ナノ集光ビームを実現し^[3]、X線2光子吸収^[4]やXFEL励起X線レーザー^[5]など、非線形X線光学分野を中心に多くの研究成果が生み出されてきた。しかし、この2段集光システムはSACLAの供用開始以前に設計されたものであり、最近のSACLAのパラメータとのマッチングが十分ではなかった。また、KBミラー光学系を2セット組み合わせたシステムのため、多大な調整時間を要するとともに、安定性も十分ではなかった。これらの課題を解決するため、現状のSACLAのパラメータに最適化させた1段集光光学系と、付随する利用実験チャンバーの開発を行った（図2）。新しいKBミラー光学系は長さ

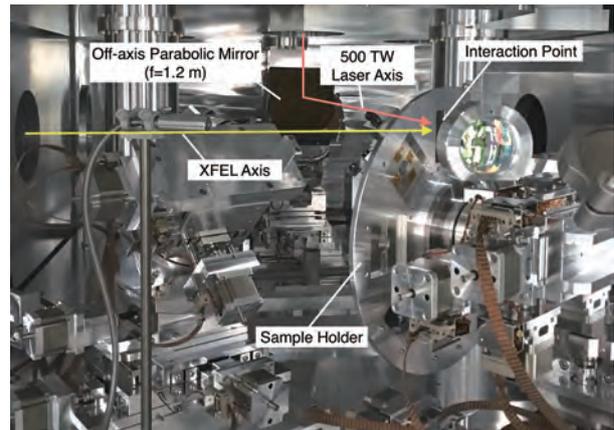


図3 500 TWレーザー利用実験基盤の実験チャンバー内部概観。

250 mmの2枚の楕円ミラーから成り、上流側の縦方向集光ミラー、下流側の横方向集光ミラーの反射角はそれぞれ4.0 mrad、3.8 mradである。ミラーの開口は縦1000 μm 、横950 μm であり、以前の2段集光光学系と較べてビームの透過率が増大した。日常的な調整においても縦200 nm、横100 nm程度の集光サイズに到達することが可能となり、集光強度として 10^{20} W/cm^2 を達成した。実験チャンバーには、自動ステージによって固体サンプルをスキャンできる機構が備えられている。以前の2段集光光学系を利用した実験は基本的にすべて実施可能であり、更に、液体ジェットサンプルや発光分光計測などのニーズにも応えられる拡張性を有している。これらの実験システムはSACLAの2017B期より共用に供された。

・高出力レーザー利用実験システム

XFEL-Spring-8相互利用実験施設においては、2018年度から予定されている共用化へ向けて500 TWレーザーを利用した実験基盤システムの立ち上げを進めた（図3）。新たに導入されたシンクロロックシステムを利用し、SACLA加速器の5.7 GHz RF信号を参照して500 TWレーザーの発振器を時間同期させた。この同期システムを利用し、500 TWレーザーとXFELの試料位置での到達時間ジッターを測定したところ、30 fs程度（rms）であることが確認された。一方、500 TWレーザー単体では、高出力運転試験として、パルス圧縮後のエネルギーを定格の12 J超級に維持しつつ、1 Hzでの継続運転（30分間）を行い、安定して運転が行えることを確認した。また、高強度での試料照射試験として、1 J級のエネルギーを持ったレーザーパルスを40 μm （FWHM）程度のスポットに集光し、試料へ照射した。この時、レーザーパルスは、焦点距離1.2 mの軸外し放物面鏡を用いて固体平板試料上に集光した。推定されるレーザー集光強度は 10^{18} W/cm^2 を超え、試料へのレーザー照射に伴

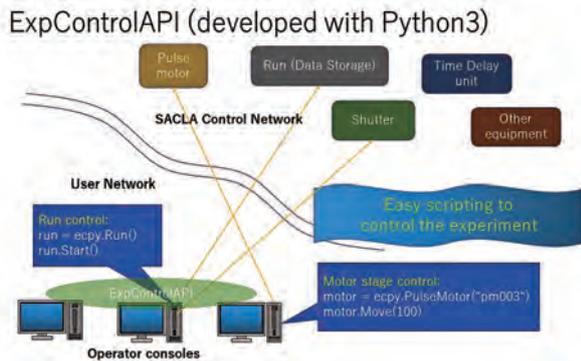


図4 実験制御API (ExpControlAPI) の概略図。

う高エネルギー (MeV オーダー) の電子発生、試料材料の特性X線の発生などが、整備済みの診断装置により確認された。このように順調に整備が進み、2018A期より共用を開始する。

・実験制御API

これまでSACLAでは、モーター制御や検出器制御といった実験操作を行うためのGUI (Graphical User Interface) アプリケーションをユーザーに提供してきた。これらのGUIアプリケーションは、既に測定手法が確立した実験においては有効に活用されている。しかし、機能が固定されているため、日々高度化するSACLAの利用実験への迅速な対応には不向きであった。そこで、これらをAPIレベルで分解・整理し、その機能をユーザーが呼び出すことを可能にするPythonライブラリを2016年度より開発し (図4)、2017年9月末に実験制御API (ExpControlAPI) として試用版をリリースした。その後、4カ月の試用期間を経て、2018年1月末に正式版 (ver1.0.0) のユーザー提供を開始した。ExpControlAPIは、リリース当初から様々なユーザー実験や施設スタッフによるビームライン調整作業の利便性を向上させるために活用されてきた。さらに、ExpControlAPIを利用して既存のGUIを再構築し、ニーズに合わせて容易に高度化できる拡張性の高いGUIの整備を進めた。

・代表的な利用成果

2017年度においても、フェムト秒露光による構造解析実験、高いピーク強度を利用したX線量子光学実験など、XFELの特徴を活かした成果が多く生まれた。ここでは代表的な3例を簡単に紹介する。

理研の當舎専任研究員、久保専任研究員、城主任研究員 (研究当時) らのグループは、化学反応が進行中の酵素に対して連続フェムト秒結晶構造解析を行った。光照

射によって一酸化窒素 (NO) を放出するケージド化合物を一酸化窒素還元酵素の結晶に浸み込ませ、光学レーザーとXFELを組み合わせたポンププローブ計測を適用した。これにより、酵素とNOの反応開始から0.02秒後の構造を決定し、酵素がNOを取り込む様子を捉えることに成功した^[6]。

ストックホルム大学のKim研究員とNilsson教授らのグループは、XFELのフェムト秒パルスを利用して過冷却状態にある水滴のX線散乱実験を行った。様々な温度での計測データや、水素を重水素に置換した重水 (D₂O) に対する計測結果を解析し、水に「液-液相転移」が存在し、その相転移において原子核の量子効果が重要な働きをすることを示した^[7]。

ESRFのChumakov博士と理研のBaron主任研究員らのグループは、SACLAの強力なX線パルスによって共鳴励起された多数の鉄原子核 (⁵⁷Fe) からのX線放射を1光子単位で精密に計測した。その結果、原子核超放射現象の観測に成功し、今から60年以上前に提唱された超放射理論を検証することができた^[8]。

上記の他にも多くの興味深い成果が発表されており、SACLAのホームページで論文等のリストが公開されている^[9]。

参考文献

- [1] E. L. Saldin et al., *Nucl. Instrum. Meth.* **475**, 357-362. (2001).
- [2] J. Amann et al., *Nature Photon.* **6**, 693-698, (2012).
- [3] H. Mimura et al., *Nature Commun.* **5**, 3539 (2014).
- [4] K. Tamasaku et al., *Nature Photon.* **8**, 313-316 (2014).
- [5] H. Yoneda et al., *Nature* **524**, 446-449 (2015).
- [6] T. Tosha et al., *Nat. Commun* **8**, 1585 (2017).
- [7] K. H. Kim et al., *Science* **358**, 1589-1593 (2017).
- [8] A. I. Chumakov et al., *Nature Phys.* **14**, 261-264 (2018)
- [9] <http://xfel.riken.jp/research/index.html>

JASRI XFEL利用研究推進室

登野 健介、城地 保昌、犬伏雄一

理研 放射光科学研究センター

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、籾内 俊毅