

# 博士論文

## X線自由電子レーザーの光源性能評価法および フェムト秒ポンプ・プローブ法の開発

(Developments of photon-beam diagnostic methods for  
X-ray free-electron lasers and  
a femtosecond X-ray-X-ray pump-probe scheme)

東京大学大学院新領域創成科学研究科

井上 伊知郎



# 目次

第 1 章	序文	1
第 2 章	光のコヒーレンス理論	5
2.1	X 線コヒーレンスを扱う際の仮定	5
2.2	複素コヒーレンス度	6
2.3	時間コヒーレンスと空間コヒーレンス	7
第 3 章	X 線自由電子レーザーの発振原理と装置構成	12
3.1	自由電子レーザーの歴史	12
3.2	SASE 方式の自由電子レーザーの発振原理	13
3.3	SACLA の装置構成	23
第 4 章	拡張型ヤングの実験による XFEL の空間コヒーレンス測定	29
4.1	背景	29
4.2	原理	31
4.3	実験	35
4.4	結果と考察	38
4.5	結論と今後の展望	46
第 5 章	X 線強度干渉法による電子バンチの時間構造評価	50
5.1	背景	50
5.2	原理	53
5.3	実験	58
5.4	結果と考察	61
5.5	結論と今後の展望	71
第 6 章	X 線ポンプ・X 線プローブ法によるフェムト秒 X 線ダメージ過程の観測	73
6.1	背景	73

6.2	X線ポンプ・X線プローブ法の構成要素 . . . . .	76
6.3	実験 . . . . .	79
6.4	結果と考察 . . . . .	83
6.5	結論と今後の展望 . . . . .	95
<b>第7章</b>	<b>結論</b>	<b>97</b>
	謝辞	<b>101</b>
	参考文献	<b>103</b>

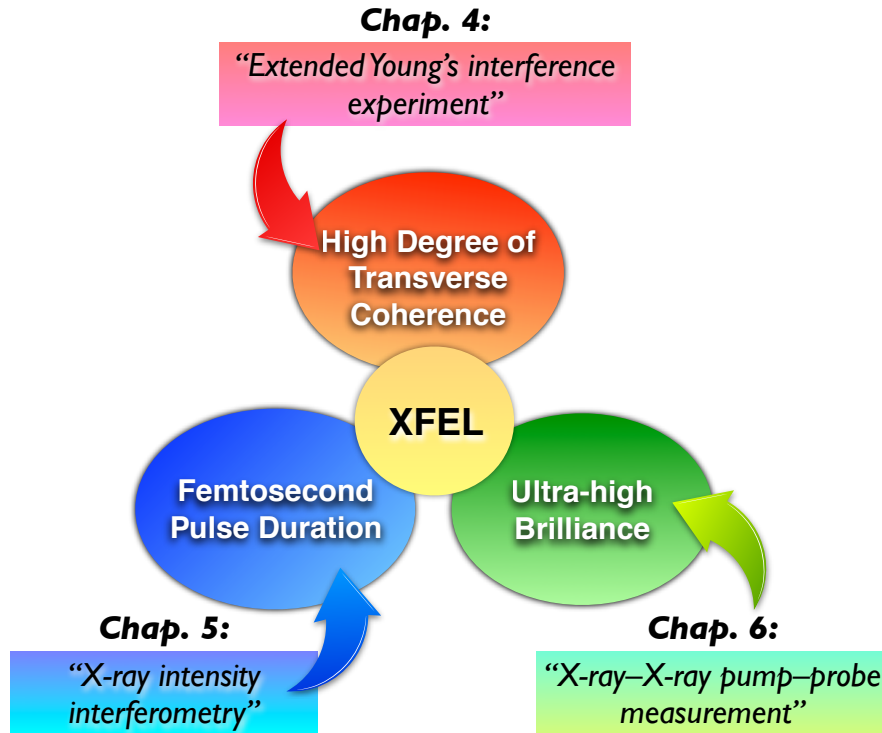


## 第1章 序文

“百聞は一見に如かず”や“seeing is believing”という言葉が表すとおり、物事を自分の目で見るとは我々人間にとって多くの情報を与えてくれる。見るという行為は日々の生活に関わる根本的な活動であることだけに留まらず、見ることによって得られる視覚的な情報は人間の本能的な感性に訴えかける。優れた絵画や明媚な風景を見て感動することは、その例であろう。

科学においても、調べたい対象を見るという行為は研究の重要な第一歩であり、得られた結果は科学者たちの好奇心や想像力を誘起させる。ただし、ここでの「見る」とは直接目で見ることだけに限らない。道具を使って対象からの情報を得ることも、見るという行為に含まれるであろう。例えば、望遠鏡によって遠くの星を画像として記録することや顕微鏡によって細胞の形を観察すること、あるいは物質に光を当ててその吸収スペクトルから物質の構造を調べることなどは、すべて「見る」に相当すると言える。望遠鏡の登場が天体の詳細な観測を可能にして地動説の証明に繋がったという例から分かるように、今日の科学において、新しい実験装置や実験技術といった道具は科学の最前線を広げるための新しい目となり、我々の世界観を一変させる可能性を秘めている。

本論文は、X線レーザーという人類が手に入れた新しい道具に関する計測技術開発についての研究をまとめたものである。19世紀末に W. C. Röntgen によって発見された X 線 [1] は、絶え間ない X 線光源技術の進化を伴いながら原子配列や電子のエネルギー構造を捉える優れたプローブとして物質科学や生命科学の発展に大きく貢献してきた。近年、米国および日本において完成した X 線自由電子レーザー (X-ray free electron laser; XFEL) [2-4] は、120年の X 線の歴史の中で初めて実現したレーザー光源である。この XFEL では、光速近くまで加速した電子バンチをアンジュレータと呼ばれる磁石列に通して、電子から出る X 線と周りの電子との相互作用によって波長間隔に電子を並ばせることによってレーザー発振を実現させている（自己増幅自発放射方式, Self-Amplified Spontaneous Emission (SASE) scheme)。XFEL はこれまでの X 線光源とは一線を画する 3 つの特徴：高い空間コヒーレンス、フェムト秒 (femtosecond;



**Figure 1.1**

Three characteristics of X-ray free-electron lasers and relevant methodologies developed in this study.

fs)の時間幅の極短パルス、既存の放射光源と比較して $10^8$ 倍もの超高輝度、を有する革新的な光源である。X線科学の新しい可能性を拓き、我々の世界観を変えるチェンジメーカーとして、その応用が期待されている。

この最先端の光源から放出されるX線やX線を発生させている電子ビームの特性、さらにXFELと物質との相互作用を精確に理解することはXFELの利用研究や加速器科学を発展させるために重要な研究課題である。本研究ではこれらの研究課題にアプローチするための新しい計測手法を考案・開発・実証することによってXFEL科学を進展させることを目指した。具体的には、**Fig. 1.1**に示すようなXFELの特徴それぞれに関係した3つの新しい計測法を開発し、日本のXFELであるSPring-8 Angstrom Compact free-electron LAsER (SACLA)において実証実験を行なった。

開発した1つ目の計測法は、XFELの第1の特徴である高い空間コヒーレンスを測定するための“拡張型ヤングの実験”である。この方法では、元々のヤングの実験で用

いられているダブルスリットの代わりに大きさの異なる大小2つの球状粒子からの散乱波干渉の様子を測定する。そして、2粒子からの散乱波干渉によって生じる干渉縞のコントラスト (visibility) を解析することによって、複素コヒーレンス度と呼ばれる空間コヒーレンス特性を表すパラメータを求める。この方法を用いて XFEL の複素コヒーレンス度の定量的な評価を初めて実現し、SACLA からの XFEL がビームサイズと同程度の空間コヒーレンス長を持つ、高い空間コヒーレンス特性を持っていることを示した。

開発した2つ目の計測法は、電子バンチの時間構造を評価するための X 線強度干渉法である。XFEL の第2の特徴である、フェムト秒というパルス幅の短さは、XFEL を発振している電子バンチの短さに起因しているため、電子バンチの時間構造を明らかにすることは XFEL の時間構造の制御へと繋がる重要な課題である。X 線強度干渉法では、電子バンチをアンジュレータ1台に通して発生させた X 線パルスを分光し、その X 線強度の空間プロファイルを測定する。そして、異なる位置の X 線強度の相関の程度を測定することによって電子バンチの時間構造の情報を得る。この方法を用いて SACLA における電子バンチの時間構造を決定した結果、電子バンチが半値全幅 10 fs 以下のシャープな電流値ピークを持つことが明らかになった。さらに、得られた電流値ピークから XFEL を発振している電子バンチ部分のエミッタンスの評価を行なった。その結果、電子銃から放出された電子バンチについて、加速および圧縮の過程において規格化エミッタンスの悪化が引き起こされていることが明らかになった。

開発した3つ目の計測法は、フェムト秒 X 線ポンプ・X 線プローブ法である。XFEL の第3の特徴である高強度を使いこなすためには、試料への X 線ダメージの理解が計測のデザインや妥当性を考える上で極めて重要になる。X 線ポンプ・X 線プローブ法は、フェムト秒の時間スケールで起こる XFEL による試料へのダメージ過程を捉える手法であり、高強度 XFEL を利用した計測技術の発展に貢献し得る。この方法では、まず、SACLA から遅延時間をつけた波長の異なるダブルパルスを発振させて、それぞれのパルスを試料にダメージを与える光 (ポンプ光)、および X 線ダメージの時間発展を調べる光 (プローブ光) として用いる。そして、X 線ミラーによってダブルパルスを集光することで高強度の X 線を生成し、その集光点に試料を設置する。ダブルパルスの時間間隔を変えながら、プローブ光によって試料の状態を調べることで X 線ダメージの進行の様子を捉えることが可能になる。この方法のデモンストレーション実験として、ダイヤモンドにおける X 線ダメージ過程を調べた結果、ポンプ光照射後にダイヤモンドを構成している炭素原子の原子変位が時間経過に伴って増加してゆく

様子を捉えることに成功した。この結果は、XFEL が引き起こすダメージ過程の時間発展を捉えた初めての結果である。

本論文は本章を含めて7章から構成される。まず、本章に続く2章では、拡張型ヤングの実験や X 線強度干渉法の基礎となる光のコヒーレンス理論について述べる。3章では、XFEL の発振原理やその光特性、そして SACLA を例として具体的な XFEL の装置構成について述べる。4章では、拡張型ヤングの実験の原理および SACLA から出射された XFEL の空間コヒーレンス特性を評価した結果について述べる。5章では、X 線強度干渉法の原理および SACLA の電子バンチの時間構造を評価した結果について述べる。6章では、フェムト秒 X 線ポンプ・X 線プローブ法の原理およびダイヤモンドを試料として行なった実験結果について述べる。最後に7章で本研究の結論について述べる。

## 第2章 光のコヒーレンス理論

2つの異なる光が空間的に重なったとき、重ね合わせの原理によって、ある時刻における光の電磁場はその瞬間の2つの光の電磁場の和となる。しかし、X線領域の電磁波の1周期に対応する時間はアト秒 (attosecond; as) からzeptosecond (zeptosecond; zs) 程度と非常に短いために、我々が実験によって測定出来るのは時間平均した物理量である。そのためX線を利用した干渉実験の結果の解釈には、異なった位置や時間における電磁場の相関、すなわち光の統計的な性質を表すコヒーレンス特性の理解が必要になる。

本章では、光のコヒーレンスの程度を表す関数である複素コヒーレンス度について述べた後に、この関数の特殊な場合に相当する空間コヒーレンスや時間コヒーレンスといった概念について述べる。

### 2.1 X線コヒーレンスを扱う際の仮定

光のコヒーレンスを扱うには、光を波として扱う古典光学を用いる方法と、より厳密な方法として第2量子化によって光の場を粒子(光子)として扱う量子光学を用いる方法の2つがある。本論文で取り扱う、拡張型ヤングの実験やアンジュレータからの放射光を利用したX線強度干渉法は古典光学の枠組みで説明できるため、以降は光を波動場として古典的に扱うことにする。

また、一般に光のコヒーレンスを議論する際には光の場をベクトル場として扱うが、本論文ではX線をスカラー波として扱う。これは、放射光やXFELの光は、軸外に放射される光や特殊なアンジュレータを利用する場合を除いて、水平方向に偏光しており、場の大きさのみで光の電場を定義出来るためである。

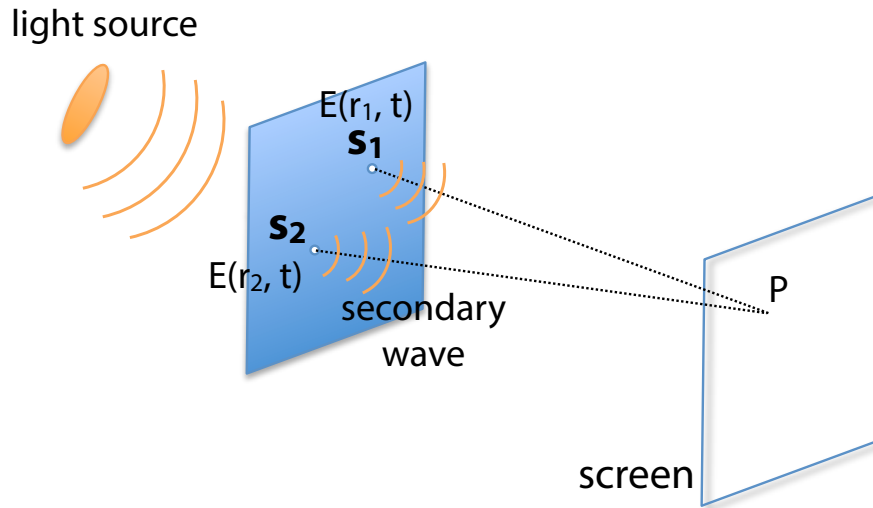


Figure 2.1

Schematic illustration of Young's experiment.

## 2.2 複素コヒーレンス度

位置や時間の異なる2つの光が干渉するためには、2つの光の場の時間的な振動が統計的に類似している必要がある。この類似度の尺度となるパラメータが複素コヒーレンス度である。この節では、ヤングの実験を例として複素コヒーレンス度の定義を導入する。

Fig. 2.1 に示したヤングの実験を考えよう。この図で示したヤングの実験では、光源から出た光が2つの開口を持つスリット  $s_1$  と  $s_2$  に入射する。そして、開口からの2次波の干渉の様子をスリットの後ろに置いたスクリーンによって観測する。時間  $t$  におけるスリット  $s_1$  と  $s_2$  の位置での電場をそれぞれ  $E(\mathbf{r}_1, t)$ ,  $E(\mathbf{r}_2, t)$  とするとスクリーン上の点  $P$  の電場は、2つのスリットから回折した光の電場の重ね合わせとして

$$E_P(t) = K_1 E(\mathbf{r}_1, t - t_1) + K_2 E(\mathbf{r}_2, t - t_2) \quad (2.1)$$

と表される。ここで  $t_1$  および  $t_2$  はスリットから点  $P$  まで光が到達するのに要する時間である。また、 $K_1$ ,  $K_2$  は伝搬関数と呼ばれ、開口の形状と開口と観測点との距離によって決まる定数である [5]。

式 (2.1) から点  $P$  での光の強度の期待値  $I_P$  は、 $I(\mathbf{r}_1, t) = |E(\mathbf{r}_1, t)|^2$ ,  $I(\mathbf{r}_2, t) = |E(\mathbf{r}_2, t)|^2$

を用いて

$$I_P = |K_1|^2 \langle I(\mathbf{r}_1, t - t_1) \rangle + |K_2|^2 \langle I(\mathbf{r}_2, t - t_2) \rangle + 2|K_1||K_2| \operatorname{Re}[\langle E^*(\mathbf{r}_1, t - t_1) E(\mathbf{r}_2, t - t_2) \rangle] \quad (2.2)$$

と表される。式(2.2)において右辺の第1項、第2項はそれぞれ、スリット1やスリット2が単独で存在している場合の点  $P$  の光の強度であり、右辺の第3項が光の干渉の効果を表している。複素コヒーレンス度はこの干渉効果の大きさを評価する関数であり、

$$\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau) = \frac{\langle E^*(\mathbf{r}_1, 0) E(\mathbf{r}_2, \tau) \rangle}{\sqrt{\langle I(\mathbf{r}_1, 0) \rangle \langle I(\mathbf{r}_2, \tau) \rangle}} \quad (2.3)$$

と定義される。ただし、式(2.3)の定義において複素コヒーレンス度が2つの電場  $E(\mathbf{r}_1, t_1)$  と  $E(\mathbf{r}_2, t_2)$  の時間差の関数となることを暗に仮定している。 $\tau = t_1 - t_2$  とすると、式(2.2)は、スリット1やスリット2がそれぞれ単独で存在している場合の点  $P$  の光の強度  $I_{s1}, I_{s2}$  を用いて

$$I_P = I_{s1} + I_{s2} + 2\sqrt{I_{s1}I_{s2}} \operatorname{Re}[\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)] \quad (2.4)$$

のように表すことが出来る。

複素コヒーレンス度は、Schwarzの不等式の関係性を式(2.3)の定義に適用すると分かるように、その絶対値が0から1の値を取る。 $|\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)| = 0$ の時は2つの開口位置の光は干渉性を持たず、位置  $\mathbf{r}_1$  と  $\mathbf{r}_2$  の光はインコヒーレントであると言う。 $|\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)| = 1$ の時はSchwarzの不等式の等号条件から  $E(\mathbf{r}_1, 0)$  と  $E(\mathbf{r}_1, \tau)$  は互いに定数倍の関係がある。この場合、2つの開口位置における光は常に位相関係を持つので、コヒーレントという。 $0 < |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)| < 1$ の時は2つの光が部分コヒーレントであると言う。

## 2.3 時間コヒーレンスと空間コヒーレンス

複素コヒーレンス度の伝搬は厳密な微分方程式によって決まっており、その時間的・空間的な振る舞いは互いに密接な関係を持つ[6]。しかし、この関数の特殊な場合、すなわち同位置や同時間の複素コヒーレンスを考えることは、光の統計的な性質の理解に有益であり、実験配置を考える上で目安とすることができる。同位置の複素コヒーレンス度を時間コヒーレンス、同時間の複素コヒーレンス度を空間コヒーレンスと呼ぶ。以下では、時間コヒーレンスと空間コヒーレンスについての定量的な説明を述べる。

### 2.3.1 時間コヒーレンス

同位置の電場の相関を表す複素コヒーレンス度である時間コヒーレンス  $\gamma_t(\tau) = \gamma(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \tau)$  は、光のスペクトルによって決まる。例えば、光が振動数  $\nu$  の単色光である場合には  $E(\mathbf{r}, t)$  は適当な定数を除いて  $E(\mathbf{r}, t) = e^{-i2\pi\nu t}$  と表すことができるため、時間コヒーレンスは

$$\gamma_t(\tau) = e^{-i2\pi\nu\tau} \quad (2.5)$$

となる。一方で、光の波長に幅がある場合には時間コヒーレンスの絶対値は  $\tau$  の増加と共に小さくなっていく。これは、マイケルソン干渉計を考えたときに2つの経路の光路長の差を大きくしていくとそれぞれの光同士の間で位相が全く相関を持たなくなり、干渉が起こらなくなるということに相当している。

時間コヒーレンスと光のスペクトルとの間の定量的な関係は、式 (2.3) から簡単に導くことが出来る。式 (2.3) の右辺の分子は電場の時間に関する自己相関関数であるので、Wiener-Khinchin の定理を適用することによって時間コヒーレンスと光のスペクトルを結びつける関係式:

$$\gamma_t(\tau) = \int_0^\infty s(\nu) e^{-i2\pi\nu\tau} d\nu \quad (2.6)$$

が得られる [7]。この式において、 $\nu$  は光の振動数、 $s(\nu)$  は  $\int_0^\infty s(\nu) d\nu = 1$  となるように規格化したスペクトル密度である。

例として、中心振動数  $\bar{\nu}$ 、半値全幅  $\Delta\nu$  のガウス関数で表されるスペクトル密度を持つ光の時間コヒーレンスについて考えてみよう。この場合、規格化したスペクトル密度は

$$s(\nu) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta\nu} \exp\left[-\left(2\sqrt{\ln 2}\frac{\nu - \bar{\nu}}{\Delta\nu}\right)^2\right] \quad (2.7)$$

となるので、式 (2.6) から時間コヒーレンスは

$$\gamma_t(\tau) = \exp\left[-\left(\frac{\pi\Delta\nu\tau}{2\sqrt{\ln 2}}\right)^2\right] \exp(-i2\pi\bar{\nu}\tau) \quad (2.8)$$

と表される。**Fig. 2.2** は、このときのスペクトル密度 (赤線)、および時間コヒーレンスの絶対値 (青線) を表したものである。時間コヒーレンスの絶対値は、2つの光の時間差  $\tau$  が  $1/\Delta\nu$  と同程度か短い場合に 0 より大きい値をとる。このことは、時間差が  $1/\Delta\nu$  と比較して十分に短い場合には2つの光の間に位相関係が成り立つ、すなわち可



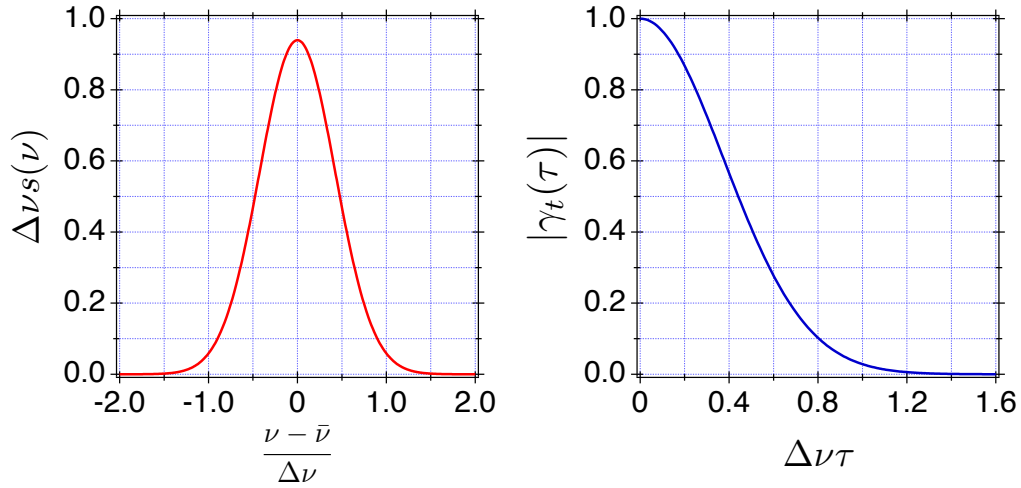


Figure 2.2

Gaussian shaped-normalized spectrum density (left) and its temporal coherence function (right).

干渉であることを意味している。この場合、 $E(\mathbf{r}, \tau) \simeq E(\mathbf{r}, 0)e^{-i2\pi\bar{\nu}\tau}$  と近似することができるので、複素コヒーレンス度を

$$\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau) = \gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)e^{-i2\pi\bar{\nu}\tau} \quad (2.9)$$

のように空間の関数 ( $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)$ ) と時間の関数 ( $e^{-i2\pi\bar{\nu}\tau}$ ) の積として表すことができる。

### 2.3.2 空間コヒーレンス

式 (2.9) の右辺の  $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)$  が空間コヒーレンスである。これは異なった位置の同時刻の電場の類似性を表す量である。例えば、基本の横モード (TEM<sub>00</sub>) のみからなるレーザー光の場合には、異なった位置の光の間に完全な相関関係があるので空間コヒーレンスの絶対値が 1 になる。別の例として、電球からの光を光源の“間近で”見る場合について考えてみる。この場合、電球の光は異なった原子が独立に発した光に由来しているため、異なった位置の光の場の中に相関は無い。そのため、空間コヒーレンスは 0 になる。

ところで空間コヒーレンスは光源の特性のみで決まるものではない。空間コヒーレンスを持たない、あるいは空間コヒーレンスが小さい光源であっても、光が自由空間を伝搬するうちに高い空間コヒーレンス特性を獲得することが出来る。これは遠くの

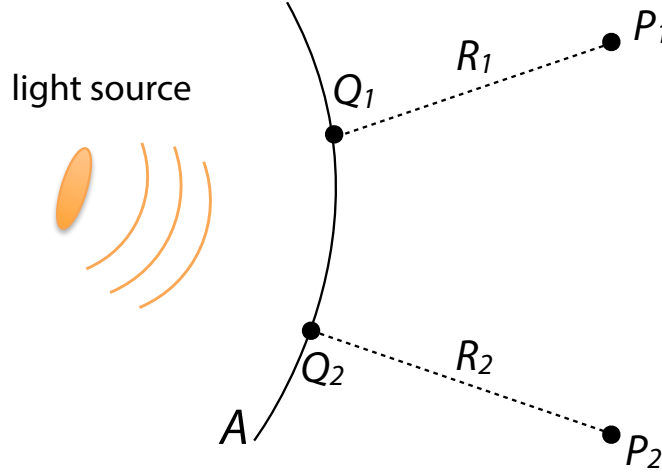


Figure 2.3

Notation relating to the Zernike's propagation law.

点から光源を見ると点光源に見えるために、光源から放射された光が球面波や平面波のようにみなすことが出来るようになるためである。

この伝搬による空間コヒーレンスの形成は、Zernikeの伝搬法則 [6,8] によって定量的に表わされる。この法則は光の伝搬を遮る閉曲面  $A$  における任意の2点  $(Q_1, Q_2)$  の間の空間コヒーレンスが既知のときに、光の伝搬方向に存在する2点  $P_1, P_2$  の間の空間コヒーレンスを決定するものである。Fig. 2.3 に示すように、点  $P_1$  と点  $Q_1$  の距離を  $R_1$ 、点  $P_2$  と点  $Q_2$  の距離を  $R_2$  とすると、 $P_1, P_2$  の間の空間コヒーレンスは、

$$\gamma(P_1, P_2, 0) = \frac{1}{\sqrt{\langle I(P_1) \rangle \langle I(P_2) \rangle}} \int_A \int_A \gamma(Q_1, Q_2, 0) \sqrt{\langle I(Q_1) \rangle \langle I(Q_2) \rangle} \frac{e^{i\bar{k}(R_2 - R_1)}}{R_1 R_2} dQ_1 dQ_2 \quad (2.10)$$

となる [6, 8]。ここで、 $\bar{k}$  は中心振動数に対応した光の波数であり、光速  $c$  を用いて  $\bar{k} = 2\pi\nu/c$  と表される。また、式 (2.10) の導出過程において  $|R_1 - R_2|$  が時間コヒーレンス長 ( $\sim c/\Delta\nu$ ) よりも十分に短いことを仮定している。

閉曲面  $A$  において光がインコヒーレントである場合には、この曲面における空間コヒーレンスは2次元のデルタ関数を用いて

$$\gamma(Q_1, Q_2) = \delta(Q_1 - Q_2) \quad (2.11)$$

と表わされる。このとき、Zernike の伝搬法則は

$$\gamma(P_1, P_2, 0) = \frac{1}{\sqrt{\langle I(P_1) \rangle \langle I(P_2) \rangle}} \int_A I(Q) \frac{e^{i\vec{k}(R_2 - R_1)}}{R_1 R_2} dQ \quad (2.12)$$

となって van Cittert-Zernike の定理に帰着する。式 (2.12) の右辺は 0 にならないので、インコヒーレントな光源から放出された光であっても自由空間を伝搬するにつれて空間コヒーレンスの絶対値が 0 よりも大きな値をとるようになることが定量的に導かれる。

X 線管から放出される X 線や放射光は、この伝播によるコヒーレンス形成を利用することによって空間コヒーレンスを獲得している。一方で、XFEL などのレーザー光源は、少数の横モードから成り立っている。それぞれのモードの中では完全な空間コヒーレンスをもつため、光源自体が高い空間コヒーレント特性を持っている。ただし、この場合も空間コヒーレンスの伝搬は式 (2.10) の Zernike の伝搬法則に従う。

## 第3章 X線自由電子レーザーの発振原理と装置構成

本章では X 線自由電子レーザーの発振原理と光特性、そして SACLA を例とした装置の構成について述べる。

### 3.1 自由電子レーザーの歴史

原子に束縛されていない電子、いわゆる自由電子を使ってレーザー光を発振させるというアイデアは、Madey によって 1971 年に最初に提案された [9]。彼は、光速近くに加速した電子を規則正しく並んだ磁場周期のもとで蛇行させると、電子からコヒーレントな制動放射が起こることを理論的に示した。この自由電子レーザーのアイデアは、理論提案から約 5 年後に Elias, Deacon, Madey らによって実証実験が行われ、その正しさが証明された [10, 11]。

その後 1980 年代始めに、高品質の電子ビームをアンジュレータと呼ばれる周期的な磁石列に入射すると、電子からの放射光と放射光による電子ビームの密度変調との間に正のフィードバックが起こり、大強度のレーザー発振を実現できることが理論的に示された [12, 13]。この SASE 方式 (自己増幅自発放射方式) と呼ばれる方法を用いるとシングルパスでレーザー光を増幅できるため、誘導放射を利用する通常の光学レーザーで用いられる共振器を必要としない。そのため、共振器のための適切な反射鏡がない X 線や軟 X 線領域においてレーザー発振を実現する方法として期待が持たれた [14]。そして 2000 年ごろからシングルパス FEL の短波長化の研究が活発化し、中赤外線から真空紫外線領域の FEL が実現された [15–20]。

その後の電子銃や電子加速器の技術の進化によって、より高品質な電子ビームを利用できるようになり、2000 年代半ばから後半にかけて極端紫外線や軟 X 線領域の FEL が実現された [21–23]。そして、2009 年に米国の Linac Coherent Light Source (LCLS) が波長  $1.2 \text{ \AA}$  の X 線レーザー発振を実現し [2]、次いで日本の SACLA において 2011

年に波長  $0.8\text{\AA}$  の X 線レーザー発振が確認された [3]。さらに、現在ではスイス、ドイツ、韓国において XFEL 施設の建設が進行しており、2020 年頃までにはそれぞれの施設においてレーザー発振が実現される見通しである。

## 3.2 SASE方式の自由電子レーザーの発振原理

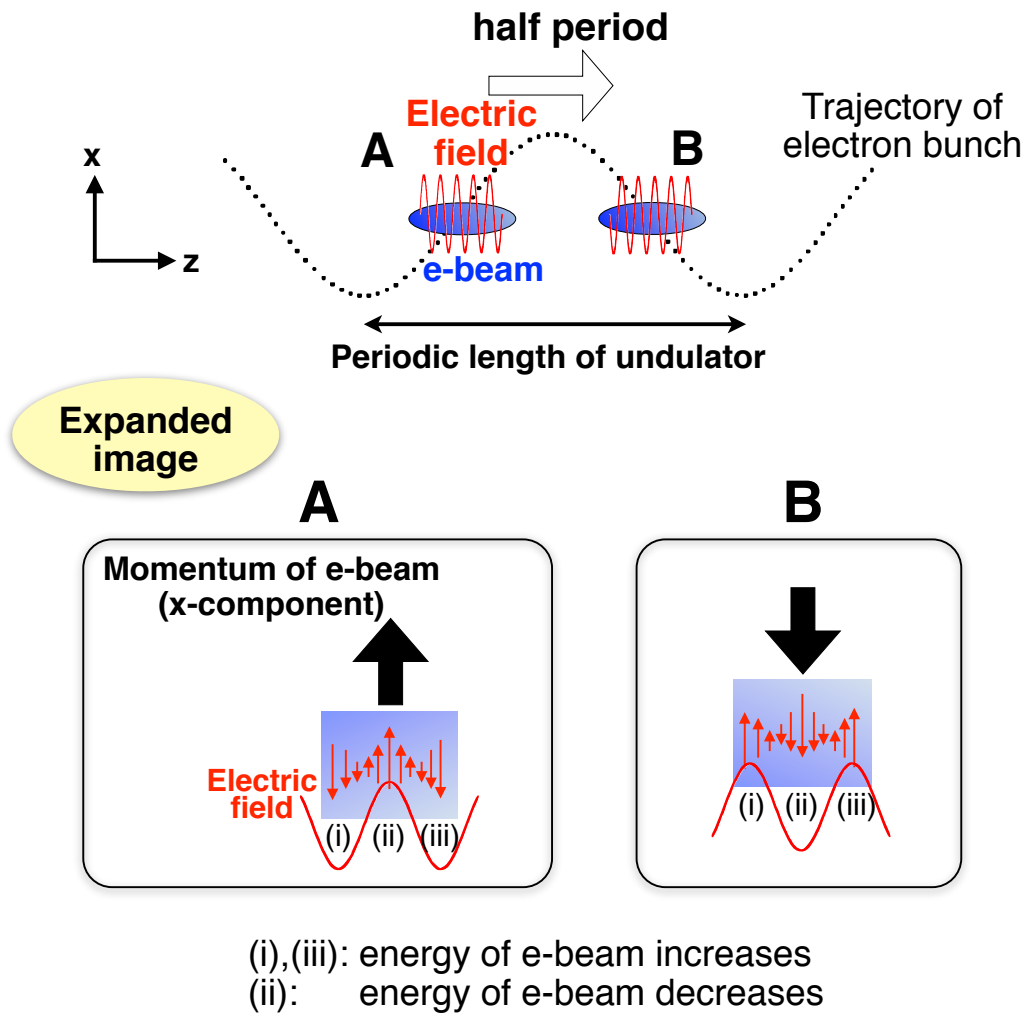
SASE方式では、電子ビームをアンジュレータによって生成された周期的な磁場に通すことでレーザー発振を実現する。アンジュレータ中を蛇行する電子ビームは、電子ビームから放出された光との間でのエネルギーのやり取りを行う。そして、アンジュレータを進行するに伴って電子ビームに密度の変調が生じてゆく。最終的に、マイクロバンチ (microbunch) と呼ばれる電子が密集した塊が FEL の発振波長の間隔に並ぶことによってコヒーレントな光の放射が起こる。

この節では、まず、SASE方式のレーザー発振過程の原理を定性的に説明する。その次に、FELの増幅過程を定量的に表すための1次元理論と呼ばれる近似モデルから得られる結論について述べる。最後に、SASE方式のFELの光特性について定性的に述べる。

### 3.2.1 SASE方式のレーザー発振過程の定性的な説明

ここでは、文献 [24] で述べられているレーザー増幅の原理についての定性的な説明を紹介する。電子ビームが、リニアアンジュレータによって周期的に曲げられながら進行している、**Fig. 3.1** の状況を考えてみる。ここで電子ビームの進行方向を座標の  $z$  軸にとり、電子ビームがアンジュレータの磁場によって  $x$  軸方向の力を受けているとしよう。この場合、 $x$  方向に電場を持つ光がアンジュレータの光軸方向に放出される。

**Fig. 3.1** の下部の2つの図は、図中の点 A と点 A からアンジュレータの半周期長ずれた点 B に電子ビームが達した際の電子ビームと光の重なりについて、模式的に拡大図を描いたものである。点 A を電子ビームが通るとき、電子ビーム内の電子はすべて  $+x$  方向の運動量を持つ。このとき、光の半波長ごとに電子ビームを区切った拡大図の (i), (ii), (iii) の領域についてそれぞれ見てみると、(i) と (iii) の領域に含まれる電子は、光の電場によって  $+x$  方向の力を受けるため、光からエネルギーを受け取る。一方で、(ii) の領域に含まれる電子は、電場によって  $-x$  方向の力を受けてエネルギーを失う。



**Figure 3.1**

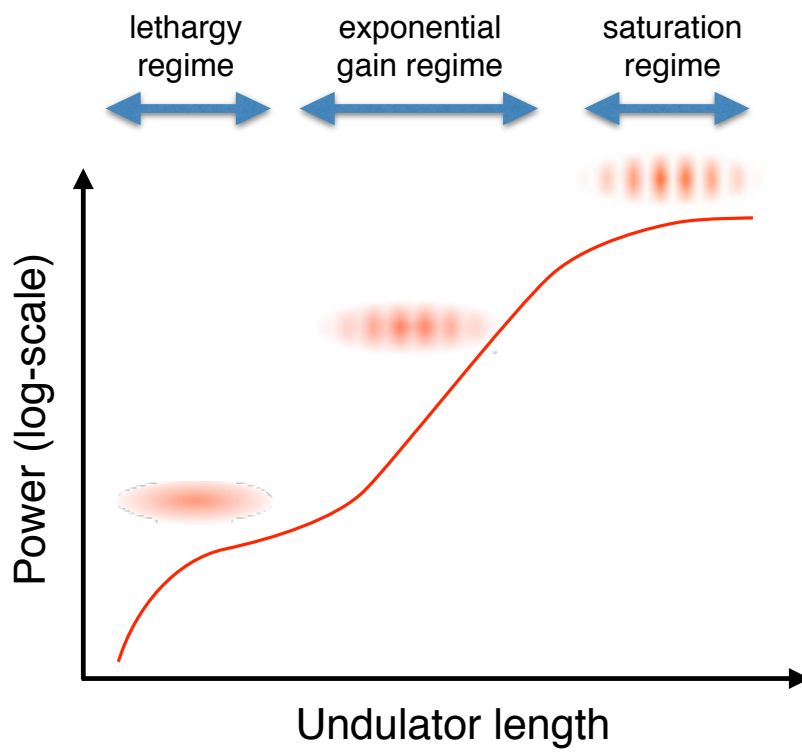
Electron beam traveling along undulators and the fundamental undulator radiation overlapping the electron beam.

次に、点 B における電子ビームと光の位相関係について見てみよう。電子から放射される光はアンジュレータの基本波の波長を持つため、それぞれの電子が感じる光の位相は点 A での光の位相からちょうど  $\pi$  ずれたものになる。一方で、点 B において電子は点 A とは逆に  $-x$  方向の運動量を持つ。そのため点 A の場合と同様に、拡大図の (i) と (iii) の領域に含まれる電子は光からエネルギーを受け取り、(ii) の領域に含まれる電子はエネルギーを失う。このようにして電子ビームは、自身が放出した光との間でエネルギーのやり取りを行い、その結果として電子ビームの内部にアンジュレータの基本波の間隔でエネルギーの粗密が生じる。

エネルギーを得た電子は、磁場による蛇行の振幅が小さくなりアンジュレータを進行する速度が早くなる。これらの電子は、電子ビームにおけるその相対的な位置を進行方向の前方側へと変化させていく。**Fig. 3.1** を例にすると、(i) や (iii) の領域の電子が電子ビームの前方に向かって移動してゆく。一方で、エネルギーを失った電子はアンジュレータを進行する速度が遅くなり、進行方向の後方側へと電子ビーム内の相対的な位置を変化させる。**Fig. 3.1** では、(ii) の領域の電子が電子ビームの後方に向かって移動してゆく。このようにして電子ビームのエネルギーの粗密が、光の波長間隔周期の電子密度の粗密、すなわちマイクロバンチ化を引き起こす。そして、位相の揃ったレーザー光が発振される。

SASE方式の FEL では、アンジュレータの入り口付近において電子から放射された自発光を種光としてレーザー発振を実現する。**Fig. 3.2** は SASE方式の FEL について、電子がアンジュレータの通過する際に放射される光のパワーが増加する様子を概念的に示したものである。アンジュレータの入り口付近の領域では、各電子から位相がばらばらの自発光が放射され、光のパワーはアンジュレータ長さに対して線形に増加する。この領域は、レーザー発振が起こらない“不活性な領域”であり、lethargy regime と呼ばれる。

電子がアンジュレータを進むに従って、自発光の電場によって電子ビームのエネルギー密度の変調および電子密度の変調によるマイクロバンチ化が進行する。そして、レーザー発振が起こり始めることで放出される光のパワーが大きくなってゆく。この光増幅によってさらなる電子密度の変調が誘起され、光のパワーが指数関数的に増幅するという正のフィードバックが起こる(指数関数的増幅領域)。一方で、電子からの光放出は、電子ビームのエネルギーの減少やエネルギー広がり増加を徐々に引き起こす。この電子ビームの質の劣化はレーザー発振の増幅率を小さくしてゆく。最終的にアンジュレータを電子が通過してもほとんど光が増幅しない状況になり、レーザー



**Figure 3.2**

Light amplification and electron microbunching processes in the SASE-FEL.



発振の飽和を迎える。以上が、SASE方式によるFEL増幅過程の定性的な説明である。

### 3.2.2 FEL増幅過程の1次元モデル

SASE方式のFELにおけるレーザー増幅の過程を計算するためには、個々の電子の運動と、電子から放射された光の伝搬や振幅の増減を空間と時間の関数として求める必要がある。このようなプロセスを解析的に解くことは通常は不可能であり、数値計算による評価が必要になる。

しかし、電子ビームが進行方向と垂直な方向に無限の広がりを持つ場合には、幾つかの仮定のもとで光増幅過程を少数のパラメータによって表すことができる。代表的なものが1次元モデルと呼ばれるもので、現実のFELの光増幅過程の目安となるため非常に有用である。ここでは、このモデルにおける光増幅の振る舞いについて述べる。

3.2.1と同様にリニアアンジュレータの中を進む電子を考える。 $z$ 軸を電子の進行方向にとり、アンジュレータ入り口を $z$ 軸の原点とする。そして、 $y$ 軸および $x$ 軸をそれぞれアンジュレータ磁場の向き、磁場によって電子が力を受ける向きに沿うようにとる。さらに、位置 $z$ におけるアンジュレータの磁場の大きさ $B(z)$ が、アンジュレータの周期長 $\lambda_u$ や波数 $k_u = 2\pi/\lambda_u$ を用いて

$$B(z) = B_0 \sin\left(\frac{2\pi z}{\lambda_u}\right) = B_0 \sin(k_u z) \quad (3.1)$$

と表されるとする。このとき、磁場中を運動する電子から $z$ 軸方向に放射される基本波の波長は

$$\lambda = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2}\right) \quad (3.2)$$

となる。ここで $\gamma$ は電子のローレンツ因子、 $K$ は電子質量 $m$ と真空中の光速 $c$ を用いて

$$K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi mc} \quad (3.3)$$

で表される偏向定数(いわゆる $K$ 値)である。

1次元モデルでは、 $x$ 軸方向に偏向した単色平面波(波長がアンジュレータの基本波の波長と異なっても構わない)がアンジュレータに種光として入射された状況を考える。さらに、電子密度が $x$ 軸および $y$ 軸方向について均一であり、増幅される光が $x$ 軸方向に偏向した平面波であることを仮定する。

このモデルでは、2つのパラメータによって光増幅の振る舞いが決まる。1つ目はゲインパラメータ (gain parameter) と呼ばれるもので、真空中の透磁率  $\mu_0$ 、電気素量  $e$ 、平均の電子密度  $n_e$  を用いて

$$\Gamma = \left[ J_0 \left( \frac{K^2}{4 + 2K^2} \right) - J_1 \left( \frac{K^2}{4 + 2K^2} \right) \right]^{2/3} \left[ \frac{\mu_0 K^2 e^2 k_u n_e}{4\gamma^3 m} \right]^{1/3} \quad (3.4)$$

と表される。ここで  $J_0$  と  $J_1$  はそれぞれ0次と1次のベッセル関数である。 $\Gamma$  は長さの逆数の次元をもち、大きな値を持つほどアンジュレータ中で速やかなマイクロバンチ生成とそれに伴う光増幅が起こる。

2つ目のパラメータは、

$$k_p = \sqrt{\frac{2\lambda}{\lambda_u}} \cdot \frac{\omega_p}{c} \quad (3.5)$$

で表される空間電荷パラメータ (space charge parameter) である。ここで  $\omega_p$  は相対論的な速度を持つ電子ビームにおけるプラズマ周波数であり、真空中の誘電率  $\epsilon_0$  を用いて

$$\omega_p = \frac{n_e e^2}{\gamma \epsilon_0 m} \quad (3.6)$$

で与えられる。この空間電荷パラメータは、空間電荷効果によってマイクロバンチ生成が妨げられる程度を表すものである。

種光の波長がアンジュレータの基本波の波長と同一の場合、FEL 増幅の初期過程における光の複素振幅  $E$  はゲインパラメータと空間電荷パラメータを含んだ微分方程式:

$$\frac{1}{\Gamma^3} \frac{d^3 E}{dz^3} + \frac{k_p^2}{\Gamma^3} \frac{dE}{dz} - iE = 0 \quad (3.7)$$

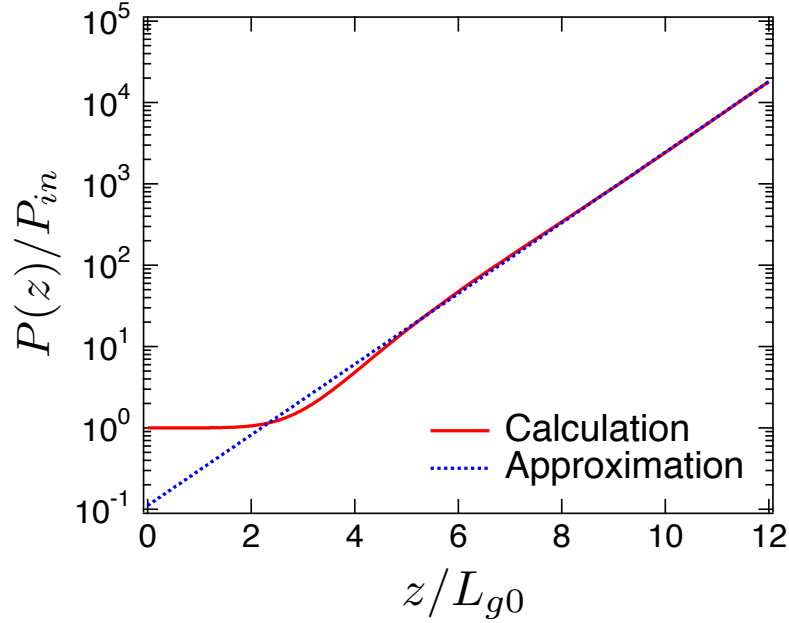
を満たす [25]。ゲインパラメータが空間電荷パラメータよりも十分に大きいと仮定し、アンジュレータ入り口の種光の電場振幅を  $E_{in}$  と置くと式 (3.7) は簡単に解くことが出来て

$$E(z) = \frac{E_{in}}{3} \left\{ \exp \left[ \frac{(i + \sqrt{3})\Gamma z}{2} \right] + \exp \left[ \frac{(i - \sqrt{3})\Gamma z}{2} \right] + \exp(-i\Gamma z) \right\} \quad (3.8)$$

なる解が得られる。さらに、この式の両辺の絶対値の2乗を取ることによって、アンジュレータの各位置における光のパワー  $P(z)$  が、

$$P(z) = \frac{1}{9} \left| \exp \left[ \frac{(i + \sqrt{3})\Gamma z}{2} \right] + \exp \left[ \frac{(i - \sqrt{3})\Gamma z}{2} \right] + \exp(-i\Gamma z) \right|^2 P_{in} \quad (3.9)$$

となることが分かる。ここで  $P_{in}$  は種光のパワーを表している。



**Figure 3.3**

Light amplification in the one-dimensional FEL model (red solid line) and the approximation curve given by eq. (3.10) (blue dotted line).

十分に  $z$  が大きいとき、式 (3.9) から  $P(z)$  は

$$\frac{P(z)}{P_{in}} \simeq \frac{1}{9} \exp(\sqrt{3}\Gamma z) \quad (3.10)$$

と近似することができる。このことからアンジュレータを通過する際に光の強度が指数関数的に増加することが分かる。このとき光のパワーが  $e$  倍になる距離:

$$L_{g0} = \frac{1}{\sqrt{3}\Gamma} \quad (3.11)$$

のことを (1次元モデルにおける) ゲイン長と呼ぶ。

**Fig. 3.3** の赤線は、式 (3.9) で表されるアンジュレータの各位置における光のパワーを示したものである。参考のために式 (3.10) による近似も合わせて示した。 $z$  が  $3L_{g0}$  程度以下の場合には光はほとんど増幅しない。これはアンジュレータの入り口付近では、電子密度の変調があまり起こっていないことを意味している。一方で、 $z$  が  $3L_{g0}$  よりも大きくなると電子密度の変調が起こり始め、式 (3.10) で近似される光パワーの指数関数的な増加が起こり始める。

### 3.2.3 SASE方式のFELの光特性

実際のSASE方式のFELでは、電子ビームは有限の大きさと角度発散、そしてエネルギー広がりを持つ。さらに、電子ビームから放出された光は回折しながら伝搬していく。そのため、光増幅の振る舞いや光特性は1次元モデルから得られる結果と異なったものになる。以下では、SASE方式のFELにおける光増幅過程や光特性について定性的な説明を述べる。

#### ゲイン長と飽和パワー

SASE方式のFELでは1次元モデルと同様に、アンジュレータを電子が通過する際に指数関数的な光のパワーの増幅が起こる。しかし、そのゲイン長 $L_g$ は式(3.11)で表される1次元モデルのゲイン長 $L_{g0}$ よりも長くなる。 $L_g$ と $L_{g0}$ の比は、電子ビームの角度広がりやエネルギー広がり、ビームサイズの関数として表され[25,26]、実際のXFEL施設における電子ビームのパラメータのもとでは $L_g$ と $L_{g0}$ の間には数十パーセント程度の違いが生じる。

また、これらの電子ビームのパラメータのもとでは、光電場の増幅はアンジュレータ入り口からおよそ $20L_g$ の地点において飽和に達する[27,28]。この飽和領域における光のパワー $P_{sat}$ は、電子ビームのパワー $P_{beam} = \gamma mc^3 n_0$ を用いて

$$P_{sat} \approx 1.6 \times \rho P_{beam} \left( \frac{L_{g0}}{L_g} \right)^2 \quad (3.12)$$

と近似できることが知られている[29]。ここで $\rho$ は

$$\rho = \frac{\Gamma}{2k_u} = \frac{1}{4\pi\sqrt{3}} \cdot \frac{\lambda_u}{L_{g0}} \quad (3.13)$$

で定義される、FELパラメータ(あるいはPierceパラメータ)と呼ばれるパラメータである。式(3.12)において $L_g$ と $L_{g0}$ が同程度であることを勘案すると、FELパラメータは電子ビームから光へのエネルギーの変換効率と考えることができる。SACLAやLCLSでは、FELパラメータの大きさは $10^{-3}$ から $10^{-4}$ 程度である[25]。

#### 時間モードと空間モード

FEL発振の過程では、アンジュレータの基本波の波長だけでなく、この波長に近い波長の光も増幅される。SASE方式のFELでは自発光を種光としてレーザー発振

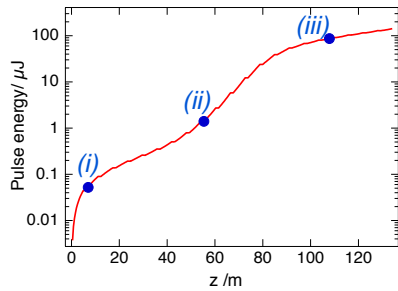
を実現するが、この自発光は様々な波長の光を含んでいる。そのため、SASE方式のFELによって発振される光は、スパイク状のスペクトルを持つ時間的に多モードの光になる。

一方で、SASE方式のFELの空間モードは少数からなる。FELの種光である自発光は、多数の異なる空間モードからなる光とみなすことが出来るが、空間モードごとにその増幅率が異なる。そのため電子ビームがアンジュレータを通過にするにつれて、増幅率が最も大きな基本モードの全体に占めるパワーの割合が大きくなっていく。一般に、FELの基本空間モードは滑らかな空間プロファイルであり、放射されるレーザー光はガウス関数に近い滑らかなプロファイルを持つ。

これらの状況を分かりやすく示すために、FELのシミュレーションコードであるSIMPLEX [30]を利用してSASE型のFEL発振過程の数値計算を行なった。計算に用いた電子ビームとアンジュレータのパラメータおよび、電子ビームがアンジュレータの各位置を通過する際のFELのパルスエネルギーを計算した結果(ゲインカーブ)をFig. 3.4の上段に示す。中段と下段の図は、上段の図の青点で表されている、(i) 自発光放射領域、(ii) 指数関数的増幅領域、(iii) 飽和領域、における光のスペクトルと空間プロファイルを示したものである(中段の図(i)では、広域スペクトルも合わせて示した)。

まずFELの発振過程におけるスペクトルの変化について見てみよう。(i)の自発光放射領域では、電子から放射される光は低エネルギー側に裾を引いたスペクトル形状を持つ。これは電子ビームの進行方向から外れた方向へ放射されている光(軸外放射光)のためである。また、電子バンチ内部の電子分布が空間的にランダムであることを反映してスペクトルはスパイク状の構造を持っている。FEL発振過程では、この自発光を種光とするために(ii)や(iii)で示すように、増幅後のスペクトルもスパイク状の構造を持つ。このスパイクそれぞれが、1つの時間モードに対応している。ところで、中段の図(i)と(ii)や(iii)を比較すると、FELの光は自発光と比較してバンド幅が狭くなっていることが分かる。これはFEL発振の過程で、アンジュレータの基本波付近の光子エネルギーの光のみが増幅されることによるためである。

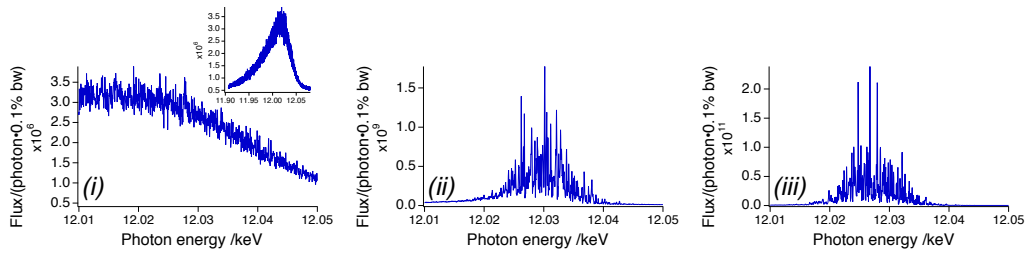
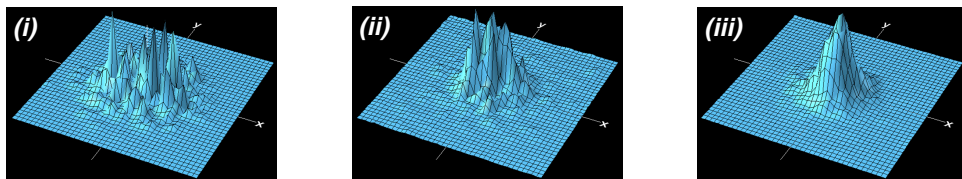
次にX線ビーム強度の空間プロファイルについて見てみよう。Fig. 3.4の下段の図は、(i), (ii), (iii)それぞれの位置において、電子バンチの電流値ピーク位置における強度プロファイルを表している。図中の $x, y$ は水平・垂直方向に対応しており、図は0.32 mm四方の範囲についての強度プロファイルの計算結果である。(i)の領域では強度の空間プロファイルはスパイク状になる。これは自発光が多くの空間モードを含んでい

**Gain Curve****e-beam**

Electron energy: 8 GeV  
 Bunch length: 7  $\mu\text{m}$   
 Bunch charge: 180 pC  
 Bunch shape: Gaussian  
 Emittance (x): 1 mm·mrad  
 Emittance (y): 1 mm·mrad  
 Energy spread:  $5 \times 10^{-5}$   
 beta\_ave (x): 25 m  
 beta\_ave (y): 25 m  
 Energy chirp: 0

**undulator**

K value: 1.9  
 Periodic length: 18 mm  
 Length per segment: 5 m  
 Segment interval: 6.15 m

**Spectrum****Profile****Figure 3.4**

A numerical simulation of XFEL amplification processes using SIMPLEX. (Top) Simulation parameters and the calculated gain curve. (Middle) Spectrum at three different points during the light amplification processes: (i) lethargy regime, (ii) exponential gain regime, and (iii) saturation regime. (Bottom) Intensity profiles at the three points.

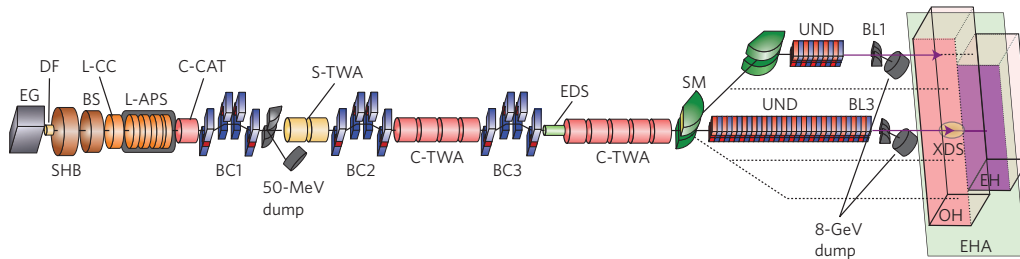


Figure 3.5

Schematic illustration of SACLA [3].

ることによる。一方で、(ii) や (iii) の領域の図から分かるように、空間プロファイルは光の増幅に従って滑らかになっていく。これは、前述の通り、基本の空間モードの全体の強度に占める割合が光増幅の過程で大きくなっていくためである。

### 3.3 SACLA の装置構成

XFEL は、低エミッタンスで高い電流値を持つ高輝度電子ビームを生成する加速器、電子ビームから SASE 方式によって X 線レーザーを発振させるアンジュレータ光源、そして得られたレーザー光を輸送して実験を行うためのビームラインからなる。本節では、XFEL の装置構成について SACLA を例として述べる。

Fig. 3.5 に SACLA の概略図を示す。SACLA は装置の全長がおよそ 700 m であり、そのうち 400 m が加速器、200 m がアンジュレータギャラリー、残りがビームラインである。SACLA の特徴は、他の XFEL 施設と比較して装置全体が非常にコンパクトであることにある。これは、後述する C バンド加速管や真空封止型アンジュレータによって達成されたものである。

#### 3.3.1 加速器

まず、SACLA の上流部の加速器について見ていく。SACLA では、単結晶の  $\text{CeB}_6$  をカソードとした熱電子銃 (electric gun; EG) [31] によってエネルギー 500 keV、電流値 1 A の電子ビームが 1 秒間に最大 60 パルス供給される。そして、電子銃の下流のチョッパーとコリメータ (Fig. 3.5 の deflector with collimator; DF) によって、電子ビームから 1 ns の時間幅の単バンチが切り出されて加速器に入射される。加速器に入射された電子バンチは、周波数 238 MHz の高周波空洞 (subharmonic buncher; SHB) によって進行

方向に沿ったエネルギーチャープを与えられる。そして、この電子バンチを 476 MHz の高周波 (radiofrequency; RF) を用いるブースター加速器 (booster; BS) に通すことで、電子の速度差を利用したバンチ圧縮とエネルギー 1 MeV までの加速を行う。この圧縮された電子バンチは L バンド (1.428 GHz) の RF 空洞 (L-band correction cavity; L-CC, L-band alternating periodic structure typed cavity; L-APS) によってエネルギー 40 MeV まで加速される。L バンド空洞通過直後の電子バンチの時間幅は 30 ps、電流値は 30 A 程度である。

その後、電子バンチは 3 つのバンチ圧縮器 (bunch compressor; BC) と S バンド (2.856 GHz) や C バンド (5.712 GHz) の加速空洞 (S(C)-band travelling-wave acceleration tube; S(C)-TWA) によって、時間幅を圧縮されながら加速される。このとき 1 つ目のバンチ圧縮器の前に置かれた C バンド補正管 (C-band correction acceleration tube; C-CAT) によって電子バンチにエネルギー変調をつけることで、バンチ圧縮過程における非線形性を補正している。3 番目に置かれた最下流のバンチ圧縮器を通過した直後の電子エネルギーとバンチの時間幅、ピーク電流値はそれぞれ 1.4 GeV, 30 fs, 数 ~ 数 10 kA 程度となる。このバンチ圧縮器の下流には、電子ビーム診断系 (electron beam diagnostic section; EDS) が設置されており、電子ビームの時間構造の診断が行われている。

バンチ圧縮器の下流側が、104 本の C バンド加速管からなる全長 250 m の主加速器である。C バンド加速管は、他の XFEL 施設で用いられている S バンドや L バンド加速管と比較して高い加速効率を達成できるため、短い長さの加速器で電子ビームのエネルギーを高めることが出来る。この主加速器部の短さが SACLA の特徴であるコンパクトさを実現した 1 つの要因である。主加速部出口での電子エネルギーは実験に用いられる XFEL の波長に合わせて調整されるが、典型的なエネルギーは 8 GeV 程度である。加速後の電子ビームは、振り分け電磁石 (switching magnet; SM) によってアンジュレータ列 (undulator; UND) へと導かれる。現在のところ、SACLA には 3 つのアンジュレータ列が配置されており、それぞれから発振した X 線ビームが 3 つのビームライン (BL1, BL2, BL3) へと供給される。本論文で述べる実験はすべて SACLA の BL3 を用いて行われたものである。

### 3.3.2 光源

SACLA では真空封止型のアンジュレータが X 線光源として用いられている。通常のアンジュレータでは磁石列が電子ビームを通る真空タンクの外に設置されているの



**Table 3.1**  
Undulator parameters of SACLA.

Periodic length	18 mm
Number of periods per module	277
Number of undulator modules	21
Segment length	5 m
Maximum $K$ value	2.3
Minimum gap	3.5 mm

に対して、真空封止型アンジュレータでは磁石列が真空タンクの内部に配置されている。真空封止型アンジュレータでは上下の磁石列の間隔を小さくすることが出来るため、たとえ小さな磁石によって磁石の周期を短くしても電子ビームを蛇行させるのに十分な磁力が得られる。アンジュレータのビーム軸方向の基本波の波長は、式 (3.2) で表わされるように電子ビームエネルギーの 2 乗の逆数およびアンジュレータの周期長に比例する。そのため短い磁場周期を持つ真空封止型アンジュレータは、XFEL の発生に必要な電子ビームのエネルギーを小さくすることが出来る。この特徴を利用することで SACLA は、加速管の長さを短縮することに成功している。

また、真空封止型アンジュレータは磁石間のギャップを変えることが出来るという特徴がある。このことは、アンジュレータの偏向定数 ( $K$  値) を容易に変更できることを意味しており、短い時間 (数分程度) での XFEL の発振波長の変更や第 6 章で述べる波長の大きく異なる 2 色の XFEL の発振 [32] といった技術の実現を可能にしている。

**Table 3.1** は、SACLA で使われている真空封止型アンジュレータのパラメータについてまとめたものである。1 台のアンジュレータは約 5m の長さを持っており、**Fig. 3.6 (a)** のような外観をしている。**Fig. 3.6 (b)** は SACLA のアンジュレータギャラリーを上流側からとった写真である。写真の右側が BL3 のアンジュレータ、左側が BL2 のアンジュレータである。SACLA の BL2 と BL3 それぞれ 15 台、21 台のアンジュレータから構成されている。これらのアンジュレータはそれぞれ  $K$  値のキャリブレーションやアンジュレータ高さの精密調整が行われ [33]、電子ビームが理想的な軌道を通るように最適化されて設置されている。

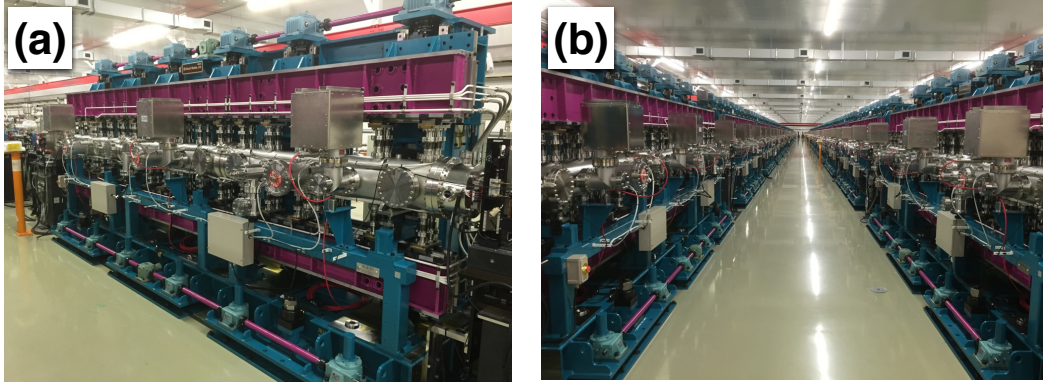


Figure 3.6

Photographs of (a) single undulator module and (b) undulator garalley.

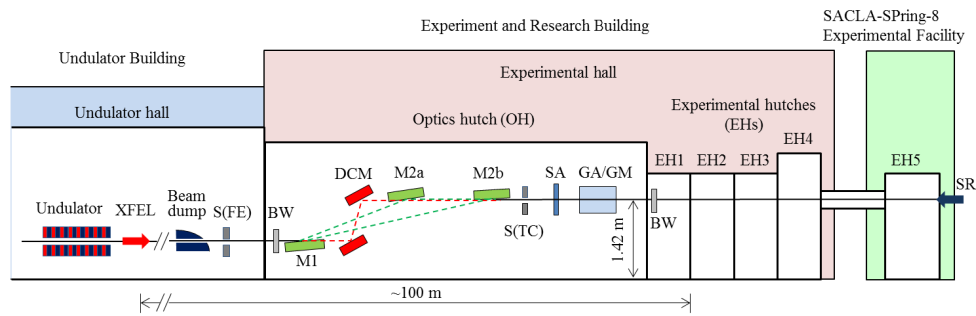


Figure 3.7

Schematic illustration of SACLA BL3 [34].

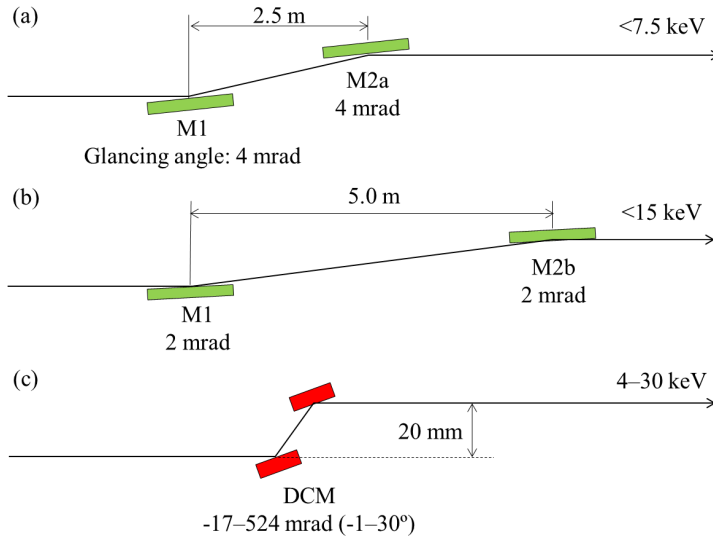
### 3.3.3 ビームライン

アンジュレータで発振した XFEL は、ビームラインへ導かれて利用実験に用いられる。SACLA の BL3 の全体図を **Fig. 3.7** に示す。SACLA では高次高調波除去ミラー、二結晶分光器 (double crystal monochrometer; DCM)、スリットといった光学系の機関部分は、ビームラインの光学ハッチ (optics hatch; OH) に集約されている。そして、その下流に実験ハッチ (experimental hatch; EH) がタンデムに 5 つ並んだビームライン構成をしており、最適な EH が実験毎に選択されて利用実験が行われている。また、最下流の EH5 は隣接する SPring-8 からの放射光をハッチ内に導入することができ、SACLA からの XFEL との同時利用が可能になっている。

SACLA からの XFEL には大きく分けて 2 つの利用形式がある。1 つ目は XFEL をピンクビームとして利用する場合、2 つ目は XFEL を分光してモノクロビームとして使う

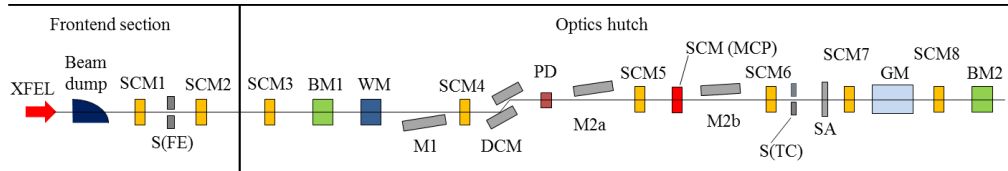
場合である。まず、XFEL をピンクビームとして用いる場合には、XFEL を OH 内の互いに平行な 2 対の平板ミラーによって全反射させて実験ハッチまで導く。このとき、ミラーはローパスフィルターとして働くために XFEL の高調波はカットされる。SACLA では、光子エネルギーに合わせて 2 通りの平板ミラーの組み合わせを使い分けている (Fig. 3.8 (a), (b))。まず光子エネルギーが 7.5 keV 程度よりも低い場合には、Fig. 3.7 や Fig. 3.8 (a) で M1 および M2a と示されているミラーを用いて、入射角 4 mrad の条件で XFEL を反射させる。光子エネルギーが高い場合には、M1 と M2b のミラーを入射角 2 mrad に調整して XFEL を反射させる (Fig. 3.8 (b))。XFEL のビームサイズは光子エネルギーが低いほど大きくなるので、入射角を大きくして光の取りこぼしを少なくするために、このようなミラーの使い分けを行なっている。一方で、XFEL をモノクロビームとして使う場合には OH 内の DCM を用いる (Fig. 3.8 (c))。ミラーおよび DCM を用いるどちらの場合でも、出射光の光軸は共通であり、入射ビームの光軸から 20 mm 上方にシフトした位置に XFEL ビームが定位置出射される。

ランダムな自発光から増幅を開始する SASE 方式の FEL では、ショットごとに光特性が異なる。そのため光学ハッチの中には、Fig. 3.9 に示すようにパルスごとの光診断を行うための様々な装置が配置されている。例えば、ビームプロファイルを測定するスクリーンモニター (screen monitor; SCM)、XFEL の位置と強度を測定するビームモニター (beam monitor; BM)、XFEL の中心波長を決定するスペクトロメータ (wavelength monitor; WM) などである。重要な点はこれらの計測が光の強度や質をほとんど劣化させることなく、装置の下流へと XFEL の光を通過させることにある。SACLA では各パルスの特性は OH や EH に設置された光診断装置によって評価され、データベースに記録が残される。これらの記録は、実験結果の解析に有効に使うことができる。

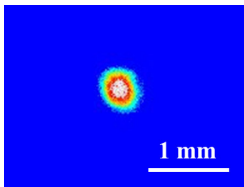


**Figure 3.8**

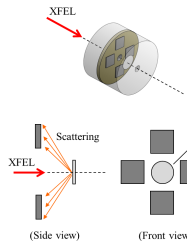
Three different configurations of the X-ray optics in the optical hutch: (a) Mirror 1 and Mirror 2a, (b) Mirror 1 and Mirror 2b, (c) double crystal monochromator (DCM) [34].



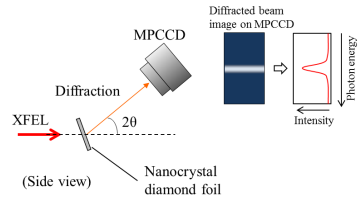
screen monitor (SCM)



beam monitor (BM)



wavelength monitor (WM)



**Figure 3.9**

Photon-beam diagnostic systems in the optical hutch of SACLA [34].

## 第4章 拡張型ヤングの実験によるXFELの空間コヒーレンス測定

本章では、XFELの空間コヒーレンスを測定するために開発した“拡張型ヤングの実験”の原理および、この手法を使ってSACLAから出射されたXFELの空間コヒーレンス特性を評価した結果について述べる。

### 4.1 背景

位相の揃った干渉性の良いコヒーレントなX線を利用する試みは、第3世代の放射光施設が登場してアンジュレータ光源の利用が始まった2000年頃から本格化が始まった[35]。アンジュレータ光源では小さな発光点からX線が放射されるために、この光源をX線の光軸上の遠くの点でみるとX線は球面波や平面波のようにみなすことが出来る。この場合、ビームの異なる位置の電場の位相は各時刻において揃っているため高い空間コヒーレンスを持つX線になる。実際にはビーム全体が空間的にコヒーレントになるわけではなく、ビーム内の2点間の距離が空間コヒーレンス長と呼ばれる有限の長さよりも短い場合のみ、その2つの部分はコヒーレントになる。この空間的にコヒーレントな部分のみをピンホールやスリットなどによって切り出すことによって干渉性の良いコヒーレントなX線の利用が可能になる。

アンジュレータの登場によって高強度のコヒーレントX線が利用できるようになり、X線のコヒーレンスを利用する様々な実験技術が進展した。コヒーレントなX線を試料に照射した際のスペックル[36]を利用する、コヒーレント回折顕微法(coherent diffraction imaging)[37–39]やX線光子相関分光法(X-ray photon correlation spectroscopy)[40–43]はその最たる例であり、今日では汎用的な手法として生体試料や実材料への応用が進みつつある。最近では、タイコグラフィィー[44–46]やホログラフィィー[47]などのコヒーレントX線を利用した新規のイメージング手法が開発されている。また、興味深いことにコヒーレントX線の科学の進展が、偏光電磁石光源やX線管球のよう

な低コヒーレント光源の利用にフィードバックされて近接場 X 線散乱法 (near field X-ray scattering) [48–50] やスペクトル追跡法 (speckle tracking) による位相イメージング [51–53] などといった新しい X 線コヒーレンスの利用法も開拓されつつある。

X 線のコヒーレンス利用が進展する一方、空間コヒーレンス評価法の開発も X 線光学の一分野として精力的な研究が行われている。アンジュレータ利用の初期においては、ヤングのダブルスリットの実験のような古典的な方法がコヒーレンス評価に用いられていた [54]。しかし、最近ではより洗練された方法が使われるようになってきた。例えば、プリズム [55]、複レンズ [56]、位相格子 [57,58]、ファイバー [59] などを利用した干渉法、近接場 X 線散乱を解析する方法 [60]、あるいは X 線領域の強度干渉法 [61,62] などである。これらの実験法の開発によって放射光の空間コヒーレンス特性が詳細かつ簡便に評価することが可能になってきつつある。

XFEL の光は、“伝搬によるコヒーレンス形成”を利用するアンジュレータからのコヒーレント X 線と本質的に異なる。前章で述べたように XFEL では特定の空間モードの光のみが選択的に増幅され [63]、それぞれの空間モードでは完全な空間コヒーレンスが確保されている。そのため複数の空間モードの足し合わせとして構成される XFEL の光は、光源自体が既に高いコヒーレンス性を有している。XFEL の空間コヒーレンスは、電子ビームのエミッタンスや発振に寄与するアンジュレータの長さなどのパラメータによってその特性が敏感に変化することが理論的に知られているが [27,28,64,65]、空間コヒーレンス度の実験による定量測定はこれまで行われていない。XFEL の空間コヒーレンス特性の計測と理解は、高い空間コヒーレンスを必要とする実験のデザインや解釈、X 線光学系の設計、高コヒーレンスな光源開発やコヒーレンスをもとにした電子ビーム診断、などを実現するために不可欠である。このように XFEL の空間コヒーレンスは XFEL の上流部の加速器・光源から下流部のビームライン・実験までのさまざまな要素に関係している光の根本的なパラメータの 1 つであり、その特性を精確に評価・理解することは重要な研究課題と言える。

しかし、XFEL の空間コヒーレンス評価は容易ではない。その理由は、これまでに開発されてきた放射光の空間コヒーレンス評価法を XFEL に応用することが難しいということにある。従来の評価法では、ビームの空間的に異なる部分をダブルスリットなどの干渉計を利用することで振幅干渉させる。そしてビーム強度の空間分布を仮定したうえで、干渉の様子を解析することで空間コヒーレンスを評価してきた。しかし、シングルパスで X 線を発振させる XFEL では、電子ビームの位置や方向の不安定性やショットごとの X 線パルス特性の違いのためにビーム強度の空間分布がパルスごとに

大きく異なる。放射光で開発されてきた空間コヒーレンス評価法をそのまま XFEL の光診断に適用すると大きなアーティファクトが生じる可能性があり、実際に軟 X 線や極端紫外線領域の FEL におけるダブルスリットの実験でビーム強度の空間分布の揺らぎがコヒーレンス評価に影響を与えていることが報告されている [66,67]。

本研究では、XFEL の空間コヒーレンスを測定する方法として大小大ききの異なる 2 つの球状粒子からの散乱波干渉を利用する新しい干渉法を開発し、拡張型ヤングの実験と名付けた [68]。本章では、この方法の原理と SACLA の空間コヒーレンスを評価した結果について述べる。

## 4.2 原理

拡張型ヤングの実験のポイントは次の 3 点にある。1 点目は、従来のヤングの実験で用いられているピンホールの代わりに、球状粒子 2 つを使うことにある。この球状粒子 2 つの散乱波の干渉の様子から空間コヒーレンスを評価する。2 点目のポイントは X 線を球状粒子の懸濁液に照射することである。懸濁液中の粒子の位置はランダムなので、さまざまな粒子間距離の散乱像を測定することができる。これによって、ビーム内のさまざまな 2 点間の空間コヒーレンス特性を評価することができるようになる。3 点目のポイントは、異なる大きさの球状粒子 2 つによる散乱像を空間コヒーレンス評価に用いることである。それぞれの粒子からの散乱 X 線の振幅の大きさは散乱角に応じてさまざまに変わる。そのため、2 粒子からの散乱波干渉によって生じる干渉縞のコントラスト (visibility) も散乱角によって大きく変わる。XFEL の時間コヒーレンス長が 2 つの粒子からの散乱波の経路差よりも十分に長い場合には、visibility はそれぞれの粒子からの散乱 X 線の振幅の大きさが等しいような散乱角で最大値を取り、その値は空間コヒーレンス度 (同時刻の複素コヒーレンス度の絶対値) と等しくなる。この性質を利用すると大小 2 つの球状粒子からの散乱像 1 枚から XFEL のビーム強度の空間分布の情報なしに空間コヒーレンス度を決定することが出来る。

この拡張型ヤングの実験における visibility と空間コヒーレンス度の関係を以下で導く。

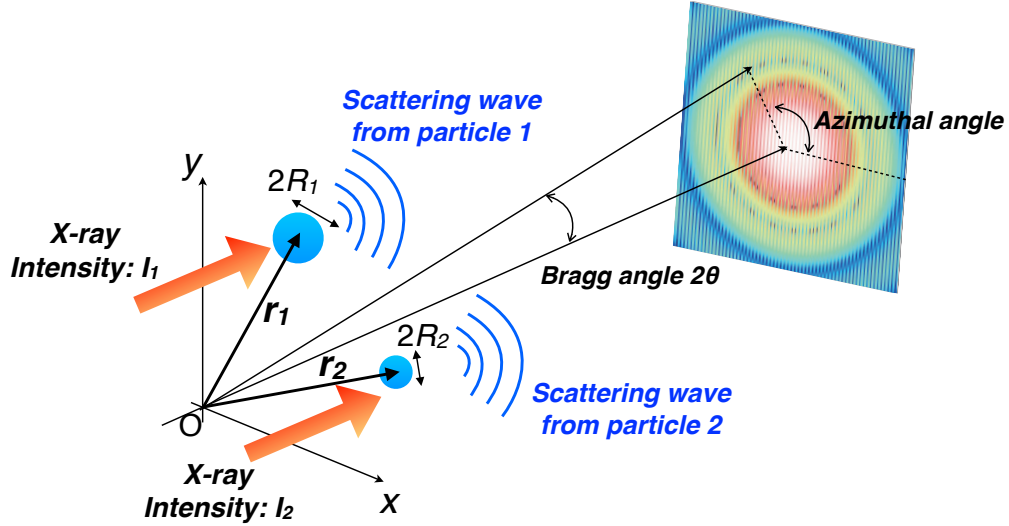


Figure 4.1

Schematic illustration of the extended Young's experiment.

#### 4.2.1 visibility と空間コヒーレンス度の関係

Fig. 4.1 のように中心波長  $\lambda$  の狭帯域の XFEL パルスが、半径  $R_1$  (位置  $\mathbf{r}_1$ )、 $R_2$  (位置  $\mathbf{r}_2$ ) の球状の 2 粒子に照射された場合の散乱強度について考える。それぞれの粒子位置における X 線強度が粒子サイズのスケールで一様であるとし (強度  $I_1, I_2$ )、さらに散乱角が十分小さく散乱強度が X 線の偏光方向に依存しないと仮定すると、散乱ベクトル  $\mathbf{q}$  ( $q = |\mathbf{q}| = 4\pi \sin \theta / \lambda$ ,  $2\theta$ : Bragg 角) 方向への散乱強度は

$$I_s(\mathbf{q}) = I_{s1}(q, R_1, I_1) + I_{s2}(q, R_2, I_2) + I_{s12}(q, R_1, R_2, I_1, I_2) |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; \tau)| \cdot \cos[\alpha_{12}(\tau) - \mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)] \quad (4.1)$$

となる。ここで  $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; \tau)$  および  $\alpha_{12}(\tau)$  は複素コヒーレンス度とその位相を表し、 $\tau$  は 2 粒子からの散乱波の経路長に対応した時間差である。また、 $I_{s1}, I_{s2}, I_{s12}$  は、半径  $R$  の球の体積  $V(R)$ 、球の形状因子  $F(q, R) = 3[\sin(qR) - qR \cos(qR)] / (qR)^3$  を用いて

$$I_{s1}(q, R_1, I_1) = [V(R_1)F(q, R_1)]^2 I_1 \quad (4.2)$$

$$I_{s2}(q, R_2, I_2) = [V(R_2)F(q, R_2)]^2 I_2 \quad (4.3)$$

$$I_{s12}(q, R_1, R_2, I_1, I_2) = 2V(R_1)V(R_2)F(q, R_1)F(q, R_2)(I_1 I_2)^{1/2} \quad (4.4)$$

と表される。式 (4.1) の右辺において第 1 項 ( $I_{s1}$ )、第 2 項 ( $I_{s2}$ ) はそれぞれ各粒子が単独で存在していた場合の散乱強度、第 3 項が 2 粒子の散乱波の干渉の効果を表している。



時間差  $\tau$  がコヒーレンス時間よりも十分に短い場合には、 $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; \tau)$  および  $\alpha_{12}(\tau)$  はそれぞれ  $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)$ ,  $\alpha_{12}(0)$  で近似できて [6]、式 (4.1) は

$$I_s(\mathbf{q}) = I_{s1}(q, R_1, I_1) + I_{s2}(q, R_2, I_2) + I_{s12}(q, R_1, R_2, I_1, I_2) |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)| \cos[\alpha_{12}(0) - \mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2)] \quad (4.5)$$

となる。2次元散乱像において散乱角  $2\theta$  を固定したまま方位角 (**Fig. 4.1** の azimuthal angle) を変えていくと式 (4.1) の  $\cos$  の位相が連続的に変わるため、散乱強度は最大値  $I_{max}$  および最小値  $I_{min}$ :

$$I_{max} = I_{s1}(q, R_1, I_1) + I_{s2}(q, R_2, I_2) + I_{s12}(q, R_1, R_2, I_1, I_2) |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)| \quad (4.6)$$

$$I_{min} = I_{s1}(q, R_1, I_1) + I_{s2}(q, R_2, I_2) - I_{s12}(q, R_1, R_2, I_1, I_2) |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)| \quad (4.7)$$

の2値の間で連続的に変化する。各  $q$  における visibility を

$$v(q) = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (4.8)$$

で定義すると、この式の右辺は式 (4.2), (4.3), (4.4) を用いることで

$$v(q) = 2 \left[ \eta(q) + \eta^{-1}(q) \right]^{-1} |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)| \quad (4.9)$$

と簡潔に表すことができる。ただし、

$$\eta(q, I_1, I_2) = \frac{V(R_1) |F(q, R_1)| \left( \frac{I_1}{I_2} \right)^{1/2}}{V(R_2) |F(q, R_2)|} \quad (4.10)$$

である。式 (4.9) において相加平均と相乗平均の大小関係から

$$v(q) \leq |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)| \quad (4.11)$$

なる visibility と空間コヒーレンス度との間に成り立つ重要な関係式が導かれる。ここで等号が成立するのは  $\eta(q) = 1$  の時である。実は以下で示すように、どのような  $I_1, I_2, R_1, R_2$  の値であっても  $\eta(q) = 1$  を満たす  $q$  が必ず存在する。すなわち、大きさの異なる2粒子からの散乱像において visibility の最大値は必ず空間コヒーレンス度と等しくなる。

$\eta(q) = 1$  を満たす  $q$  の存在を証明するために、まず、形状因子  $F(q, R) = 3[\sin(qR) - qR \cos(qR)] / (qR)^3$  について考えてみよう。**Fig. 4.2** は  $qR$  の関数として  $F(q, R)$  を表したものである。この図から分かるように  $F(q, R)$  は  $qR$  を増やしていくと0を中心に振動するため複数の  $F(q, R) = 0$  を満たす  $q$  が存在する。そのため  $R_1 \neq R_2$  のとき、式

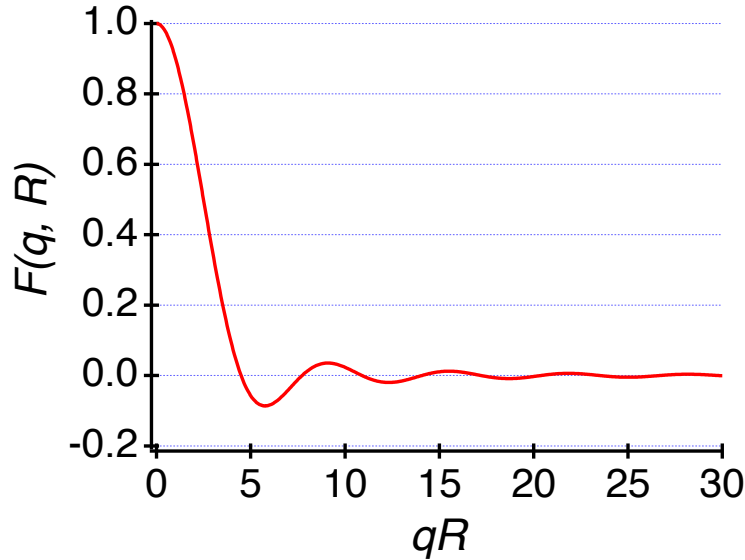


Figure 4.2

Dependence of the form factor  $F(q, R)$  on  $qR$ .

(4.10) で定義される  $\eta(q)$  は  $q$  を変化させていくと、0 以上のすべての値をとる。このことは、どのような  $I_1, I_2, R_1, R_2$  の値であっても  $\eta(q) = 1$  を満たす  $q$  が必ず存在し、この条件を満たす  $q$  において visibility は最大値  $|\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)|$  をとることを意味している。ここで重要なことは  $I_1, I_2$  (さらには  $R_1, R_2$ ) の情報がなくても、1 枚の散乱像を解析して visibility の最大値を求めれば空間コヒーレンス度が分かるということである。この特徴によって、シングルショットの散乱像から粒子位置での X 線強度の情報なしに空間コヒーレンスを評価することが可能になる。

参考のために  $R_1 = R_2$  の場合の visibility も考えてみよう。この場合、式 (4.9) と (4.10) から  $\eta(q) = (I_1/I_2)^{1/2}$  であり、

$$v(q) = 2 \left[ \left( \frac{I_1}{I_2} \right)^{1/2} + \left( \frac{I_2}{I_1} \right)^{1/2} \right]^{-1} |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)| \quad (4.12)$$

となる。この式から分かるように visibility は各  $q$  において等しく、また  $I_1 \neq I_2$  の場合は空間コヒーレンス度の絶対値よりも小さくなる。

### 4.2.2 visibility の $q$ 依存性

4.2.1 で大きさの異なる 2 粒子からの散乱像において visibility の最大値が空間コヒーレンス度と一致するという特徴について述べた。ここでは、visibility や  $\eta$  が  $q$  に対してどのような依存性を示すのかを  $R_1 = 75 \text{ nm}$ ,  $R_2 = 50 \text{ nm}$  の場合を例として示す。

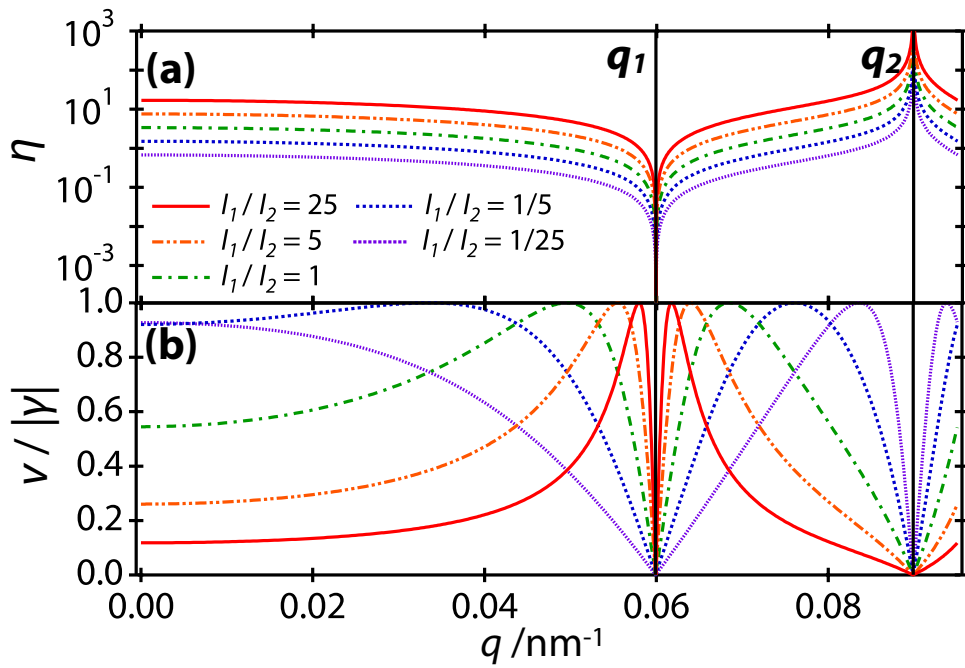
**Fig. 4.3 (a)** は様々な  $I_1$  と  $I_2$  の強度比 ( $I_1/I_2 = 1/25, 1/5, 1, 5, 25$ ) の場合の  $\eta$  の  $q$  依存性を示したものである。前節でも述べたように  $\eta$  はどのような強度比  $I_1/I_2$  のもとでも、 $q$  を変化させていくと 0 以上のあらゆる値をとる。図中の  $q_1$  および  $q_2$  はそれぞれ  $\eta(q_1) = 0, \eta(q_2) = +\infty$  となる散乱ベクトルであり、これらは  $F(q_1, R_1) = 0, F(q_2, R_2) = 0$  を満たす  $q$  に対応している。**Fig. 4.3 (b)** は式 (4.9) から計算した visibility の  $q$  依存性を示したものである。ただし、一般化のために visibility を空間コヒーレンス度  $|\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)|$  で規格化したものを縦軸にしている。 $q$  が大きくなるように変化させていくと、 $I_1$  と  $I_2$  の強度比に関わらず visibility は明瞭なピーク構造を示し、最大値  $|\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)|$  をとる。強度比の違いによって visibility が最大となる  $q$  が異なっているが、これは **Fig. 4.3 (a)** から分かるように  $\eta(q) = 1$  となる  $q$  の値が  $I_1$  と  $I_2$  の強度比によって異なるためである。

## 4.3 実験

以上の原理に基づいて、拡張型ヤングの実験によって SACLA から出射された光子エネルギー 6 keV の XFEL の空間コヒーレンスの評価を行った。2 種類の粒径の金コロイド溶液の混合液を試料とし、XFEL を集光して光子密度を高めることで明瞭な干渉縞を持つ 2 粒子によるシングルショット散乱像を測定した。この節では実験の詳細について述べる。

### 4.3.1 XFEL の光源パラメータ

空間コヒーレンスを評価した XFEL の光源パラメータとその際の電子ビームのパラメータは **Table 4.1** のとおりである。ただし、パルスエネルギーの項目における  $\pm$  はショットごとの揺らぎを意味している。



**Figure 4.3**

Dependences of (a)  $\eta$  and (b) visibility on the scattering vector  $q$  for the two spherical particles of radii of  $R_1 = 75$  nm and  $R_2 = 50$  nm for the case when  $I_1/I_2 = 1/25, 1/5, 1, 5, 25$ .

**Table 4.1**  
Parameters of XFEL and electron beam.

Photon energy	6 keV
Monochromaticity ( $\Delta E/E$ )	$8 \times 10^{-3}$
Pulse energy	$300 \mu\text{J} \pm 40 \mu\text{J}$
Electron beam energy	6.1 GeV
$K$ value of undulator	2.1
Repetition rate	30 Hz

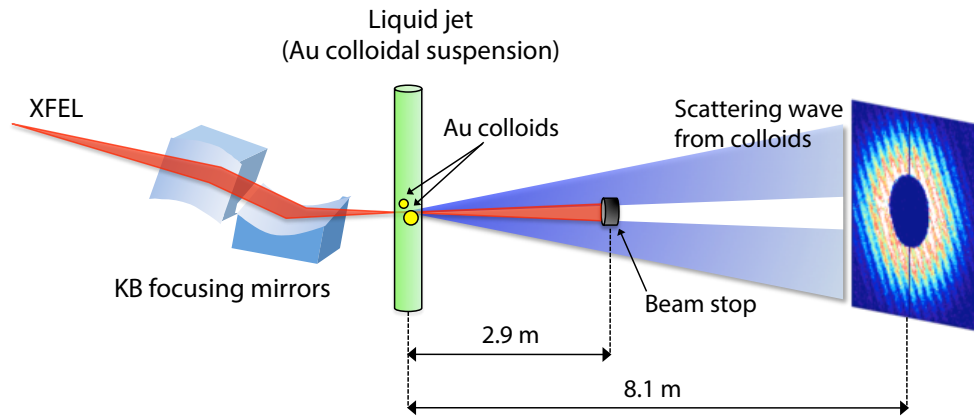
#### 4.3.2 試料の作製

拡張型ヤングの実験では、シングルショットの散乱像において明瞭な干涉縞が認識できる程度の光子数が検出される必要がある。そのため、出来る限り強い散乱を出す試料を利用することが望ましい。一方で、粒子サイズは XFEL のビームサイズと比較して十分小さいことが必要である。

この2つの条件を勘案して今回の実験では、粒子半径 50 nm と 75 nm の球状の金粒子を散乱体として用いた。具体的には、粒子半径 50 nm と 75 nm の金コロイド溶液 (BBI solutions 社製) をそれぞれ純水で希釈したあとに混合し、粒子数密度が共に  $1 \times 10^9 \text{ particles ml}^{-1}$  となるように調整したものを試料として用いた。

#### 4.3.3 実験配置と実験手順

実験配置の概略図を **Fig. 4.4** に示す。SACLA から出射された XFEL を Kirkpatrick-Baez (KB) 配置の一組のミラー [69] によって半値幅  $1.8 \mu\text{m}$  (水平)  $\times$   $1.3 \mu\text{m}$  (垂直) のサイズに集光した。この集光点に金コロイドの混合溶液試料を直径  $7 \mu\text{m}$  の液体ジェットによって導入し、溶液試料からの X 線散乱を 8.1 m 下流のデュアルタイプの Multi-Port Charge-Coupled Device (MPCCD) 検出器 [70] によってショット毎に約 40 万枚測定した。ここで、液体ジェットは SACLA において小角散乱実験やコヒーレント回折顕微法の実験に用いられている Multiple Application X-ray Imaging Chamber (MAXIC) [71] の中に導入して、その周りを真空に保つことで粒子以外からの散乱 X 線を低減させた。また、試料直前の 2 組の四象限スリットを配置することで試料よりも上流からの迷光



**Figure 4.4**

Schematic illustration of the experimental setup for the transverse coherence measurement at SACLA.

が検出器に入射することを防いだ。

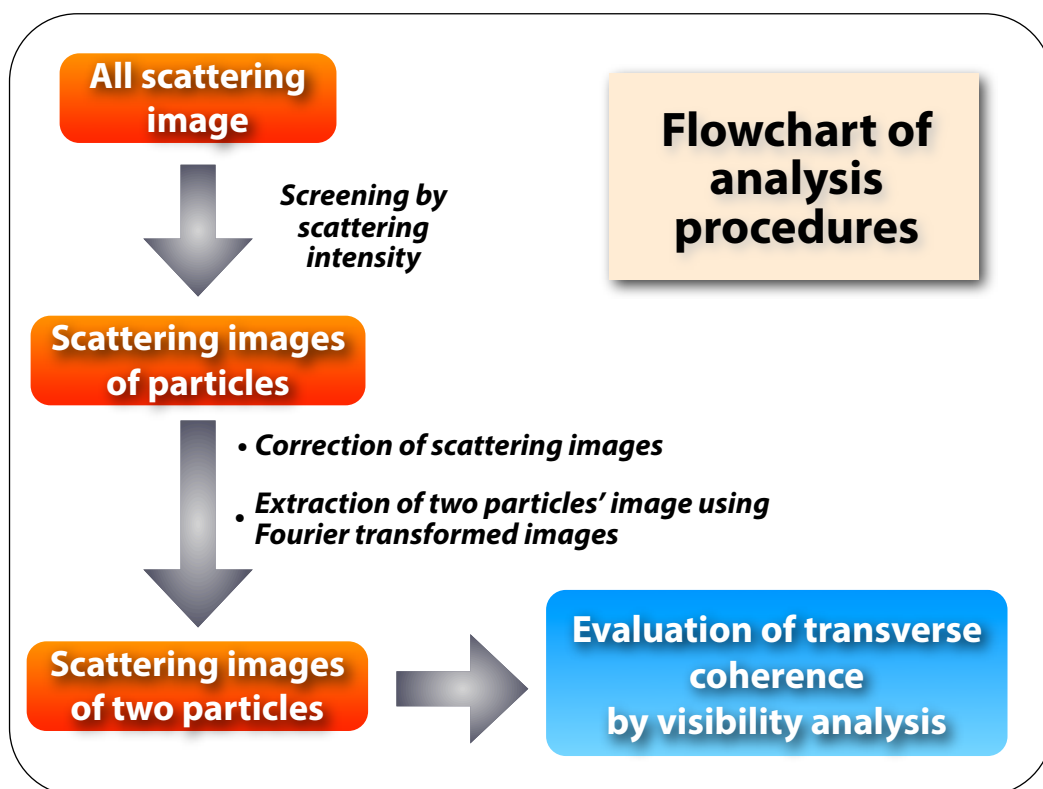
測定した散乱像に対応する散乱ベクトル  $q$  の範囲は、カメラ長、ビームストップの大きさ、検出器の大きさによって決まっており、 $0.020 < q < 0.13 \text{ nm}^{-1}$  であった。しかし、visibility の解析には十分な散乱強度を確保できる  $0.020 < q < 0.055 \text{ nm}^{-1}$  の領域のみを使用した。

また、今回の実験セットアップでは2粒子からの散乱波の経路長の差は、最大2 nm 程度である。この長さは、XFEL の時間コヒーレンス長 ( $\sim 25 \text{ nm}$ ) よりも十分短く、 $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; \tau)$  と  $\alpha_{12}(\tau)$  はそれぞれ  $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2; 0)$ ,  $\alpha_{12}(0)$  で近似できるため、4.2.1 で示したように visibility の最大値は空間コヒーレンス度と一致する。

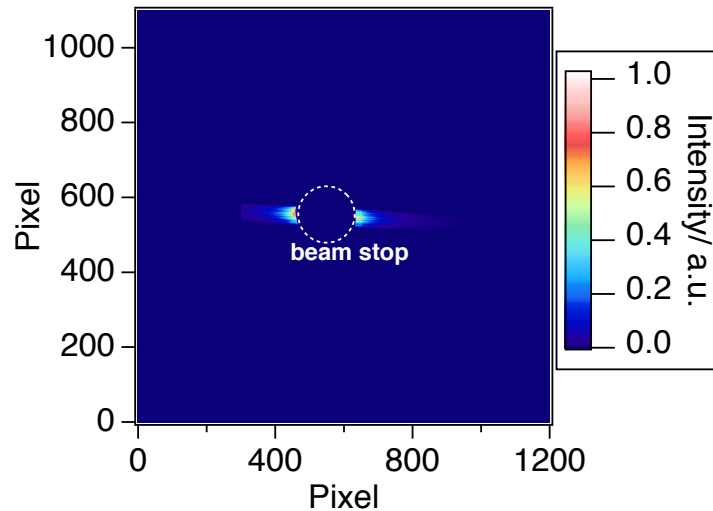
## 4.4 結果と考察

### 4.4.1 2粒子からの散乱像の抽出

拡張型ヤングの実験では大きさの異なる2つの粒子からの散乱像を空間コヒーレンスの評価に用いる。しかし、実際の実験においては所望の条件の散乱像だけではなく XFEL のビームの中に粒子が入っていない場合や3つ以上の粒子が含まれる場合の散乱像も測定される。そこで、得られた散乱像から **Fig. 4.5** のような流れで、2粒子からの散乱像の抽出および visibility の解析を行って XFEL の空間コヒーレンス度を評価した。個々の項目について以下で説明する。

**Figure 4.5**

Flowchart of analysis procedures for extracting scattering images from the two particles and evaluating the transverse coherence of the XFEL pulses.



**Figure 4.6**

A typical scattering image of the liquid jet without colloidal particles. The streak-like scattering along the horizontal direction is due to the total reflections from the sides of the jet.

#### 強度和によるスクリーニング

今回の実験で測定した散乱像では、金粒子による散乱以外に液体ジェットの側面からの全反射光が検出器に入射する。例として金粒子がXFELビームに含まれていない場合の散乱像を **Fig. 4.6** に示す。この全反射光の強さは金粒子からの散乱強度と同程度である。そこで、全反射光が visibility の評価に影響を与えないように、以下の各  $q$  における visibility の評価においては全反射光が入射しているピクセルは解析に用いないようにした。

散乱像解析の第一段階として測定したすべての散乱像から1つ以上の金粒子がXFELのビームの中に含まれている場合の散乱像を次のように抽出した。まず、各散乱像において検出器のバックグラウンド画像を引いたあとに、液体ジェットの壁面による全反射が顕著ではない領域のピクセル強度の総和を計算した。そして、この強度和が設定したしきい値以上のものを金粒子による散乱像として抽出した。この手順によって、測定した全ての散乱像の枚数の5%程度が金粒子からの散乱像として抽出された。



### 散乱像の補正

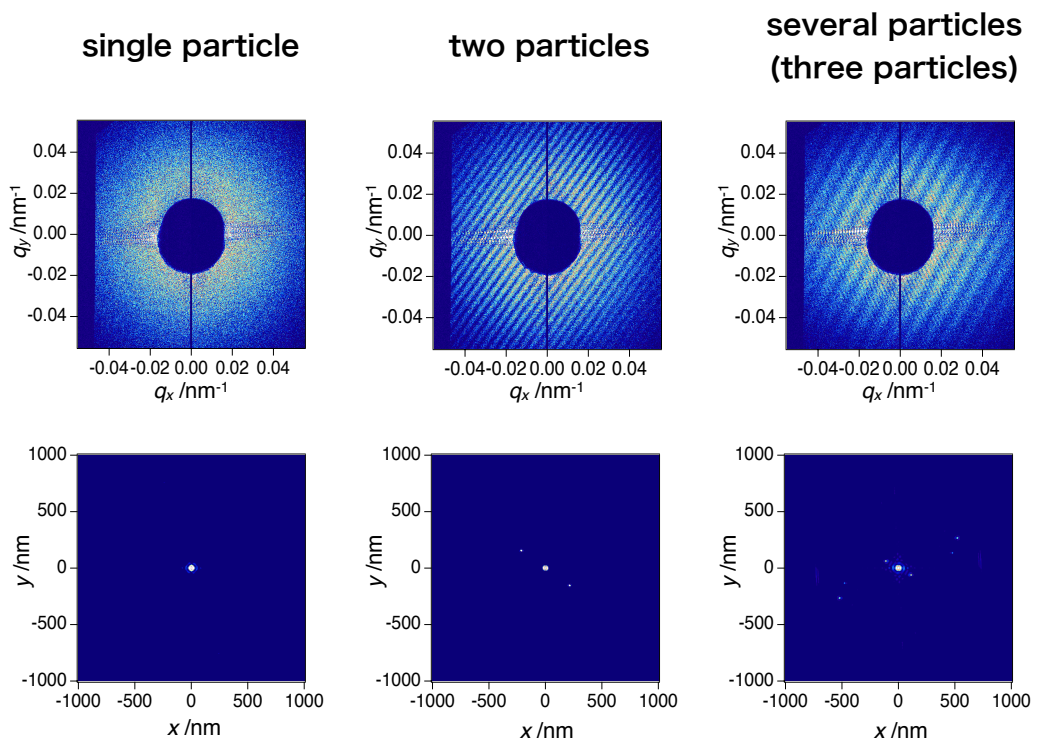
抽出された金粒子からの散乱像それぞれについて液体ジェット的全反射光由来の散乱強度を以下のようにして除去した。まず、金コロイドを含まない純水だけの液体ジェットによる散乱像の平均および、そのときの平均入射光強度  $E_A$  を測定した。今回の実験では、集光ビームは各ショットにおいて液体ジェットのほぼ同一の部分にあたっているため、液体ジェット的全反射光由来の散乱強度は入射光強度に比例すると考えられる。そこで、金粒子からの散乱像において、各ショットの入射光強度を  $E_A$  で規格化し、この値を純水だけの液体ジェットによる平均散乱像に掛け合わせることで、全反射光由来の散乱強度をショットごとに見積もった。見積もられた全反射散乱強度を金粒子からの散乱像から引くことで、全反射光由来の散乱強度を補正して以下の解析に用いた。

### フーリエ変換像を利用した 2 粒子からの散乱像の抽出

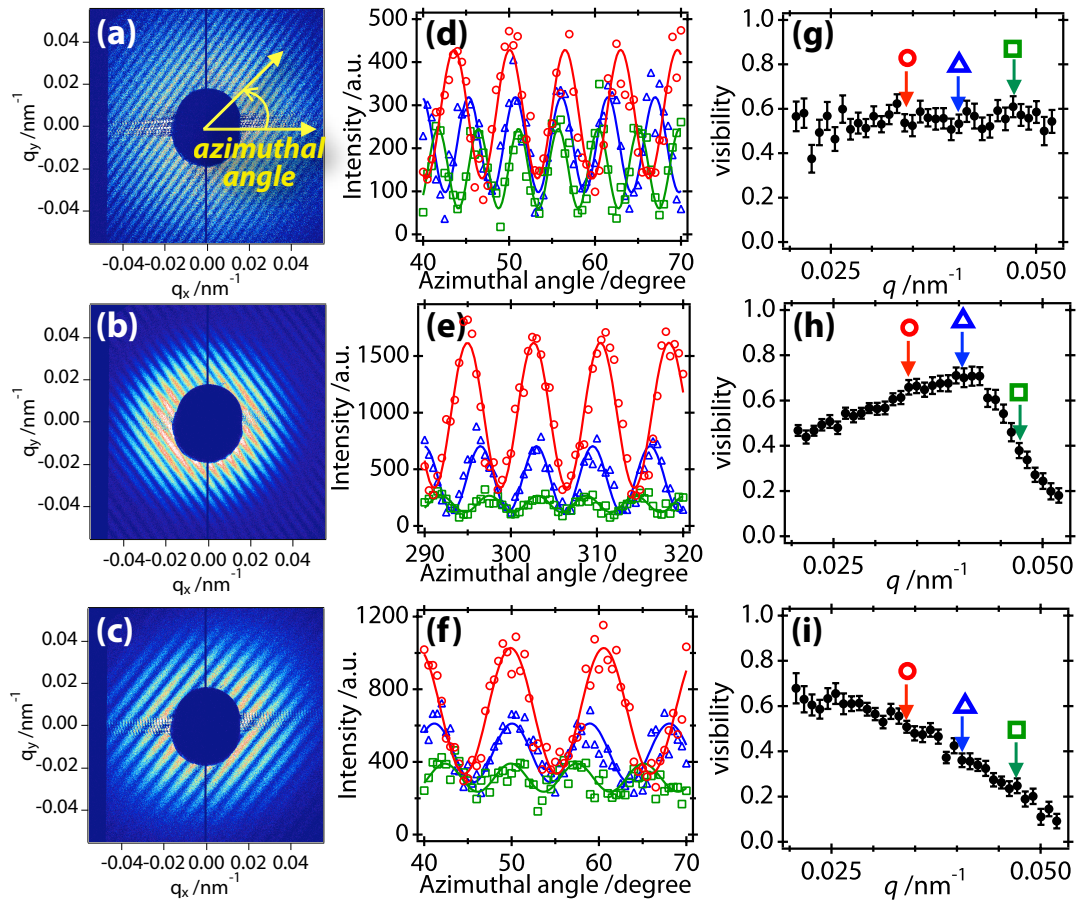
補正後の 2 次元散乱像をフーリエ変換することで、金粒子からの散乱像のうち 2 粒子からの散乱像の選別を行った。これは、結晶構造解析におけるパターンソン解析に相当しており、複数の粒子が XFEL のビーム内に含まれている場合には粒子間の相対的位置に対応したピークがフーリエ変換像に現れる。

**Fig. 4.7** の上段の 3 つの図はそれぞれ、ビーム内に 1 つ、2 つ、複数の金粒子が含まれる場合の散乱像の例である。そして、下段の図はそれぞれの散乱像のフーリエ変換像を示している。XFEL が 1 つの粒子のみに照射されている場合には、フーリエ変換像では  $x = 0, y = 0$  の近傍のみにピークが現れる。2 つの粒子に XFEL が照射されている場合にはフーリエ変換像において、 $x = 0, y = 0$  の近傍のピーク以外に原点対象な一対のピークが現れる。一般に  $n$  個の粒子がビームに照射されている場合には  $n(n-1)/2$  対のピークが現れるので、**Fig. 4.7** の上段の右端の散乱像は 3 つの粒子が XFEL に照射されている場合に相当している。

金粒子からの散乱像のうち、そのフーリエ変換像において  $x = 0, y = 0$  の近傍のピーク以外に一対のピークを持つものを選ぶことによって、690 枚の 2 粒子由来の散乱像を抽出した。

**Figure 4.7**

Typical scattering images of the colloidal particle(s) (top) and their Fourier transformed images (bottom).



**Figure 4.8**

Examples of scattering images of two particles and the results of the visibility analysis. (a)-(c) Scattering images of two particles. (d)-(f) Intensities along azimuthal directions at  $q = 0.034$  (red circles),  $0.041$  (blue triangles),  $0.047 \text{ nm}^{-1}$  (green squares) for (a)-(c). The solid curves represent the fitted results. (g)-(i) Dependence of the visibility on  $q$ . The red, blue, green markers represent the same  $q$  as (d)-(f).

#### 4.4.2 visibility 解析による空間コヒーレンス度の評価

抽出した2粒子からの散乱像は、(i) 同じ大きさの粒子によるもの、(ii) 異なる大きさの粒子によるもの、の2通りの場合がある。ここで (i) の場合には、visibility は散乱ベクトル  $q$  に依存せず一定の値をとる。一方で、(ii) の場合には visibility は  $q$  に依存して変化するので、(i) と (ii) は visibility の  $q$  に対する振る舞い方から明確に区別することが出来る。

2粒子からの散乱像の典型的な例とその visibility 解析の結果を **Fig. 4.8** に示す。visibility の解析では、各  $q$  において方位角の範囲を 30 度として、出来るだけ多くの干渉縞を含むようにその領域を決定した。**Fig. 4.8 (d)-(f)** はそれぞれ、**Fig. 4.8 (a)-(c)** の  $q = 0.034$  (赤丸),  $0.041$  (青三角),  $0.047 \text{ nm}^{-1}$  (緑四角) における方位角方向の散乱強度のプロファイルを示したものである。それぞれの  $q$  における散乱強度のプロファイルを式 (4.1) によってフィッティングすることで各  $q$  における visibility を決定した。このフィッティング結果は **Fig. 4.8 (d)-(f)** の実線のようになり、実験結果をよく説明出来ている。

**Fig. 4.8 (a)-(c)** の散乱像それぞれの visibility の  $q$  依存性は、**Fig. 4.8 (g)-(i)** のようになった (図中のマーカーは **Fig. 4.8** の中列と同じ  $q$  に対応している)。**Fig. 4.8 (g)** を見ると、visibility は  $q$  の大きさによらずほとんど一定値をとっている。このことは XFEL が照射されている2粒子の大きさがほとんど同じであることを意味している。一方で、**Fig. 4.8 (h)** や **(i)** では visibility は  $q$  に依存して変化している。この振る舞いは、2粒子の大きさが異なっていて拡張型ヤングの実験の条件を満たしていることを意味している。**Fig. 4.8 (h)** においては明瞭な visibility のピーク構造が見られており、このピーク値が空間コヒーレンス度である。しかし、**Fig. 4.8 (i)** では visibility が  $q$  に対して単調に減少している。このことは、visibility ピークに対応した  $q$  の値が、今回の実験で visibility を解析した  $0.02 < q < 0.05 \text{ nm}^{-1}$  の範囲に無いということの意味している。この visibility が  $q$  に関して単調減少するという振る舞いは **Fig. 4.3** を参考にすると、2粒子の位置における X 線強度の大きさが極端に異なっていることに起因していると考えられる ( $I_1 \ll I_2$ )。

すべての2粒子からの散乱像を解析した結果、**Fig. 4.8 (h)** のような明瞭な visibility のピーク構造を示すものが41枚得られた。それぞれの散乱像において **Fig. 4.8 (d)-(f)** で例示した散乱強度の方位角依存性のフィッティングによって、XFEL の光軸に垂直な方向の粒子間距離が分かる (もちろん 4.4.2 の散乱像のフーリエ変換からも粒子間

距離が分かる)。得られた 41 枚の明瞭な visibility のピークを示す散乱像から、XFEL の空間コヒーレンス度をビーム内部の 2 点間の垂直方向・水平方向の距離 ( $d_x, d_y$ ) の関数として決定した。

**Fig. 4.9 (a)** の丸印が拡張型ヤングの実験から求めた垂直・水平方向の距離の関数としての空間コヒーレンス度  $|\gamma(d_x, d_y; 0)|$  である。丸印の 1 つ 1 つが、それぞれ 1 枚の散乱像に対応している。 $d_x, d_y$  が小さくなるにつれて空間コヒーレンス度は大きくなっていき、完全コヒーレントな場合の空間コヒーレンス度である 1 に近づいていく傾向が見られる。次に、水平・垂直方向の空間コヒーレンス長  $l_x, l_y$  を、実験から求めた空間コヒーレンス度  $|\gamma(d_x, d_y; 0)|$  を

$$|\gamma(d_x, d_y; 0)| = \exp\left(-\frac{d_x^2}{2l_x^2} - \frac{d_y^2}{2l_y^2}\right) \quad (4.13)$$

によってフィッティングすることで決定した。**Fig. 4.9 (a)** の曲面がフィッティングの結果を示しており、 $l_x, l_y$  はそれぞれ  $1.7 \pm 0.2 \mu\text{m}$ ,  $1.3 \pm 0.1 \mu\text{m}$  と求められた。

これらの実験の結果、集光ビームサイズ (水平方向  $s_x = 1.8 \mu\text{m}$ , 垂直方向  $s_y = 1.3 \mu\text{m}$ ) と XFEL の空間コヒーレンス長がほとんど等しいことが分かった。このことは、XFEL がビーム全体に渡って高い空間コヒーレンスを持っているということを意味している。さらに集光ビームサイズと空間コヒーレンス長の比が水平・垂直方向でほとんど等しいという結果が得られた (水平: 0.9, 垂直: 1.0)。非集光の XFEL は等方的なビームプロファイルを持つため [34]、実験の結果は非集光の XFEL がビーム光軸に垂直な平面において等方的な空間コヒーレンス特性をもっていることを示唆している。

また、参考のために同じ大きさの 2 粒子からの散乱像の visibility と異なる大きさの 2 粒子からの求めた空間コヒーレンス度との比較を行った。**Fig. 4.8 (g)** で示したように同じ大きさの 2 粒子からの散乱像の visibility は  $q$  に依らずほぼ一定値をとる。このような visibility の  $q$  依存性を示す散乱像を同じ大きさの 2 粒子からの散乱像として抽出した。これらの散乱像における visibility 解析では、1 粒子が単独で存在している場合の各  $q$  における散乱強度が分かる。そして、散乱強度の  $q$  依存性から 2 粒子の半径が 50 nm なのか 75 nm なのかを区別することが出来る。**Fig. 4.9 (b)** は、異なる大きさの 2 粒子から求めた空間コヒーレンス度および同じ大きさの粒子からの散乱像の visibility を、ビームサイズで規格化した粒子間距離  $d_n = \sqrt{(d_x/s_x)^2 + (d_y/s_y)^2}$  に対してプロットしたものである (半径 50 nm, 75 nm の 2 粒子の visibility を  $v_s, v_l$  とした)。ただし、 $v_s, v_l$  はそれぞれ散乱像の  $0.02 < q < 0.055 \text{ nm}^{-1}$  の範囲の visibility の平均値として算出した。

それぞれの  $d_n$  において  $v_s$  や  $v_l$  は空間コヒーレンス度と比較して小さな値になり、さらに、ショットごとに大小さまざまな値をとる。これは、式 (4.12) から分かるように、粒子位置の X 線強度によって visibility が大きく変わるためである。

#### 4.4.3 空間モード数の見積もり

最後に、拡張型ヤングの実験によって測定した空間コヒーレンス特性から XFEL の空間モード数の見積もりを行った。自由電子レーザーの理論から、レーザー発振の飽和長よりも十分アンジュレータ長が長い場合には、空間モード数は total degree of coherence,  $\zeta$ , の逆数と一致するという性質があることが知られている [27, 28]。ここで  $\zeta$  は、

$$\zeta = \frac{\iint |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)| I(\mathbf{r}_1) I(\mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2}{\left[ \int I(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right]^2} \quad (4.14)$$

で定義される。ただし  $\mathbf{r}$  は、XFEL の光軸に垂直な平面における位置ベクトルを表し、 $I(\mathbf{r})$  は位置  $\mathbf{r}$  における XFEL の強度である。

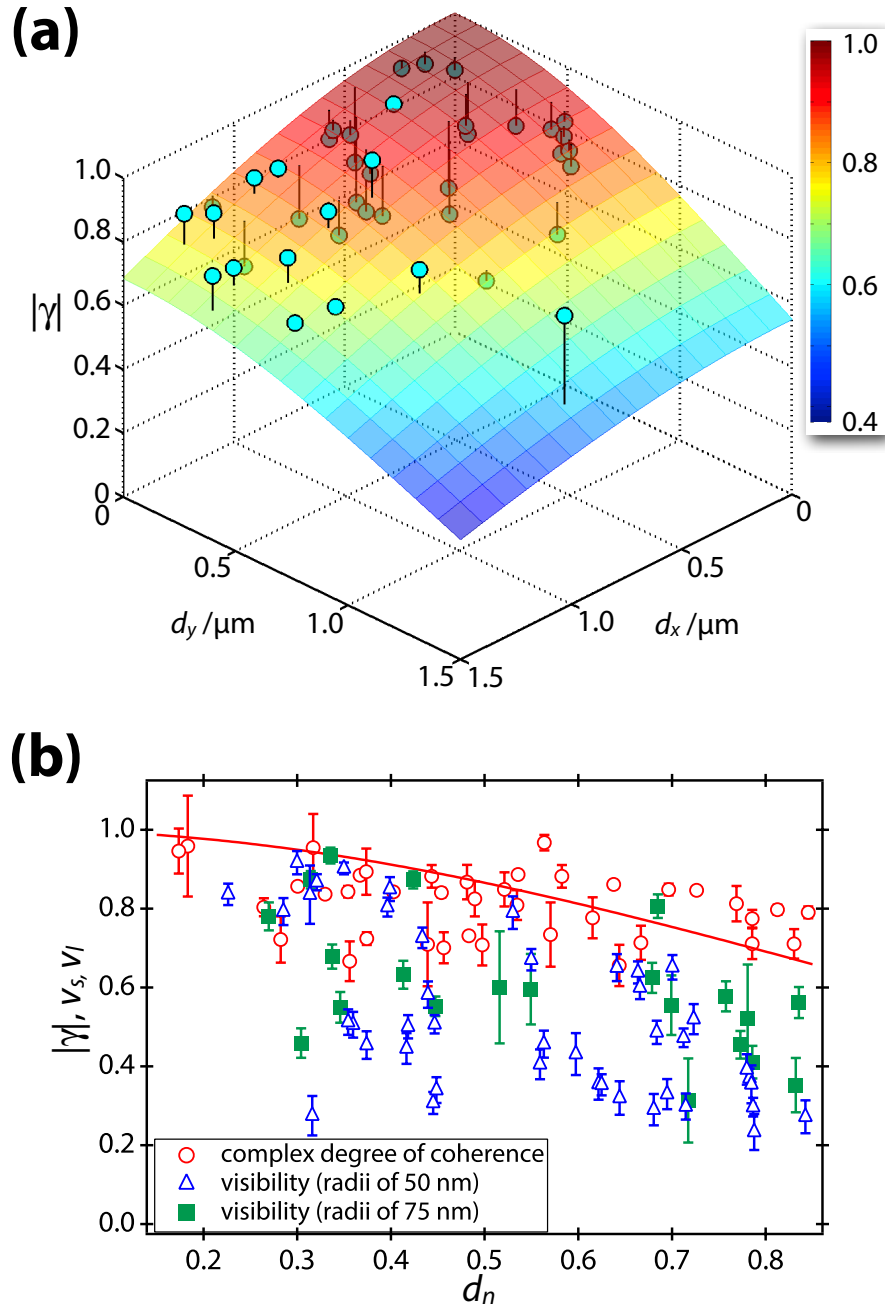
XFEL の集光ビームプロファイルが半値幅  $s_x = 1.8 \mu\text{m}$  (水平),  $s_y = 1.3 \mu\text{m}$  (垂直) のガウシアン関数になると仮定し、さらに空間コヒーレンス度は XFEL 内の 2 点間の距離の関数として式 (4.13) のように表されるとする。この仮定の下で式 (4.14) から  $\zeta$  を計算した結果、 $\zeta = 0.57$  となった。この逆数を計算することで、SACLA からの 6 keV の XFEL の空間モード数  $M$  が  $M = 1.8$  と見積もられた。

空間モードの数が明らかに 1 よりも大きいことから、SACLA からの XFEL において高次の空間モードが X 線強度に寄与していることが明らかになった。

## 4.5 結論と今後の展望

本研究では XFEL の空間コヒーレンス特性を評価するために、大きさの異なる 2 つの粒子からの散乱像を利用する、拡張型ヤングの実験を開発した。この方法は、X 線強度の空間分布の情報を必要としないため、ショットごとに X 線強度の空間分布が異なる XFEL の光の空間コヒーレンス評価が可能になる。

拡張型ヤングの実験を SACLA からの光子エネルギー 6 keV の集光 XFEL に応用した結果、以下の 3 つの結果が得られた:



**Figure 4.9**

(a) A two-dimensional profile of the complex degree of coherence determined with the scattering patterns from two non-identical colloidal particles (blue dots). The surface plot represents the result fitted by a two-dimensional Gaussian function (b) The complex degree of coherence (red circles) and the visibility of the interference fringes originating from two particles with similar radii of  $\sim 50$  nm (blue triangles) and  $\sim 75$  nm (green squares) as a function of normalized inter-particle distance  $d_n$ . The red curve represents a Gaussian fit to the dependence of the complex degree of coherence on  $d_n$ .

- 空間コヒーレンス長と XFEL のビームサイズがほとんど等しく、XFEL がビーム全体に渡って可干渉であることが分かった。
- 空間コヒーレンス長と集光 XFEL のビームサイズの比が水平・垂直方向でほとんど等しいため、非集光の XFEL は等方的な空間コヒーレンス特性を持つことが推測された。
- 測定した空間コヒーレンス度から空間モード数を評価した結果、XFEL は単一の空間モードで構成されるのではなく、高次の空間モードが XFEL の強度に寄与していることが分かった。

以上の結果は、XFEL における初めての定量的な複素コヒーレンス度の研究であり、本研究で開発した拡張型ヤングの実験は XFEL の質を評価する新しい“ものさし”であるといえる。

最後に拡張型ヤングの実験に関する今後の展望について述べる。拡張型ヤングの実験の1つの応用展開は、ナノ集光した XFEL の空間コヒーレンス評価である。XFEL のナノ集光技術は、蛋白質1分子に XFEL を照射してその分子構造を決定するという1分子構造解析を実現するためのキーテクノロジーとして現在開発が進められている。この実験において、XFEL の集光サイズは測定する対象と同程度であるため XFEL は試料全体に渡っては完全可干渉ではない。このような部分コヒーレントな X 線を利用して構造解析を行うためには空間コヒーレンスの情報が必要になる。本章で述べた拡張型ヤングの実験は、集光サイズよりも小さな球状粒子を使うことによって、ナノビームの空間コヒーレンスにも応用できる。

拡張型ヤングの実験の他の応用先は、XFEL の運転へのフィードバックである。大強度や短いパルス幅といった XFEL の他の特徴と比べて、高い空間コヒーレンスという特徴についてはこれまで定量的な測定が行われて来なかった。様々な電子加速器の運転条件や発振に寄与するアンジュレータの台数を変えながら XFEL のコヒーレンスを評価することで、電子ビームの質や XFEL 物理の理解を促進することができ、高コヒーレントな XFEL 光源の実現へと繋がることが期待される。

最後に、拡張型ヤングの実験自体の改良も今後の研究テーマとして紹介したい。今回の実験では、1枚の散乱像から XFEL 中の特定の2点間の空間コヒーレンスを評価した。実験から導いた XFEL の空間コヒーレンス特性は多数の散乱像を利用して評価したものであり、いわばアンサンブル平均としての空間コヒーレンス特性といえる。しかし、電子密度の微妙な揺らぎを種として光の増幅がスタートする XFEL 発振のメ



カニズムを考えてみると、XFELの空間コヒーレンス特性はショットごとに変わり得る。さらに、空間コヒーレンス度はビーム内の2点の位置の関数として表わされるものであるが、拡張型ヤングの実験では空間コヒーレンス度が2粒子間の距離によって決まることを暗に仮定している。この仮定は、少数の空間モードから成り立つXFELの光においては必ずしも成り立つとは限らない。拡張型ヤングの実験を改良してシングルショットでビーム内の任意の2点間の空間コヒーレンス特性を導き出す方法を作ること、XFEL科学やコヒーレントX線の利活用を進展させるために、興味深い研究テーマと言える。

## 第5章 X線強度干渉法による電子バンチの 時間構造評価

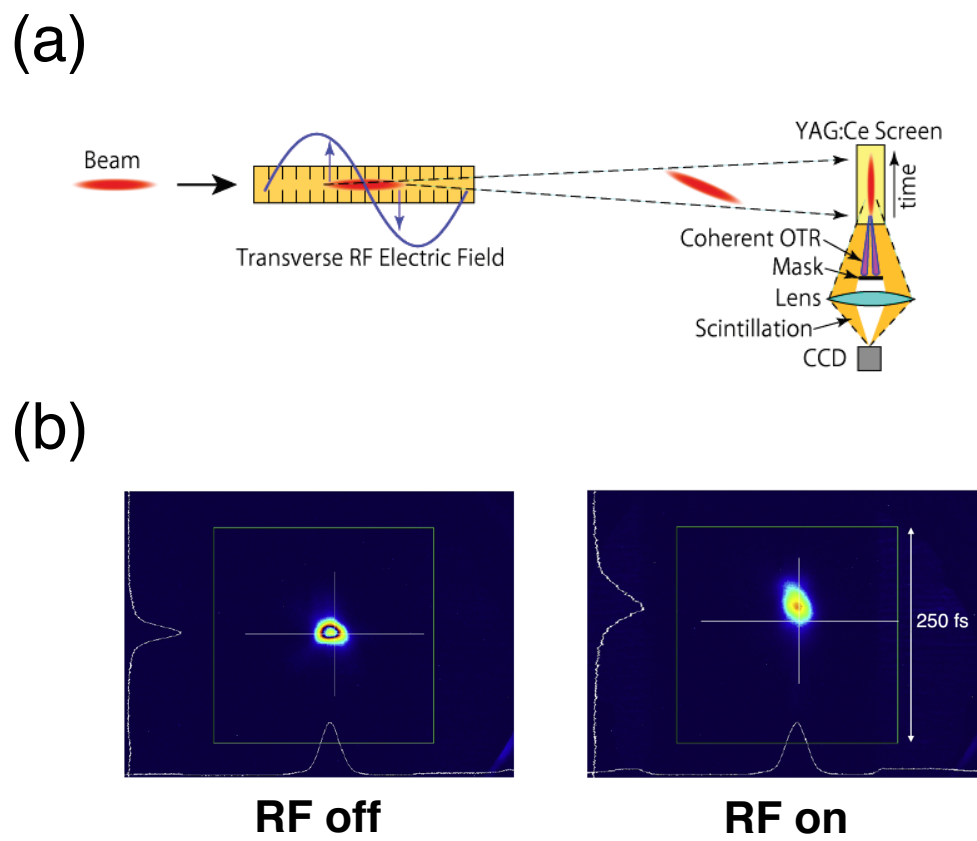
本章では、XFELを発振する電子ビームのフェムト秒の時間構造を評価するための“X線強度干渉法”の概要および、この方法を使ってSACLAの電子ビームを評価した結果について述べる。

### 5.1 背景

XFELの特徴であるフェムト秒の短いパルス幅は、アンジュレータを通過する際の電子バンチの短い時間幅に起因している。しかし、自己増幅自発放射方式によってレーザー発振を実現するXFELでは、電子バンチのすべてがX線レーザー発振に寄与しているわけではなく、電子が空間的に集まった電流値が高い部分のみが選択的にX線レーザーを発振する。これはXFEL発振過程におけるゲイン長が、電流値が高いほど短くなるためである。

電子バンチの時間構造の精確な測定とそれに基づいたXFELのパルス幅の評価は、XFELの利用実験にとって有益な情報となる。例えば、光学レーザーポンプ・XFELプローブの実験を考えると、測定する現象の特徴的な時間スケールよりXFELのパルス幅は短くなければならない。また、コヒーレント回折顕微鏡の実験においては、XFELのパルス幅はX線による試料へのダメージの程度を左右する重要な実験パラメータである。さらに、電子ビームの時間構造の理解は加速器開発へのフィードバックという観点からも非常に重要である。

XFEL施設においては、RFデフレクター(Radio Frequency deflector)と呼ばれる高周波加速管[72–76]が電子バンチの時間構造評価のために定常的に用いられている。例として、SACLAのRFデフレクターの構成をFig. 5.1 (a)に示す。この装置はSACLAの最下流のバンチコンプレッサーの下流側に設置されたものである。RFデフレクターは、電子バンチの進行方向に対して垂直方向に加速電磁場を発生させる。このとき電

**Figure 5.1**

(a) Schematic illustration of the RF-deflector in SACLA. (b) Typical screen images for RF-on and RF-off [72–74].

電子バンチの時間的な重心を高周波のゼロクロス位相(電磁場の節)に乗せることで、各電子が重心からの距離に比例した大きさの進行方向横向き力を受けるようになる。また、バンチの前方部と後方部では電磁場から受ける力の向きが逆になる。このようにして、それぞれの電子は進行方向に垂直な方向に重心からのずれに比例した速度を持つようになる。デフレクター後方に設置したスクリーンで電子ビームのプロファイルを測定することで、電子バンチの実時間構造を測定することが出来る。

**Fig. 5.1 (b)**は、高周波電場によって電子バンチを掃引した場合(右図)および、掃引していない場合(左図)のスクリーンでの電子ビームプロファイルの例である [74]。右図で上下方向がデフレクターによる電子バンチの掃引方向に対応しており、このプロファイルを左右方向に積算した1次元プロファイル(図の左端のグラフ)が電子バンチの時間構造に対応している。装置の時間分解能は、電子ビームプロファイルの広がりなどによって決まっており、およそ 10 fs 程度である。

電子ビームから発生された XFEL に目を向けると、最近では 10 fs を切る時間幅の X 線パルスが利用できるようになってきている [76, 77]。この XFEL 発振の状況下では、発振に寄与している電子ビームの時間幅が RF デフレクターの時間分解能と同程度またはそれ以下である。さらには、アト秒の FEL を発振させるための方法論も現在盛んに研究されている [78–81]。このような現状の中で、電子バンチの時間構造を 10 fs を切るような分解能で求める方法が、XFEL の加速器技術の進展のために求められている。

本研究では Hanbury Brown と Twiss によって発見された強度干渉現象 [82, 83] を利用した電子ビームの時間構造評価法を開発した。そして、この方法を RF デフレクターによる電子バンチの実時間構造測定の結果と組み合わせることによって SACLA の電子ビーム構造を 10 fs を切る分解能で決定することを実現した。以下で、強度干渉を利用した電子バンチ長測定の原理と実験結果について述べる。

## 5.2 原理

### 5.2.1 熱的な光における強度干渉

相関を持たない多数の独立した発光源から放射された波の重ねあわせとして表されるような光について考えてみる。このような光は統計光学において「熱的な光」(thermal light)と呼ばれており [7]、太陽光や電球の光、そして放射光がその例である。ただし、各電子から位相を揃えた光が放射される XFEL は、熱的な光には分類されない。

熱的な光では、ある時刻・ある位置における光の電場のアンサンブルを考えると、その分布が複素ガウス分布になることが知られている [7]。この性質を使って、位置  $\mathbf{r}_1$ , 時刻  $t_1$  の光の強度  $I(\mathbf{r}_1, t_1)$  と位置  $\mathbf{r}_2$ , 時刻  $t_2$  の光の強度  $I(\mathbf{r}_2, t_2)$  の強度相関関数  $g_0^2 = \langle I(\mathbf{r}_1, t_1)I(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle / [\langle I(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle I(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle]$  を電場の関数として表してみよう。まず、 $g_0^2$  は光の電場  $E(\mathbf{r}_1, t_1)$  および  $E(\mathbf{r}_2, t_2)$  を用いると

$$g_0^2 = \frac{\langle E(\mathbf{r}_1, t_1)E^*(\mathbf{r}_1, t_1)E(\mathbf{r}_2, t_2)E^*(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle}{\langle I(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle I(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle} \quad (5.1)$$

と書ける。複素ガウス分布についてのモーメント定理 [7] から、式 (5.1) は

$$g_0^2 = \frac{\langle I(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle I(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle + \langle E(\mathbf{r}_1, t_1)E^*(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle \langle E^*(\mathbf{r}_1, t_1)E(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle}{\langle I(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle I(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle} \quad (5.2)$$

$$= 1 + |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t_1 - t_2)|^2 \quad (5.3)$$

となる。ここで、 $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, t_1 - t_2)$  は複素コヒーレンス度である。式 (5.3) は、複素コヒーレンス関数が 0 でない場合、すなわち振幅が干渉する場合には強度も干渉することを意味している。また、この式から強度干渉の程度は、複素コヒーレンス度の絶対値の大きさによって決まっていることが分かる。

次に、熱的な光とみなすことが出来るパルス光について、異なる 2 つの位置  $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$  においてパルス幅全体での時間積分強度  $I'(\mathbf{r}_1) = \int I(\mathbf{r}_1, t)dt$ ,  $I'(\mathbf{r}_2) = \int I(\mathbf{r}_2, t)dt$  の相関関数  $g^2 = \langle I'(\mathbf{r}_1)I'(\mathbf{r}_2) \rangle / [\langle I'(\mathbf{r}_1) \rangle \langle I'(\mathbf{r}_2) \rangle]$  について考えてみよう。位置  $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$  におけるパルス光強度の時間に関する包絡形状を表す関数  $P(t)$  が同一であるとする、 $g^2$  は、式 (5.3) の導出過程と同様の計算によって

$$g^2 = 1 + \int \Pi(\tau) |\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau)|^2 d\tau \quad (5.4)$$

と表すことができる。ここで  $\Pi(\tau)$  は、 $P(t)$  の規格化自己相関関数

$$\Pi(\tau) = \frac{\int P(t)P(t+\tau)dt}{\left[\int P(t)dt\right]^2} \quad (5.5)$$

である。

### 5.2.2 放射光における強度干渉

放射光や放射光を光学素子によって分光した光については cross-spectral purity が成り立ち [84]、積分強度相関関数とパルス形状を関係づけている式 (5.4) を次のように書き直すことができる:

$$\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \tau) = \mu_{12} \gamma_I(\tau). \quad (5.6)$$

この式において  $\mu_{12}$  は同時刻の複素コヒーレンス度  $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)$  である。また、 $\gamma_I(\tau)$  は時間コヒーレンスであり、2章で示したように規格化した放射スペクトル密度  $s(\nu)$  (ただし  $\nu$  は周波数) との間に

$$\gamma_I(\tau) = \int_0^\infty s(\nu) e^{-i2\pi\nu\tau} d\nu \quad (5.7)$$

なる関係がある。式 (5.4), (5.6), (5.7) から、積分強度相関関数とスペクトル密度を結びつける関係式:

$$g^2 = 1 + |\mu_{12}|^2 \int \Pi(\tau) \left| \int_0^\infty s(\nu) e^{-i2\pi\nu\tau} d\nu \right|^2 d\tau \quad (5.8)$$

が導かれる。

$g^2$  の例として、放射スペクトル密度が中心周波数  $\nu$ 、半値全幅  $\Delta\nu$  のガウス関数で表され、尚且つパルス包絡線関数が半値全幅  $\Delta T$  のガウス関数である場合の積分強度相関関数  $g^2$  を考えてみよう。この場合、式 (5.5), (5.7) から

$$\Pi(\tau) = \frac{1}{\Delta T} \sqrt{\frac{2 \ln 2}{\pi}} \exp\left[-\frac{2 \ln 2}{\Delta T^2} \tau^2\right], \quad \gamma_I(\tau) = \exp\left[-2\pi i \nu \tau - \left(\frac{\pi \Delta \nu \tau}{2 \sqrt{\ln 2}}\right)^2\right] \quad (5.9)$$

となり、この結果を式 (5.4) に代入することで

$$g^2 = 1 + \frac{|\mu_{12}|^2}{\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta T}{\tau_c}\right)^2}} \quad (5.10)$$

となる。ここで  $\tau_c$  は

$$\tau_c = \frac{2 \ln 2}{\pi \Delta \nu} = \frac{4 \hbar \ln 2}{\Delta E} \quad (5.11)$$

で定義されるコヒーレンス時間である。ただし、 $\Delta E$  はプランク定数  $h$  を用いて  $\Delta E = \hbar \Delta \nu$  で表される光のエネルギー広がりである。

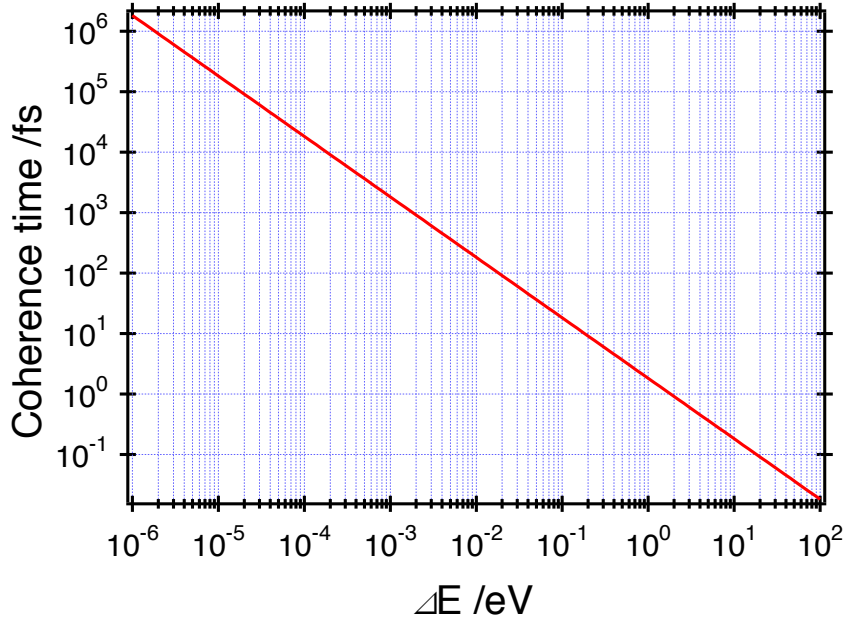


Figure 5.2

Relation between energy spread of light and coherence time.

2点間の位置が十分近い場合には、 $|\mu_{12}| = 1$  となるので  $g^2$  は

$$g^2 = 1 + \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta T}{\tau_c}\right)^2}} \quad (5.12)$$

となる。この式の右辺の2項目が強度干渉の程度を表しており、あるパルス幅の光に関してその積分強度の干渉が生じるためには、コヒーレンス時間がパルス幅と同程度または長い必要があるということが分かる。逆に言うと、放射光を様々な分光結晶に通してコヒーレンス時間を変えながら強度干渉の程度を調べることによって、放射光のパルス幅、ひいては電子バンチの時間構造が分かる、ということを式(5.12)は意味している。**Fig. 5.2**は光のエネルギー幅 $\Delta E$ とコヒーレンス時間との関係を表したものである。第3世代放射光源における典型的なパルス幅は数十 ps 程度であるので、強度干渉を測定するためには放射光を分光してエネルギー幅を  $100 \mu\text{eV}$  程度にする必要がある。

X線領域における強度干渉の研究は、1975年の Shuryak による放射光を利用した強度干渉実験の研究提案に遡る [85]。その後、Ikonen や Gluskin らによってアンジュレータ光源を用いた場合の強度干渉実験に必要な計測時間の試算が為された [86, 87]。そ

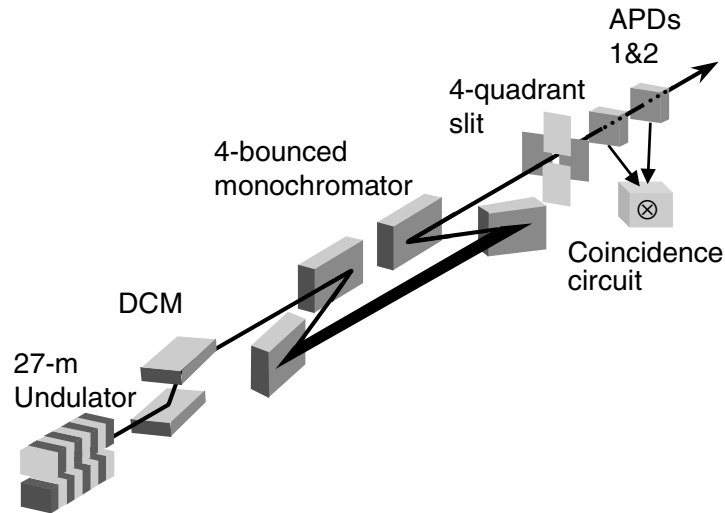
して、1997年台後半に高エネルギー加速器研究機構のトリスタンリングや Advanced Photon Source のアンジュレータ光源を利用して X 線領域の強度干渉現象が確認された [88, 89]。しかし、これらの研究では蓄積リングを周回している各電子バンチの時間幅が 60 ps 程度であったのに対して、分光後の放射光のコヒーレンス時間が 1 ps 程度であったために、強度干渉の程度は非常に弱いものであった (強度相関関数が 1.01 程度)。その後、高分解能モノクロメータの発展 [61] によって、分光した放射光のコヒーレンス時間を電子バンチ長と同程度にすることが可能になり、強度干渉を利用した X 線の空間コヒーレンス測定や電子バンチ長測定が実現された [90–92]。

放射光を利用した強度干渉実験の実験配置の例を **Fig. 5.3** に示す。Yabashi らによって行われたこの実験では、放射光を二結晶分光器および高分解能モノクロメータによって分光した後、X 線ビームの空間的にコヒーレントな部分を四象限スリットによって切り出している [91]。そして、単色化された X 線を独立な 2 つの光子検出器によってパルス毎に検出している。このとき、放射光パルスの繰り返しレートはサブ GHz 程度と非常に大きいため、高速な応答と出力が可能な Avalanche Photo Diode (APD) を検出器として用いることでパルス毎の X 線光子を測定している。放射光における強度干渉実験では高分解能モノクロメータによって放射光の大部分が切り捨てられているために、それぞれの検出器で検出される光子数は 1 光子以下である [93]。そこで、2 つの検出器が 1 パルスにおいて共に X 線光子を計測する確率 (coincidence rate) を測定して、それぞれの検出器が 1 パルスあたりに光子を検出する確率と比較することで強度干渉の程度を評価している。

### 5.2.3 XFEL の電子バンチの時間構造評価のための強度干渉法

本研究で提案する XFEL の電子バンチの時間構造評価のための強度干渉法の概略図を **Fig. 5.4** に示す。強度干渉法から電子バンチの時間構造を測定するためには、放射された X 線が熱的光源でなければならない。そこで、すべてのアンジュレータのうち 1 台のみを磁石列のギャップを閉めて、その他のアンジュレータはギャップを開いておく。この場合、電子バンチがアンジュレータ列を通過すると、ギャップを閉めたアンジュレータを通過する時のみ X 線を放出する。通常、アンジュレータ 1 台では電子のマイクロバンチ化が起こらないので、電子バンチから放出される X 線パルスは熱的な光とみなすことができる。また、この場合、電子バンチに対する光のスリッページの効果 (光の方が電子バンチよりも早くアンジュレータを通過すること) は高々波長の数





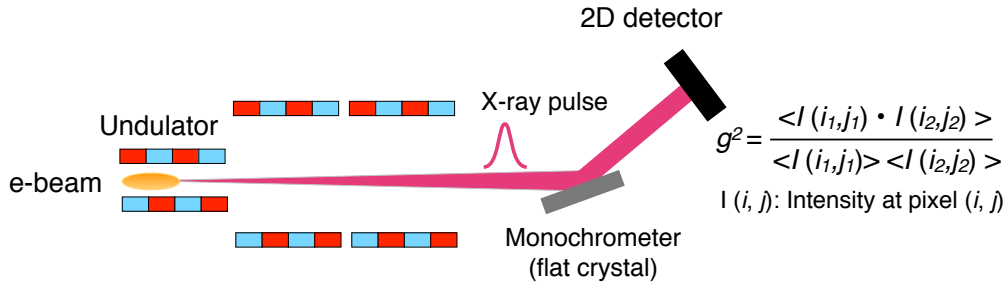
**Figure 5.3**

An example of the experimental setup of the X-ray intensity interferometer for synchrotron radiation [91].

100倍程度なので、電子バンチの時間構造とX線パルスの時間構造はフェムト秒の時間スケールにおいては同一とみなして問題はない。このX線パルスの強度干渉を測定して電子バンチの時間構造を評価するわけであるが、従来の放射光における強度干渉実験と本手法には2つの大きな違いがある。

1つ目は分光結晶の違いである。従来の実験ではピコ秒のコヒーレンス時間を得るために高分解能のモノクロメータが必要であった。一方で、XFELの電子バンチの評価のためには、フェムト秒のオーダーでコヒーレンス時間を変化させる必要がある。そこで、この手法ではSiの平板結晶をX線パルスの単色化のために用いる。様々な結晶面のブラッグ反射を利用することによってコヒーレンス時間を変化させる。

2つ目の違いはX線検出器系の違いである。放射光における強度干渉実験ではX線パルスの繰り返しレートが非常に大きいため、各パルスを区別するために0次元検出器であるAPDと高度な電子回路を使う必要があった。一方で、現在のXFELの繰り返しレートは数十Hzと繰り返しが少ないためAPDを用いる必要がない。分光後の光のエネルギー幅が大きく、1パルスごとに相当数の光子が検出器に入射するために、むしろAPDを用いると数え落としが生じて強度干渉の程度を正確に評価できなくなる可能性がある。そこで、本手法では2次元検出器によって分光後のX線を検出する。



**Figure 5.4**

Schematic illustration of the X-ray intensity interferometry for characterizing temporal structures of electron bunches in XFEL.

そして、検出器のピクセル  $(i, j)$  における強度を  $I(i, j)$  を用いて

$$g^2(i_1, j_1, i_2, j_2) = \frac{\langle I(i_1, j_1)I(i_2, j_2) \rangle}{\langle I(i_1, j_1) \rangle \langle I(i_2, j_2) \rangle} \quad (5.13)$$

によって積分強度相関関数を評価する。ここで、 $\langle \dots \rangle$  は異なるパルスに関する平均を表している。

### 5.3 実験

5.2.3 の X 線強度干渉法を利用して SACLA で 10.5 keV の XFEL を発振させている電子ビームの時間構造評価を行った。実験に用いた電子ビームの特性および、この電子ビームを SACLA のアンジュレータ列に通した際に発振した XFEL の光特性は、Table 5.1 のとおりである。ここで、パルスエネルギーの項目における  $\pm$  はショットごとの揺らぎを意味している。

積分強度相関関数と X 線パルスの時間形状との関係を表す式 (5.8) は、積分方程式であるので強度干渉測定の結果のみから電子バンチの時間形状を一意に求めることは難しい。そこで、本研究では RF デフレクターによって測定した電子バンチの時間構造を強度干渉測定の結果を使って精緻化することによって 10 fs を切る時間分解能で電子バンチの時間構造を決定することを目指した。

#### 5.3.1 RF デフレクターによる電子バンチ評価

電子バンチの実時間構造を Fig. 5.1 (a) に示した SACLA の RF デフレクターによって測定した。current transformers (CT) モニター [72] によって測定した各電子バンチの

**Table 5.1**  
Parameters of XFEL and electron beam.

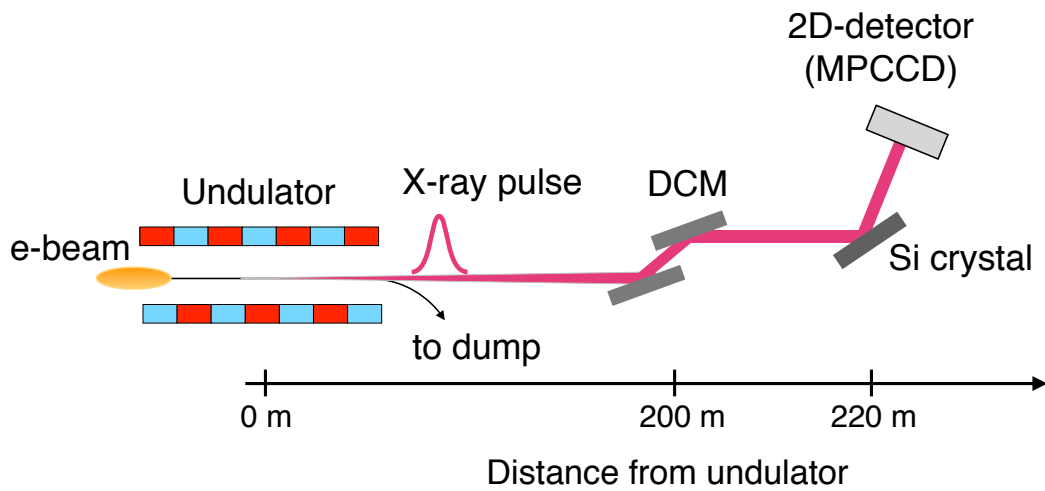
Photon energy	10.5 keV
Monochromaticity ( $\Delta E/E$ )	$4 \times 10^{-3}$
Pulse energy	$510 \mu\text{J} \pm 60 \mu\text{J}$
Electron beam energy	8.0 GeV
$K$ value of undulator	2.07
Repetition rate	30 Hz

総電荷量をスクリーン上の観測強度で比例配分し、RF デフレクターによる掃引方向に垂直な方向 (**Fig. 5.1 (a)**) の横方向) に積算することで電子バンチの電流値の実時間構造をパルス毎に決定した。

### 5.3.2 強度干渉測定の実験配置と実験手順

強度干渉実験の実験配置を **Fig. 5.5** に示す。10.5 keV の XFEL を発振させている表 **5.1** の SACLA の運転条件から、最上流のアンジュレータ 1 台だけを残して残りのアンジュレータのギャップを開いた状態で電子バンチから X 線パルスを放射させた。そして X 線パルスから二結晶分光器によって 10.5 keV 付近のエネルギーの光を切り出した後、様々な Si の平板結晶を対称反射で使用して X 線パルスの分光を行った。そして、分光後の X 線強度プロファイルをシングルタイプの MPCCD 検出器 [70] を用いて、ショットごとに X 線散乱像を測定した。

実験に用いた Si の平板結晶の反射面とそれぞれの測定条件を、**Table 5.2** に示す。表の Energy spread は、二結晶分光器と平板結晶による分光後の光のエネルギー幅 (半値全幅) を表している。また、コヒーレンス時間はエネルギー幅から式 (5.11) によって算出している。分光結晶から検出器までの距離は 311 反射は 300 mm、それ反射以外の反射の場合は 340 mm であった。

**Figure 5.5**

Schematic illustration of the experimental setup of the X-ray intensity interferometry at SACLA.

**Table 5.2**

Si crystals used in the experiment and the corresponding experimental conditions.

Crystal plane	(111)	(220)	(311)	(333)	(440)	(444)	(660)	(555)
Bragg angle (degree)	10.85	17.91	21.13	34.39	37.95	48.87	67.29	70.30
Energy spread (meV)	1010	577	300	92.3	100.4	52.4	25.1	15.2
Coherence time (fs)	1.81	3.17	6.10	19.8	18.2	34.9	72.7	120
Number of XFEL shots	6000	6000	6000	6000	6000	6000	12000	9000

## 5.4 結果と考察

### 5.4.1 RF デフレクターによる電子バンチ評価

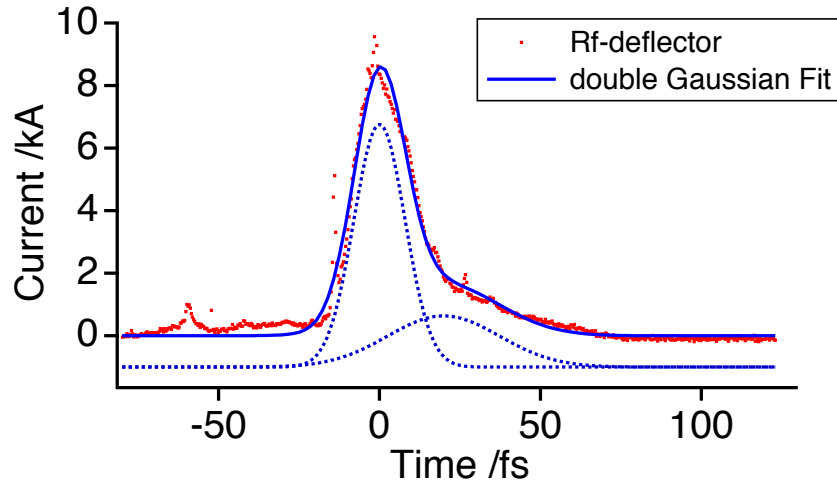
**Fig. 5.6** に、RF デフレクターによって測定したシングルパルスの電流値の時間構造の例を示す。ここで、時間軸の原点は電流値のピーク位置になるように設定した。また、横軸の値が小さい側が電子バンチの進行方向の前方側に対応しており、赤点が計測結果を表している。この図から電子バンチの電流値が後方方向に長いテールを持つピーク状の時間構造をしていることが分かる。

電流値の時間構造を評価するために、それぞれのパルスについての電流値  $I$  の測定結果を2つのガウシアン関数の和:

$$I(t) = A_1 \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta T_1} \exp\left[-\left(2\sqrt{\ln 2}\frac{t}{\Delta T_1}\right)^2\right] + A_2 \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta T_2} \exp\left[-\left(2\sqrt{\ln 2}\cdot\frac{t-T_{12}}{\Delta T_2}\right)^2\right] \quad (5.14)$$

によってフィッティングした。ここで、 $t$  は時間、 $A_1, A_2$  はそれぞれのガウシアン関数に対応した電荷量、 $\Delta T_1, \Delta T_2$  はガウシアン関数の半値全幅、 $T_{12}$  は2つのガウシアン関数の中心位置の時間差である。以下では、簡単のため式(5.14)の右辺の第1項、第2項に対応した電流値の時間構造をそれぞれ“ピーク1”、“ピーク2”、と呼ぶことにする。**Fig. 5.6**の青線の実線は実験結果に対するフィッティングの結果である。フィッティング結果は、RF デフレクターによる電流値の時間構造の測定結果をよく再現していることが分かる。また、青の破線は、ピーク1およびピーク2の電流値への寄与を縦軸方向にオフセットして示したものである。ピーク1が測定した電流値における時間0 fs 付近のピークに対応しており、ピーク2は電子バンチの後方方向に伸びる電流値のテールに対応している。

このフィッティングによって各電子バンチごとの時間構造の評価を行った結果、各パラメータの平均値およびショット毎の揺らぎ（パラメータの標準偏差）は **Table 5.3** のようになった。それぞれのパラメータについて、その標準偏差は平均値の10%以下であり、パルスごとの電子バンチの時間構造に顕著な違いが無いことが分かった。以下で述べる強度干渉実験では、複数のX線パルスを用いて強度干渉の程度を評価する。そのため、実験によって推定されるのはアンサンブル平均した電子バンチの時間構造である。RF デフレクターの解析結果は、電子バンチの時間構造は各パルスで同様なことを示しており、強度干渉法から推測される電子バンチの時間構造が実際の電子バンチの時間構造を正しく推定し得ることを保障している。

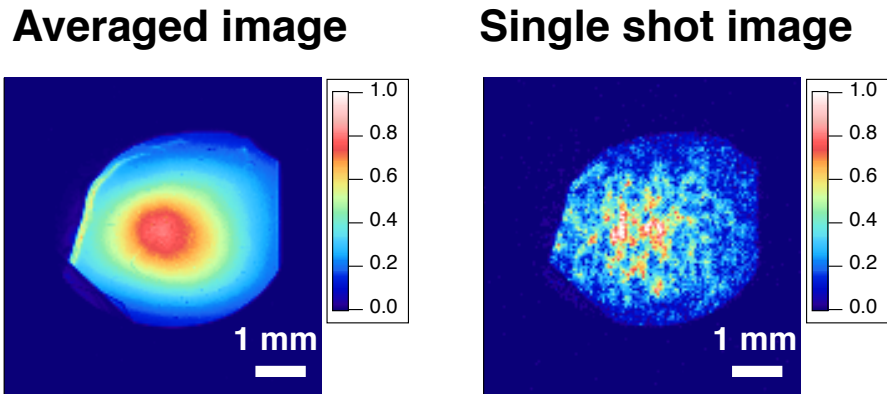
**Figure 5.6**

Single-shot temporal structures of an electron bunch measured by the RF-deflector (red dots) and its fitted result by eq. (5.14) (blue solid curve). The dotted blue curves represent “peak 1” and “peak 2” given by the first and the second term on the right side of eq. (5.14). Here we should note that the blue dotted curves are offset for clarity.

**Table 5.3**

Parameters defining temporal structures of the electron bunch measured by the RF-deflector.

	Peak 1	Peak 2
Charge: $A_1, A_2$	$161 \pm 11$ pC	$75 \pm 7$ pC
Peak width: $\Delta T_1, \Delta T_2$	$19.5 \pm 1.1$ fs	$40.8 \pm 2.6$ fs
Time lag between the two peak: $T_{12}$	$21.3 \pm 1.4$ fs	



**Figure 5.7**

(Left) Averaged and (right) single-shot X-ray beam intensity profiles after monochromatization by the Si (111) crystal.

#### 5.4.2 強度干渉実験の解析

##### 分光後の X 線パルスの空間プロファイル

**Fig. 5.7** は、Si (111) 結晶による分光後の X 線パルスの空間プロファイルの平均画像 (左) およびシングルショット画像 (右) を示したものである。平均画像の中心付近の強度ピークがアンジュレータからの光軸上の放射光に対応している。軸外放射光の強度プロファイルの一部が欠けているがこれは放射光のビームサイズが数 mm 程度と通常の XFEL と比較して大きいため、光学ハッチのビームモニターやスリットなどが、この方向に放射された光を遮っているためである。平均画像がなめらかなプロファイルを示す一方で、シングルショット画像に目を移すと粒状の強度プロファイルが見られる。これは近接した位置の X 線強度に相関があることを意味しており、強度干渉が起こっていることの明確な証拠である。

##### 強度干渉の評価

今回の実験では、平均 X 線強度が最も大きい光軸上の放射に対応したピクセルとまわりのピクセルとの間の強度干渉を評価した。それぞれの Si 結晶を用いた場合の解析の手順は以下のとおりである。

まず始めに、測定した画像を平均して、2次元のガウシアン関数で強度プロファイルをフィッティングすることで、光軸上の放射光に対応したピクセル ( $i_0, j_0$ ) を決定し

た。そして、このピクセルと周りのピクセル  $(i, j)$  の間の積分強度相関関数  $g^2$  を

$$g^2 = \frac{\langle I(i_0, j_0)I(i, j) \rangle}{\langle I(i_0, j_0) \rangle \langle I(i, j) \rangle} \quad (5.15)$$

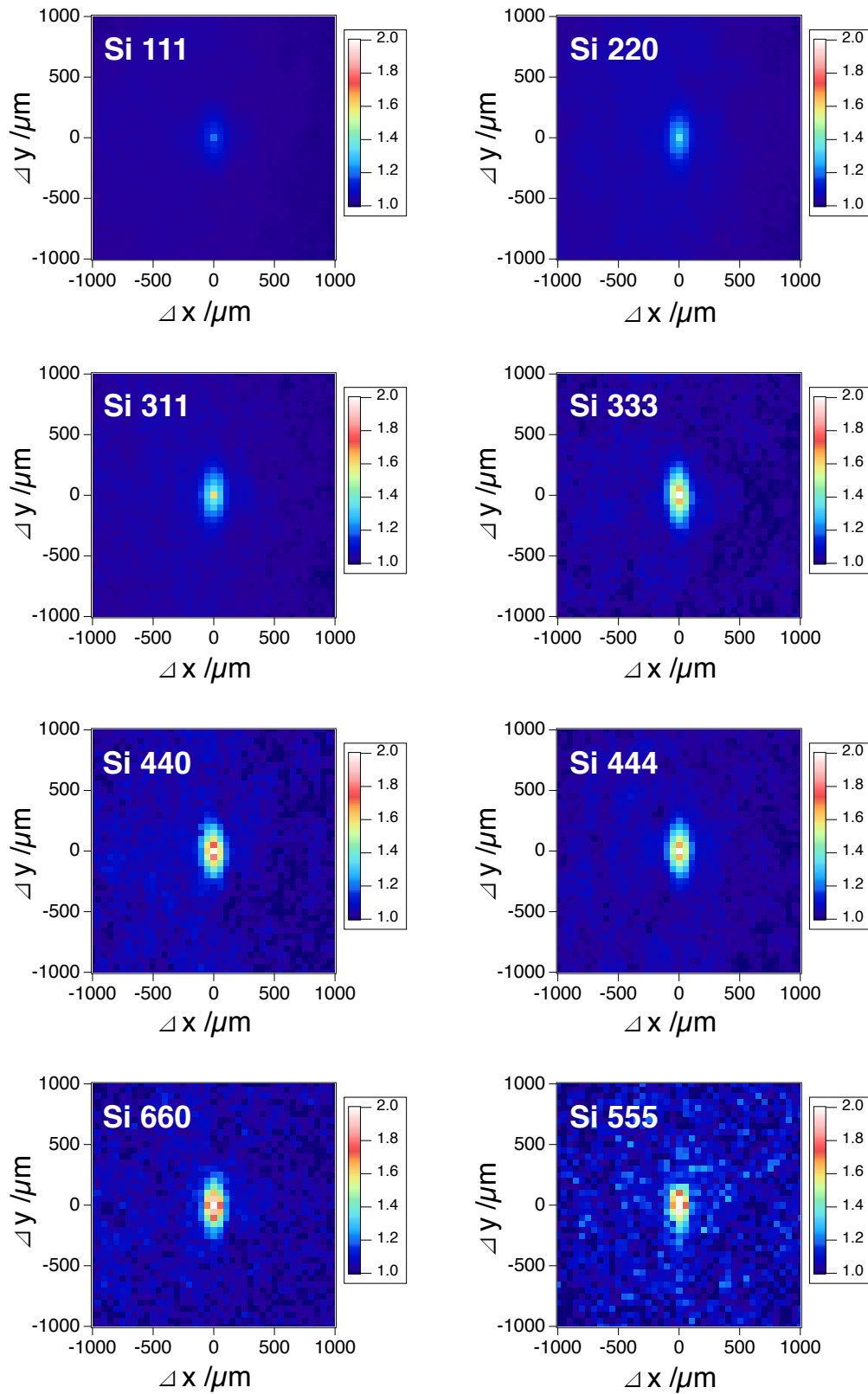
によって評価した。ここで  $\langle \dots \rangle$  は異なるパルスに関する平均を表している。**Fig. 5.8** は、 $g^2$  をピクセル間の距離の関数として2次元画像で表したものである。図中の  $\Delta x$ ,  $\Delta y$  はそれぞれ水平方向、垂直方向のピクセル間の距離に対応している。これらの図から、Si結晶によって切り出すエネルギー幅を狭くすると  $g^2$  が大きくなることが分かる。これはコヒーレンス時間が長くなることによって、強度干渉の程度が大きくなってゆくためである。また、興味深いことに2点間の距離を離していった際の強度干渉は、水平方向の方が垂直方向よりも大きく減衰することが分かった。このことはX線パルスの空間コヒーレンス長が水平方向よりも垂直方向で長いことを意味しており、ビームサイズやエミッタンス、ベータトロン振動といった電子ビームの特性が水平方向と垂直方向で異なっていることを示唆している。

ところで2点間の距離が十分近い場合には同時刻の複素コヒーレンス度  $\gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, 0)$  が1となるので、式(5.8)から積分強度相関関数とX線パルス包絡線関数の規格化自己相関関数  $\Pi(\tau)$  およびスペクトル密度の間に

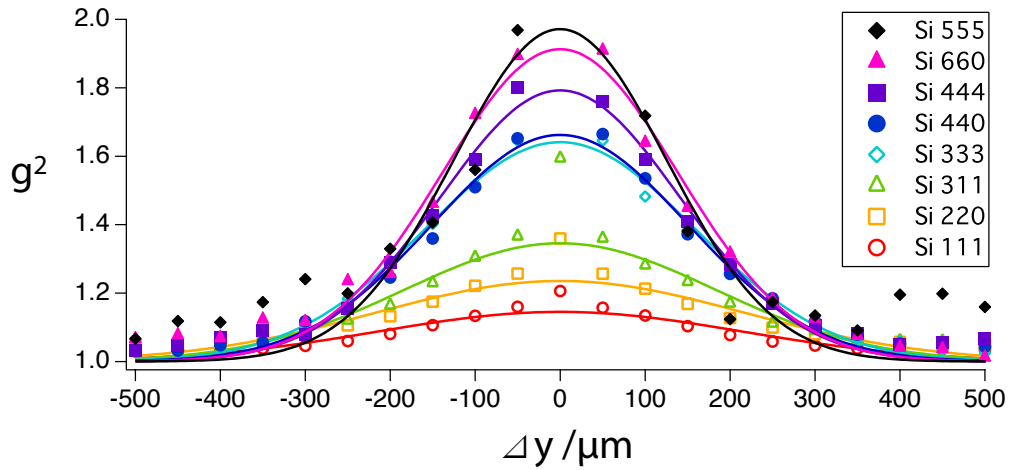
$$g^2 = 1 + \int \Pi(\tau) \left| \int_0^\infty s(\nu) e^{-i2\pi\nu\tau} d\nu \right|^2 d\tau \quad (5.16)$$

の関係式が成り立つ。この式に従って電子バンチの時間構造を推定するために、垂直方向の  $g^2$  の1次元プロファイル  $(g(0, \Delta y))$  を中心が  $\Delta y = 0$  のガウシアン関数でフィッティングすることで2点間の距離が十分近い場合の積分強度相関関数  $g^2$  を求めた。 $g^2$  の1次元プロファイルとそのフィッティングの結果を**Fig. 5.9**に、フィッティングから求められた2点間の距離が十分近い場合の積分強度相関関数をコヒーレンス時間と合わせて**Table 5.4**に示した。



**Figure 5.8**

Two dimensional intensity correlation functions for different Si crystals.

**Figure 5.9**

Intensity correlation functions along the vertical direction for different Si crystals and the fitted curves by Gaussian functions.

**Table 5.4**

Intensity correlation functions for the case when the two points are very close ( $\Delta x = 0$  and  $\Delta y \rightarrow 0$ ).

Crystal plane	Coherence time	$g^2$
111	1.81 fs	$1.15 \pm 0.01$
220	3.17 fs	$1.24 \pm 0.01$
311	6.10 fs	$1.35 \pm 0.01$
333	19.8 fs	$1.64 \pm 0.02$
440	18.2 fs	$1.66 \pm 0.02$
444	34.9 fs	$1.79 \pm 0.03$
660	72.7 fs	$1.91 \pm 0.03$
555	120 fs	$1.97 \pm 0.09$

### 5.4.3 電子バンチの時間構造の決定

**Table 5.4** の結果をもとにして電子バンチの時間構造評価を行なった。まず、RF デフレクターで測定した電子バンチの時間構造から予測される積分強度相関関数  $g^2$  を強度干渉実験の結果と比較することで、RF デフレクターで測定した時間構造が実際の時間構造を十分な時間分解能で表せているかどうかを検証した。

RF デフレクターによって測定された電子バンチの時間構造は、**Table 5.3** のパラメータを用いて、2つのガウシアン関数の和:

$$I(t) = A_1 \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta T_1} \exp\left[-\left(2\sqrt{\ln 2} \frac{t}{\Delta T_1}\right)^2\right] + A_2 \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi}\Delta T_2} \exp\left[-\left(2\sqrt{\ln 2} \cdot \frac{t - T_{12}}{\Delta T_2}\right)^2\right] \quad (5.14)$$

で表される。このとき式 (5.5) で定義される、X 線パルスの包絡形状を表す関数の規格化自己相関関数  $\Pi(\tau)$  は、

$$\Pi(\tau) = \Pi_{11}(\tau) + \Pi_{12}(\tau) + \Pi_{21}(\tau) + \Pi_{22}(\tau) \quad (5.17)$$

となる。ただし、

$$\Pi_{11}(\tau) = \left(\frac{A_1}{A_1 + A_2}\right)^2 \sqrt{\frac{2\ln 2}{\pi\Delta T_1^2}} \exp\left[-\frac{2\ln 2}{\Delta T_1^2}\tau^2\right] \quad (5.18)$$

$$\Pi_{12}(\tau) = \frac{A_1 A_2}{(A_1 + A_2)^2} \sqrt{\frac{4\ln 2}{\pi(\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2)}} \exp\left[-\frac{4\ln 2}{\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2}(\tau + T_{12})^2\right] \quad (5.19)$$

$$\Pi_{21}(\tau) = \frac{A_1 A_2}{(A_1 + A_2)^2} \sqrt{\frac{4\ln 2}{\pi(\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2)}} \exp\left[-\frac{4\ln 2}{\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2}(\tau - T_{12})^2\right] \quad (5.20)$$

$$\Pi_{22}(\tau) = \left(\frac{A_2}{A_1 + A_2}\right)^2 \sqrt{\frac{2\ln 2}{\pi\Delta T_2^2}} \exp\left[-\frac{2\ln 2}{\Delta T_2^2}\tau^2\right] \quad (5.21)$$

である。これらの式と式 (5.8), (5.11) から、2点間の距離が十分近いときの  $g^2$  とガウシアン関数の各パラメータおよびコヒーレンス時間  $\tau_c$  を結びつける関係式:

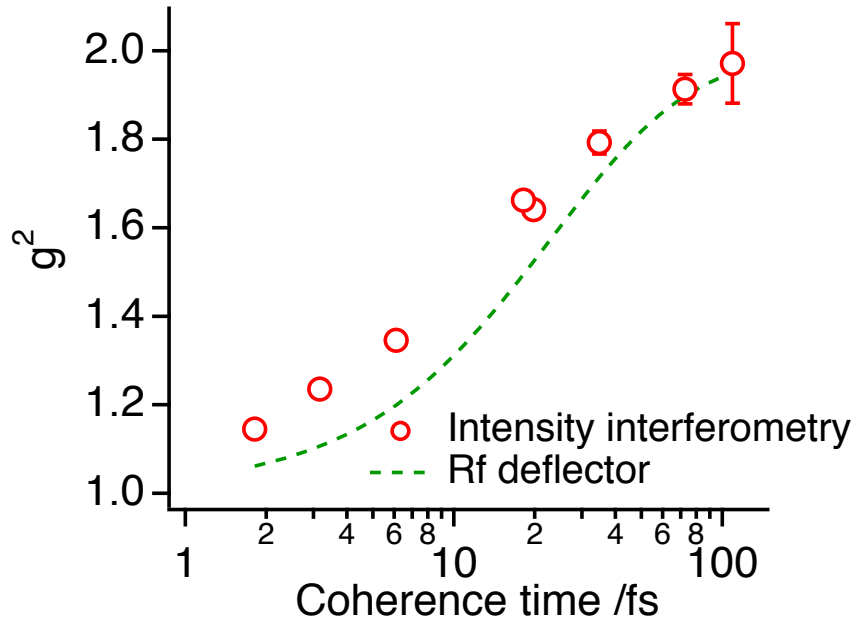
$$g^2 = 1 + \frac{\left(\frac{A_1}{A_1 + A_2}\right)^2}{\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta T_1}{\tau_c}\right)^2}} + \frac{\left(\frac{A_2}{A_1 + A_2}\right)^2}{\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta T_2}{\tau_c}\right)^2}} + \frac{\frac{2A_1 A_2}{(A_1 + A_2)^2}}{\sqrt{1 + \frac{\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2}{2\tau_c^2}}} \cdot \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{4\tau_c^2}{\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2 + 2\tau_c^2}} \quad (5.22)$$

が得られる。

この関係式にガウシアン関数の各パラメータを代入することで、様々なコヒーレンス時間のもとの  $g^2$  を求めることが出来る。RF デフレクターの結果 (**Table 5.3**) を式 (5.22) に代入することで求めた  $g^2$  のコヒーレンス時間依存性を、強度干渉の実験結果

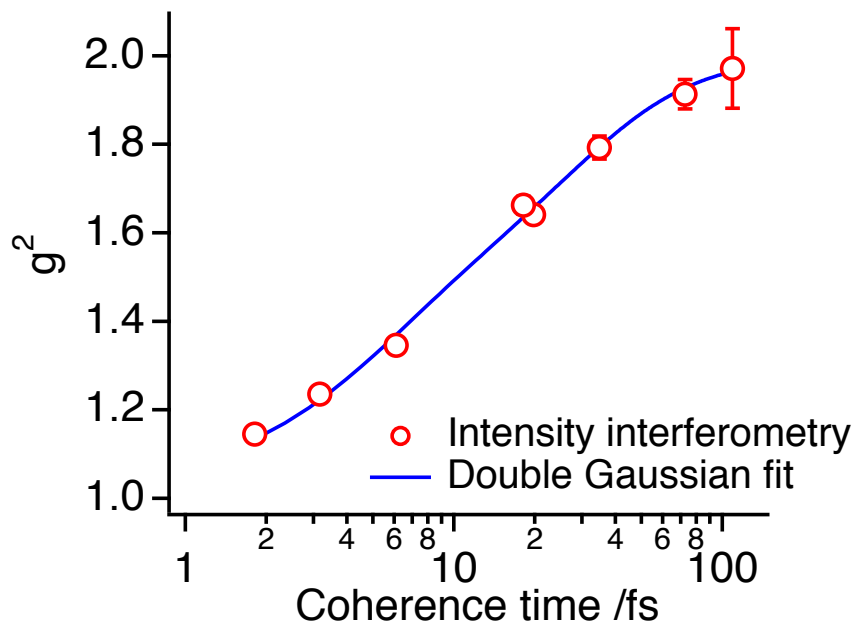
と合わせて **Fig. 5.10** に示す。コヒーレンス時間が長いときには ( $\tau_c > 50$  fs)、RF デフレクターによる電子バンチ評価から予測した  $g^2$  は、実験結果とよく一致する。一方で、コヒーレンス時間が短い場合には予測した  $g^2$  が強度干渉法で測定した  $g^2$  よりも小さな値になる。このことは、実際のバンチ構造が RF デフレクターの時間分解能よりも小さな時間スケールの構造を持っていることを意味している。

そこで式 (5.14) の右辺に現れる各パラメータのうち、 $\Delta T_1, T_{12}$  をパラメータにして、実験で測定された  $g^2$  を式 (5.22) によってフィッティングすることで電子バンチの時間構造を決定した。このフィッティングにおいて、その他のパラメータは RF デフレクターの結果から得られた値 (**Table 5.3**) に固定した。フィッティング結果 (**Fig. 5.11**) は強度干渉実験の結果とよく一致しており、 $\Delta T_1 = 7.4 \pm 0.6$  fs,  $T_{12} = 17.4 \pm 1.8$  fs と決定された。この強度干渉実験によって求めた電子バンチの時間構造を **Fig. 5.12** に示す。参考のために、**Table 5.3** の RF デフレクターの測定結果も合わせて図に示している。強度干渉実験の結果、電子バンチはピーク電流値が 20 kA 程度、半値全幅が 8 fs 程度の鋭いピーク状の時間構造を持つことが明らかになった。このピーク部分から XFEL が発振していると考えられるので、XFEL のパルス幅は 10 fs 程度またはそれ以下と見積もることができ、これまでの SACLA における XFEL のパルス幅測定の結果 [77,94] と矛盾しない。



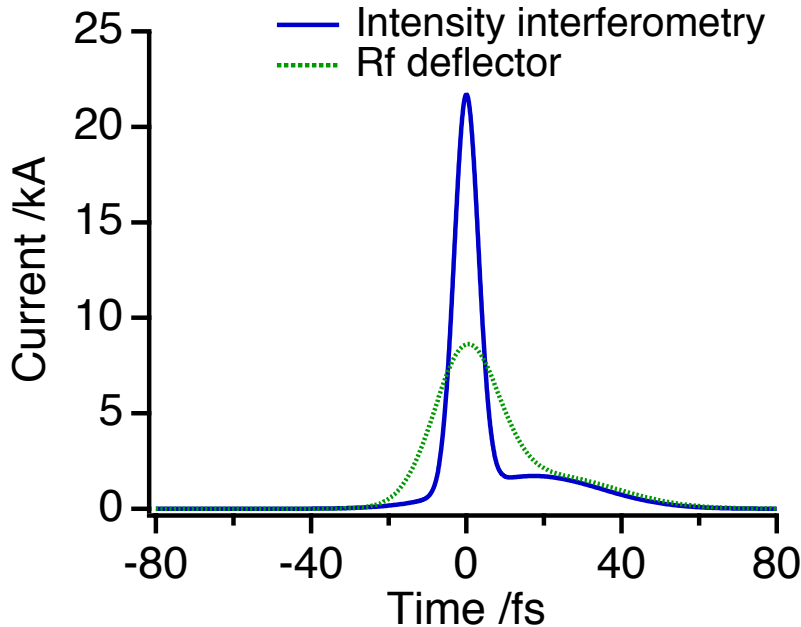
**Figure 5.10**

Comparison between  $g^2$  measured by the X-ray intensity interferometry and  $g^2$  calculated from the temporal structure of the electron bunch measured by the RF-deflector.



**Figure 5.11**

$g^2$  measured by the X-ray intensity interferometry and its fitted results by eq. (5.22).



**Figure 5.12**

Temporal structure of the electron bunch determined by the X-ray intensity interferometer and that measured by the RF-deflector.

#### 5.4.4 電子ビームのスライスエミッタンスの評価

最後に、強度干渉法によって決定された電子バンチのピーク電流値から電子ビームのXFEL発振している部分のエミッタンス(スライスエミッタンス)の評価を行なった。XFEL理論によると電子ビームの電流値 $I$ が時間的に一定の場合、FEL発振過程における強度のゲイン長 $L_g$ は

$$L_g \approx 0.835 \left( \frac{I_A}{I} \right)^{1/2} \frac{(\epsilon \gamma \lambda_u)^{5/6}}{\lambda^{2/3}} \frac{(1 + K^2/2)^{1/3}}{\frac{K}{\sqrt{2}} \left[ J_0 \left( \frac{K^2/2}{2+K^2} \right) - J_1 \left( \frac{K^2/2}{2+K^2} \right) \right]} \quad (5.23)$$

と近似される [28]。ここで  $I_A \approx 17$  kA は Alfen 電流、 $\epsilon$  は XFEL 発振している部分の電子バンチのエミッタンス、 $\gamma$  はローレンツ因子、 $\lambda_u$  および  $K$  はそれぞれアンジュレータの周期長と  $K$  値、 $\lambda$  は XFEL の発振波長、 $J_0$  および  $J_1$  はそれぞれ 0 次、1 次の Bessel 関数である。

強度干渉法の実験結果からピーク電流値が 20 kA 程度と見積もられたが、SACLA のパルス幅が数 fs 程度であることを考えるとピーク位置から数 fs 離れた電流値が 10 kA 程度の電子バンチの領域まで XFEL 発振していると考えられる。そこで、 $I = 10$

kA およびゲイン長の測定値  $L_g = 2.1$  m の値を採用し、**Table 5.1** の光源パラメータの値および  $\lambda_u = 18$  mm を式 (5.23) に代入して電子ビームのスライスエミッタンスを評価した。その結果、スライスエミッタンスは 70 pm·rad (規格化エミッタンスは、1.1 mm·mrad) と見積もられた。SACLA の電子銃カソード直後の規格化エミッタンスは、0.6 mm·mrad 程度と評価されているため [95]、電子バンチの加速過程や圧縮過程においてエミッタンス悪化が引き起こされていることが明らかになった。

## 5.5 結論と今後の展望

本研究では、電子バンチの時間構造を測定するための X 線強度干渉法を開発した。この方法では、電子バンチがアンジュレータ 1 台を通過した際の放射光を Si 結晶によって分光する。そして、分光後の X 線の 2 次元強度プロファイルを測定し、積分強度相関関数によって異なる位置の X 線の強度干渉の程度を評価する。様々な分光結晶を用いてコヒーレンス時間を変えた時の積分強度相関関数を測定することによって、電子バンチの時間構造情報を得ることが可能になる。

この方法を用いて SACLA において光子エネルギー 10.5 keV の XFEL を発振している電子バンチの時間構造を評価を行なった。その結果、電子バンチが半値全幅が 10 fs よりも小さな鋭いピーク状の時間構造を持っていることが明らかになった。この測定は XFEL を発生させる電子バンチの時間構造を 10 fs を切る分解能で評価した初めての実験結果である。さらに、電子バンチの電流値を XFEL のゲイン長測定の結果と合わせることによって、スライスエミッタンスの見積もりを行なった。その結果、電子バンチが電子銃から生成された後の加速およびバンチ圧縮の過程においてエミッタンスの悪化が起こっていることが明らかになった。

最後に、X 線強度干渉法に関する今後の展望を述べる。本研究の応用先として第一に考えられるのは、XFEL の電子加速器運転へのフィードバックである。X 線強度干渉法はシンプルな計測法であり、かつ 1 時間以下の短い測定時間で電子バンチを評価できる。この方法によって様々な加速器の運転条件のもとでの電子バンチ特性の知見を得ることによって、電子ビームや XFEL の光特性の高精度の制御が可能になることが期待できる。

また、強度干渉法を用いると XFEL の光の統計的な性質の評価も可能になる。これは強度干渉の程度は X 線パルスの時間構造だけではなく、光の統計的な性質によっても変わり得るためである。XFEL の電場や強度の時間相関や空間相関といった統計的な

性質の違いは実験結果に影響を与えることがあるため [94]、その詳細な理解は XFEL 物理のためだけでなく、利用研究にとっても重要である。

さらに、XFEL の電子バンチを使ってアンジュレータ 1 台からの放射光の空間コヒーレンス特性を調べることも興味深い。XFEL における電子バンチのエミッタンスは、回折限界リング (Diffraction limited storage ring; DLSR) などの次世代リング型 X 線光源における電子ビームエミッタンスと同程度であるが、低エミッタンスの電子ビームからの放射光の空間コヒーレンス特性は複雑な振る舞いをすることが理論的に予測されている [84]。そのため XFEL の電子バンチを利用した放射光のコヒーレンス計測は、次世代リング型 X 線光源におけるコヒーレンスの理解や利用へと繋がる意義深い研究と言える。



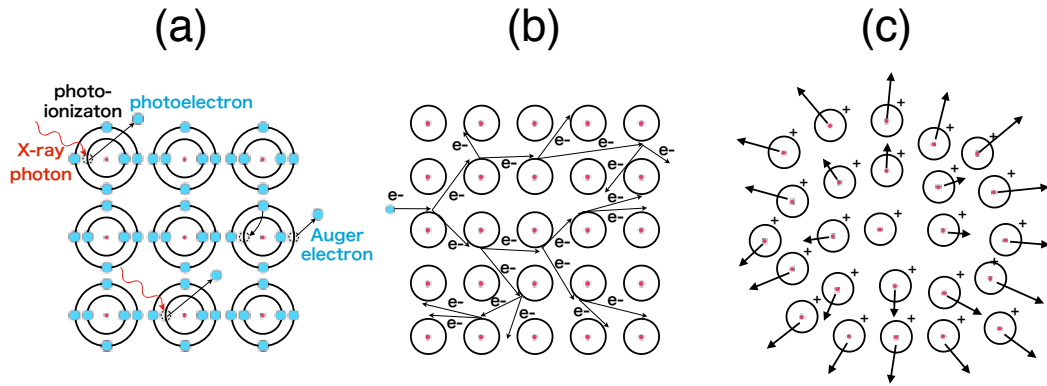
## 第6章 X線ポンプ・X線プローブ法による フェムト秒X線ダメージ過程の観測

本章では、フェムト秒の時間スケールにおけるX線ダメージ過程を測定するために開発した“X線ポンプ・X線プローブ法”の概要およびデモンストレーション実験として行った、Bragg反射を利用したダイヤモンドにおけるX線のダメージ過程の観測結果について述べる。

### 6.1 背景

W. C. Röntgen による 100 年前の X 線の発見以来、科学者たちはより明るい X 線を実現するために様々な光源開発を行ってきた [96]。X 線光源の歴史のなかで大きな転機になったのが、約 60 年前の放射光の X 線光源としての利用の始まりである。従来の管球型の X 線源と比較して格段に輝度の高い放射光によって X 線計測の質が向上し、測定試料から精度の高い情報を得ることが可能になった。また、放射光の登場によって、多波長異常分散法による蛋白質構造解析、X 線円二色性や時分割計測技術などの新しい測定技術が次々と生み出された。さらに、放射光の質の高いビームを有効に利用するために X 線光学系や検出技術が飛躍的に発達したことも特筆すべき事項である。

このように放射光の登場が X 線科学の発展を加速させた一方で、光源の高輝度化は試料への放射損傷という問題を顕在化させた。X 線が試料に照射されると光電吸収によって原子がイオン化され、その後続く過程によって化学的に活性なラジカルを生じる。そして、これらのラジカルが原子間の化学結合を切ることで、最終的に試料を変質させてしまう。このような放射損傷の程度は、試料に吸収された光子エネルギーの総量によって決まっており、試料の単位重さあたりの吸収エネルギーである Gy(グレイ)と呼ばれる単位がダメージの程度を表す尺度として用いられる (1 Gy = 1 J/kg である)。例えば、蛋白質の結晶構造解析では、冷却した試料の場合には 20-40 MGy 程



**Figure 6.1**

A model of XFEL radiation damage processes. **(a)** Electron ejection by photoionization and subsequent Auger decay processes. **(b)** Electron cascade ionization. **(c)** Atomic displacements caused by Coulomb forces between ionized atoms.

度 [97,98]、室温環境の場合には 0.2 MGy 程度 [99] で試料が変質し、原子分解能の構造解析が不可能になってしまうことが知られている。そのため放射光を利用した計測では、試料への照射損傷を避けるために X 線照射量を限定する必要がある。X 線を使ってどこまで小さなものがどの程度の分解能で情報が得られるか、という計測の限界は、この X 線照射量の上限によって決まっている。コヒーレント回折顕微鏡法を例に挙げると、10 nm 程度が空間分解能の限界であると見積もられている [100]。

フェムト秒の短い時間幅のパルス光である XFEL は、X 線計測の長年の課題であった照射損傷による計測限界を解消し得る。これは、ラジカルによって化学結合が切れて構造が変わるのに要する時間よりも光のパルス幅が短いためである。しかし、高強度の XFEL を利用する場合には、化学反応による X 線ダメージとは異なるメカニズムの X 線ダメージが生じる (**Fig. 6.1**)。XFEL が試料に照射されると、光電吸収によって光電子が(主に内殻から)放出されて原子のイオン化が起こる。そして、その励起状態を緩和するために外殻の電子が内殻に移動して、その際に蛍光 X 線や Auger 電子が放出される (**Fig. 6.1 (a)**)。光電子や Auger 電子は、周りの原子に束縛された電子と衝突することによって、それらの電子を剥ぎ取り自由電子の数を増やしてゆく。生成された自由電子は同様の電子衝突によって次々と周りの原子から電子を放出させていくため、電子雪崩と呼ばれる急激な自由電子の放出現象が起き、原子のイオン化が進行する (**Fig. 6.1 (b)**)。通常の X 線計測でも原子のイオン化は起こるが、原子はサブピコ

秒程度で自由電子を取り込んで基底状態に戻るため、原子のイオン化はほとんど無視して良い。しかし、フェムト秒の短い時間幅のパルス光である XFEL が照射される場合には、原子のイオン化が同時におこる。このような「電子系への X 線ダメージ」の後に、イオン化した原子間のクーロン反発力やイオン化による原子間のポテンシャルの変化によっておこる原子位置の変位、すなわち「構造への X 線ダメージ」が生じる (Fig. 6.1 (c))。

電子系および構造への X 線ダメージは、フェムト秒の時間スケールで進行する [101]。しかし、XFEL のパルス幅をダメージの時間スケールよりも短くすることで、ダメージの影響を低減させて測定を行うことが出来る。この “*measurement-before-destruction*” (あるいは散乱実験に主眼を置いて “*diffraction-before-destruction*” とも称される) というコンセプトは、2000 年に Neutze らが発表した先駆的なシミュレーションの研究 [102] に端を発している。彼らは、光子エネルギー 12 keV のパルス光が孤立蛋白質 (lysozyme) に照射された際のフェムト秒 X 線のダメージ過程のシミュレーションを行った。そしてパルス幅を 1 fs とした場合には、光子密度が  $6 \times 10^7$  photons  $\text{\AA}^{-2}$  以下であれば、電子系および構造への X 線ダメージが X 線構造解析に与える影響を無視できることを示した。この光子密度の値に対応した吸収線量は、冷却した蛋白質の構造解析における X 線照射の限界値 (20-40 MGy) [97] と比較して 5 桁も大きい。

Neutze らの研究以降、高強度の XFEL が物質に及ぼすダメージについての理論的な研究が精力的に行われてきた。例えば、X 線ダメージを定量的に評価するための物理モデルの開発や、それに基づく蛋白質 1 分子構造解析法の提案や可能性の検証などである [103–113]。より実験的な観点からの研究として、電子系や構造への X 線ダメージが存在する条件で散乱実験を行った場合の構造解析法の研究も発展しつつある [114,115]。さらに、XFEL が蛋白質 1 分子に照射された際の散乱像から分子の方位を特定する手法の開発、といった将来の 1 分子構造解析を視野にいたした研究も行われている [116–119]。

一方で実験に目を向けてみると、フェムト秒の X 線ダメージ過程を測定したという例はこれまでのところ報告されていない。そのため、実際の試料への X 線ダメージは既存の物理モデルで十分に説明されているのか、という XFEL を利用する計測のデザインや妥当性に関わる根本的な疑問が検証されていないのが現状である。実験によって X 線のダメージ過程を定量的に測定し、XFEL による物質の “破壊の物理” を明らかにすることは X 線科学を進展させるために極めて重要な研究課題である。

フェムト秒の時間スケールにおける X 線ダメージ過程を測定するために、本研究で

は SACLA の 2 色ダブルパルス発振技術 [32] を利用した X 線ポンプ・X 線プローブ法を考案し、そのデモンストレーション実験を行った [120]。この方法では、時間間隔を制御したダブルパルスの XFEL を発振させて、それぞれのパルスを試料にダメージを与える光（ポンプ光）、および X 線ダメージの時間発展を調べる光（プローブ光）として用いる。そして、ダブルパルスの時間間隔を変えながら、プローブ光によって試料の状態を調べることで X 線ダメージの進行の様子を捉える。

以下では、X 線ポンプ・X 線プローブ法の詳細と、ダイヤモンドのナノ結晶を試料としたデモンストレーション実験の結果について述べる。

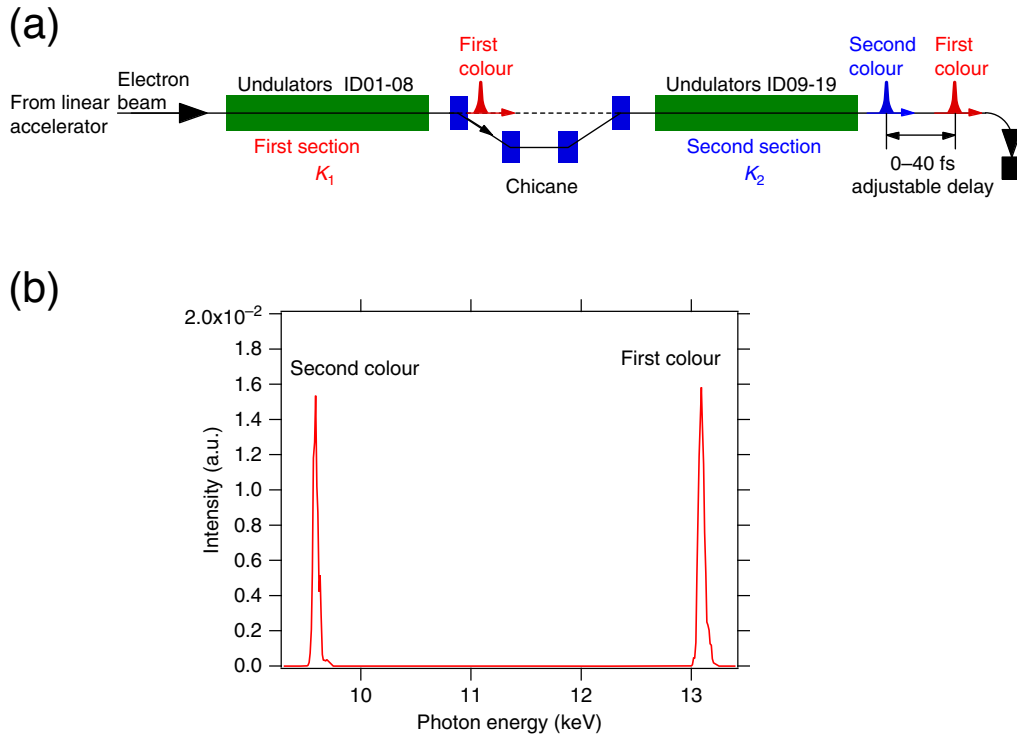
## 6.2 X 線ポンプ・X 線プローブ法の構成要素

### 6.2.1 ダブルパルスの XFEL 発振

ポンプ・プローブ法を実現するには、時間間隔を制御したダブルパルスが必要である。シングルパルスの FEL におけるダブルパルス発振は、極端紫外線や軟 X 線の領域において発展してきた [121–123]。X 線領域においては、ごく最近 SACLA や LCLS においていくつかの方法が実現したばかりである [32, 124, 125]。LCLS と比較した SACLA のダブルパルス発振の特徴は、ダブルパルスそれぞれの光子エネルギーを最大で数 keV 程度まで大きく離す事ができるということにある。以下で SACLA のダブルパルス発振の概要について述べる。

#### SACLA における 2 色ダブルパルスレーザー発振

**Fig. 6.2 (a)** に SACLA のダブルパルス発振の概略図を示す。SACLA のアンジュレータの 8 台目と 9 台目の間には磁場シケインが設置されている。これは元々ダイヤモンド結晶を利用したセルフシード [126, 127] を実現するために設置されたものである [128]。ダブルパルス発振モードでは、このシケインの前後でアンジュレータ列を上下流 2 つのセクションに分けて、それぞれのセクションで独立に XFEL を発振させる。そして、シケインで電子ビームを迂回させることで、上流から発振した XFEL と下流から発振した XFEL の間に時間差をつける。このダブルパルスは同じ電子ビームから発振するために、時間差の精度はおよそ数十アト秒と極めて高精度である。時間差の最大量は偏光電磁石の磁場の大きさと電子ビームのエネルギーによって決まっており、およそ数十 fs である。また、SACLA のアンジュレータは真空封止型であるために、上流と



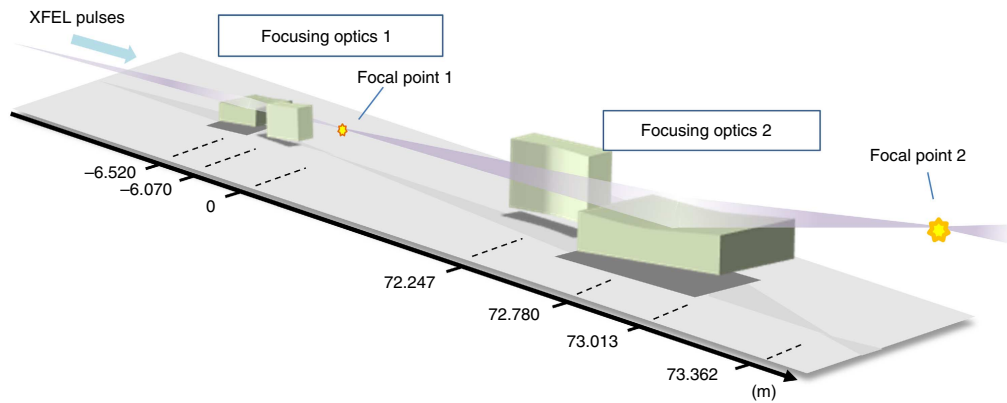
**Figure 6.2**

(a) Schematic illustration of the two color double pulse operation mode in SACLA. (b) An example of the XFEL spectrum in the two color double pulse operation [32].

下流のアンジュレータの  $K$  値を大きく異なった値にすることが出来る。これによって光子エネルギーが最大で数 keV 程度離れたダブルパルスの発振が可能になる。例として、電子ビームのエネルギーを 7.8 GeV、上流・下流の  $K$  値を 1.7, 2.15 とし 2 色ダブルパルスを発振させた際の 100 ショット平均のスペクトルを **Fig. 6.2 (b)** に示す [32]。上流・下流の中心光子エネルギーはそれぞれ 13.1 keV, 9.7 keV であり、3 keV 程度離れた 2 色のダブルパルスが発振している。

### 6.2.2 X線集光光学素子

X線ポンプ・プローブ法によって高強度の X 線と物質との相互作用を調べるためには、2 色のダブルパルスを集光光学素子と組み合わせることで高い X 線強度を達成することが重要である。現在、SACLA や LCLS においては、X 線の全反射現象を利用した集光ミラーや X 線の屈折現象を利用した複合屈折レンズが集光光学素子として用



**Figure 6.3**

Two-stage focusing system in SACLA [140].

いられている [129–135]。本研究では、**Fig. 6.3** に示した SACLA の 2 段集光システムによって 2 色のダブルパルスを集光する。

この集光システムでは、まず 1 対の Kirkpatrick-Baez (KB) 配置 [136] の集光ミラーによって一度 XFEL を集光する。そして、この集光点よりも下流に設置した、もう 1 対の KB 配置のミラーによって XFEL を集光する。上流の集光ミラーの役割は、XFEL のビームサイズを増加させることにある。通常、XFEL の角度発散は数  $\mu\text{rad}$  程度であるが、これを上流の集光ミラーによって数  $\text{mrad}$  程度にまで増加させることによって、下流の集光ミラー位置における XFEL のビームサイズを大きくする。このことによって大きな開口率を達成し、下流の集光ミラーによる集光サイズを小さくする。

この 2 段集光システムで SACLA の通常運転モードのシングルパルスを集光することで、現在の XFEL の世界最高強度である  $10^{20} \text{ W/cm}^2$  が達成されており、内殻励起原子レーザーの実証 [137]、X 線領域の 2 光子吸収 [138] や可飽和吸収現象 [139] の観測などの高強度 X 線と物質との相互作用に関する研究が行われている。

## 6.3 実験

### 6.3.1 試料

実験の試料は、SACLAの透過型強度計測計（ビームモニター）[141]に使用されているものと同様のダイヤモンドナノ結晶薄膜を用いた。この薄膜の厚みはおよそ15  $\mu\text{m}$ で、ナノ結晶の平均粒子サイズは30 nmである。薄膜試料は実験で用いた6 keV程度の光子エネルギーのX線に対して透過率が95%以上あるため[142]、ポンプ光・プローブ光に対してほとんど透明な物質とみなすことが出来る。

ダイヤモンド結晶をポンプ・プローブ法の試料として用いた理由は2点ある。まず、1点目はダイヤモンドが炭素-炭素結合から出来ていることにある。炭素-炭素結合は、言うまでもなく蛋白質や生体物質の骨格をつくる基本的な結合である。そのためダイヤモンドにおけるX線ダメージの時間発展の観測結果は、XFELの究極の目標の1つである1分子構造解析の実現に向けて、重要な知見となることが期待できる。

ダイヤモンドを試料として用いる2点目の理由は、X線による構造ダメージの有無をプローブ光の散乱強度から判断できるためである。**Fig. 6.4**はさまざまな電離状態の炭素原子の原子形状因子 $f$ を文献[143]から計算したものである。ここで、図中の括弧内の数字はそれぞれK殻・L殻に含まれる電子数を表している。また、 $q_{111}$ ,  $q_{220}$ は、111および220反射に対応する散乱ベクトルであり、その大きさは $q_{111} = 3.1 \text{ \AA}^{-1}$ ,  $q_{220} = 5.0 \text{ \AA}^{-1}$ である。この図から分かるように $q_{111}$ や $q_{220}$ における原子形状因子の大きさは、L殻の専有電子数に依らずほとんどK殻の専有電子数によって決まっている。これらの散乱ベクトルにおいては、K殻・L殻の専有電子数が $k, l$ の場合の原子形状因子を $f_{k,l}(q)$ と表すことにすると、 $f_{k,l}(q) \propto k$ なる関係が近似的に成り立つ。

次に、ポンプ光によるX線ダメージによって電離が進んだ炭素原子からなるダイヤモンドにプローブ光が照射されたときの111, 220反射の強度 $I_{111}, I_{220}$ について考えてみよう。プローブ光照射時にポンプ光による構造ダメージが起こっていない（原子位置の変位が起こっていない）と仮定すると、電離が起こっていない場合のプローブ光の111, 220反射強度を $I_{111}^{\text{undamaged}}$ と $I_{220}^{\text{undamaged}}$ として、

$$I_{111}/I_{111}^{\text{undamaged}} = \frac{\left[ \sum_{k,l} n(k,l) f_{k,l}(q_{111}) \right]^2}{[f_{2,4}(q_{111})]^2}, \quad I_{220}/I_{220}^{\text{undamaged}} = \frac{\left[ \sum_{k,l} n(k,l) f_{k,l}(q_{220}) \right]^2}{[f_{2,4}(q_{220})]^2} \quad (6.1)$$

なる関係が成り立つ。ただし、 $n(k, l)$  は全炭素原子数に占める  $K$  殻・ $L$  殻の専有電子数が  $k, l$  の炭素原子の割合を表している。 $f_{k,l}(q) \propto k$  の比例関係を用いると式 (6.1) は簡略化出来て、

$$I_{111}/I_{111}^{\text{undamaged}} = I_{220}/I_{220}^{\text{undamaged}} = (\bar{k}/2)^2 \quad (6.2)$$

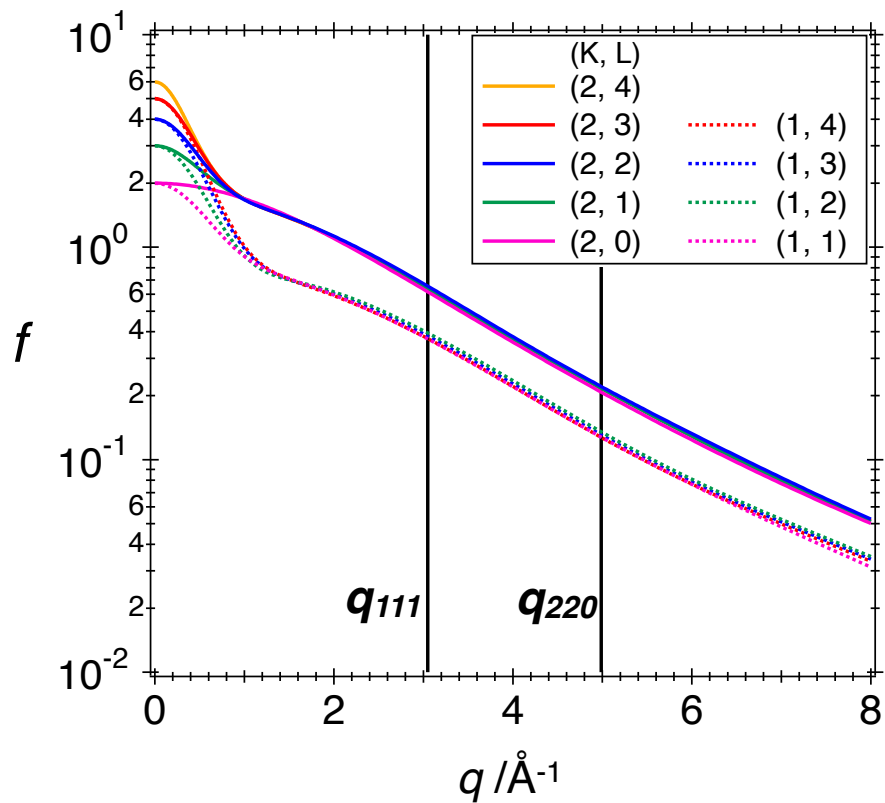
となる。ここで  $\bar{k} = \sum_{k,l} k \cdot n(k, l)$  は  $K$  殻の平均専有電子数である。この式から分かるように構造ダメージが起こっていない場合には、ダイヤモンドの Bragg 反射強度の減衰の割合は、111 反射と 220 反射で等しくなる。一方で、構造ダメージが存在する場合には 111 反射と 220 反射の反射強度の減衰の割合は異なる。そのため、ダイヤモンドを試料として用いた場合には、Bragg 反射の減衰の程度を 111 反射と 220 反射で比較することによって試料への構造ダメージの有無を明らかにすることが出来る。

### 6.3.2 実験配置と実験手順

実験配置の概略図を **Fig. 6.5** に示す。SACLA のダブルパルス発振モードによってシケインよりも上流側のアンジュレータで光子エネルギー 6.1 keV (波長: 2.03 Å) のポンプ光を発振させ、下流側のアンジュレータで光子エネルギー 5.9 keV (波長: 2.10 Å) のプローブ光を発振させた (**Fig. 6.5 (a)**)。ダブルパルスの時間間隔をシケインでの磁場の強さを制御することで 0.3 fs から 80 fs まで変化させて、それぞれの条件でポンププローブ実験を行った (時間間隔: 0.3, 0.5, 0.7, 1.5, 3, 6, 10, 20, 40, 60, 80 fs)。時間間隔の精度は、ショットごとの電子ビームエネルギーやシケインにおける磁場の揺らぎによってきまっており、0.1 fs 以下である。また、ポンプ光・プローブ光のパルス幅はシケインを利用した電子ビームの自己相関計測 [144] から約 5 fs と見積もられており、この値は XFEL のシングルショットスペクトルを利用したパルス幅評価の結果 [77] とよく一致している。

発振したダブルパルスを SACLA の 2 段集光システム [140] によって SACLA の第 5 実験ハッチ (EH5) において半値全幅 130 nm (水平)×200 nm (垂直) のサイズに集光し、集光点に置いたダイヤモンド薄膜からの水平方向への 111 および 220 面からの Bragg 反射を 2 つのシングルタイプの MPCCD 検出器 [70] によって測定した (**Fig. 6.5 (b)**)。このとき集光点から検出器までの距離は 111 反射は 205 mm、220 反射は 260 mm であった。ポンプ光とプローブ光の波長の違いによって Bragg 角が異なるため、この実





**Figure 6.4**

Atomic structure factors of neutral and ionized carbon atoms.  $K$  and  $L$  in the parentheses represent the number of occupied  $K$ -shell and  $L$ -shell electrons, respectively.  $q_{111}$  and  $q_{220}$  in the figure are the scattering vectors corresponding to the diamond 111 and 220 reflections, respectively.

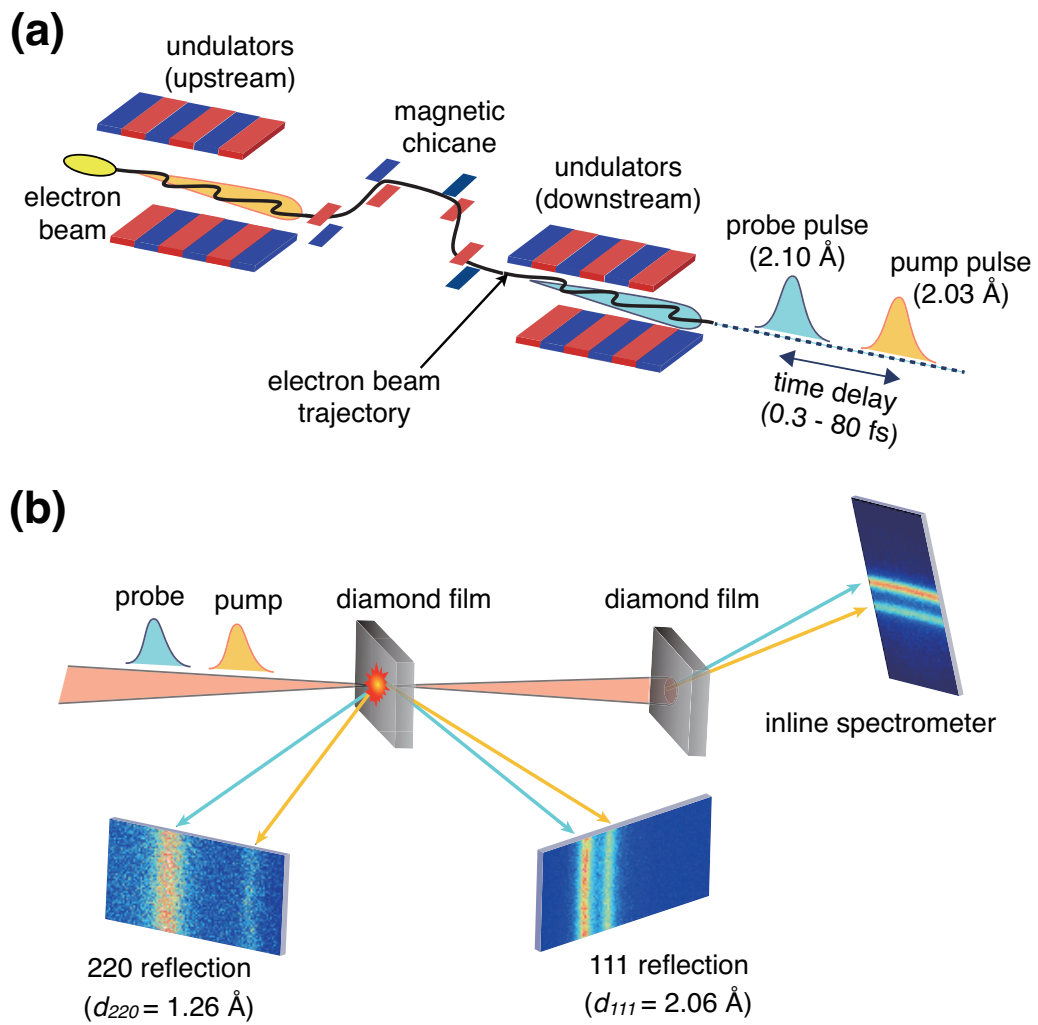


Figure 6.5

Schematic illustration of the X-ray-X-ray pump-probe experiment.

験ではポンプ光とプローブ光の Bragg 反射強度を分離して測定することができる。1 度のダブルパルス照射でダイヤモンド薄膜に数  $\mu\text{m}$  程度の穴が開く様子が観測されたため、ショットごとに試料の新しい場所に X 線が照射されるように試料を動かしながら各ダブルパルスの時間間隔の実験条件で各々 12000 ショット程度の散乱像を測定した。

また、ポンプ光とプローブ光のショット毎の強度を評価するために、集光点から 5.5 m 下流に試料と同じダイヤモンド薄膜と MPCCD からなるスペクトロメータを設置した。このスペクトロメータでは、試料からの透過光をダイヤモンドに照射してポンプ光・プローブ光による 111 反射を測定し、それぞれの光由来の積分反射強度を求める。この積分強度を EH5 の透過型強度計測計（ビームモニター）の出力と対応させることで、ポンプ光・プローブ光の集光点におけるパルスエネルギーをショット毎に決定した。

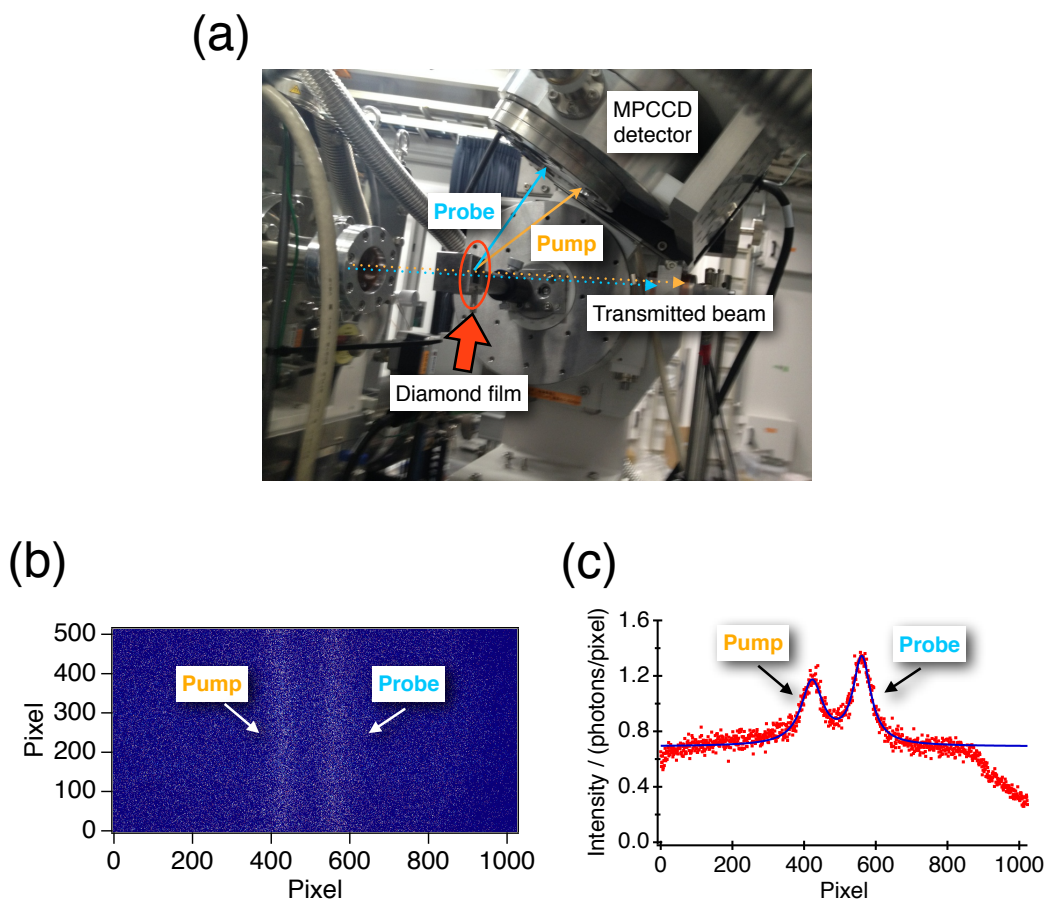
## 6.4 結果と考察

### 6.4.1 各ショットの X 線強度の評価

解析の第一段階として集光点の下流においたスペクトロメータメータ (**Fig. 6.6 (a)**) によって、各ショットのポンプ光・プローブ光の X 線強度を評価した。**Fig. 6.6 (b)** にシングルショットでの MPCCD 画像の例を示す。画像の長手方向は散乱角の大きさ（ピクセルインデックスが大きくなるにつれて散乱角が大きくなる）に対応しており、短手方向は実験配置における水平方向に対応している。この 2 次元画像を縦方向に足し合わせた後に縦方向のピクセルの数 (512) で規格化すると **Fig. 6.6 (c)** の赤点で示したようなラインプロファイルが得られた。プロファイルにおける 2 つのピークはそれぞれポンプ光・プローブ光に由来した Bragg 反射である。この図においてピクセルが 900 から 1000 の領域は強度が弱くなっている様子が見られるが、これはダイヤモンドを保持しているホルダーがこの方向に散乱される X 線を遮っていることによるものである。

ポンプ光・プローブ光の Bragg 反射の積分回折強度は、このラインプロファイルを 2 つのローレンツ関数とベースラインの和:

$$L(i) = \frac{I_0(\text{pump})}{\pi\gamma_{\text{pump}} \left[ 1 + \left( \frac{i-i_{\text{pump}}}{\gamma_{\text{pump}}} \right)^2 \right]} + \frac{I_0(\text{probe})}{\pi\gamma_{\text{probe}} \left[ 1 + \left( \frac{i-i_{\text{probe}}}{\gamma_{\text{probe}}} \right)^2 \right]} + B \quad (6.3)$$



**Figure 6.6**  
(a) A photograph of the spectrometer located downstream of the focal point. (b) Typical single-shot MPCCD image. (c) Line profile of (b) and its fitted result by eq. (6.3).

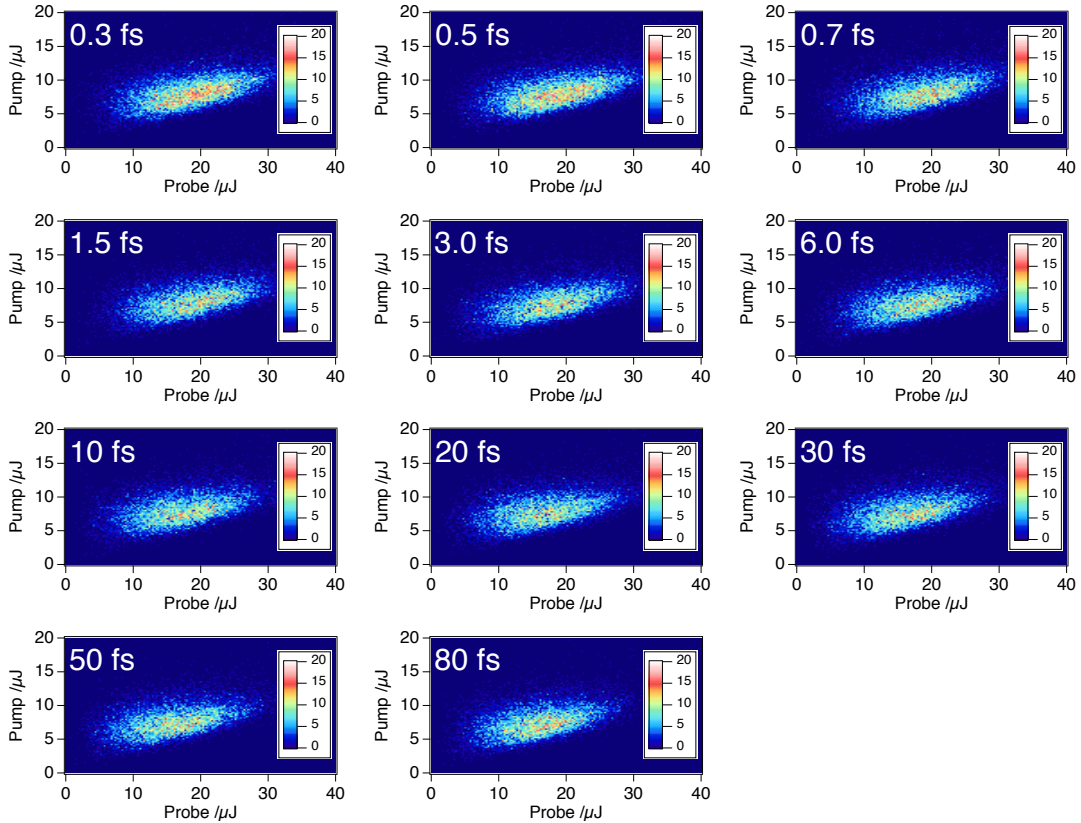
でフィッティングすることによって求めた。ここで、 $i$ はピクセルインデックス、 $L$ は各ピクセル位置における X 線強度 (**Fig. 6.6 (c)** の縦軸)、 $B$ はベースライン、 $i_{\text{pump}}$  ( $i_{\text{probe}}$ ),  $I_0(\text{pump})$  ( $I_0(\text{probe})$ ),  $\gamma_{\text{pump}}$  ( $\gamma_{\text{probe}}$ ) はそれぞれポンプ光 (プローブ光) の Bragg 反射ピーク位置に対応したピクセル、積分強度、ピーク幅を表している。Bragg 反射の近傍 (**Fig. 6.6 (c)** のピクセルインデックスが 300 から 700 の範囲) のラインプロファイルを式 (6.3) でフィッティングした結果、**Fig. 6.6 (c)** の青線で示すような実験データをよく再現できるフィッティング曲線が得られた。

次に、それぞれのダブルパルスにおける  $I_0(\text{pump})$ ,  $I_0(\text{probe})$  と EH5 のビームモニターの測定結果を利用して積分回折強度からパルスエネルギーへの変換係数を求めた。このビームモニターは、透過型ダイヤモンドの後方散乱強度をフォトダイオードによって測定するもので、ショット毎にフォトダイオードの電荷量  $Q$  を出力する。SACLA の通常運転の場合 (単色の XFEL が発振する場合)、フォトダイオードの電荷量  $Q$  と XFEL のパルスエネルギー  $E$  の間には比例関係  $E = RQ$  が成り立つ。比例定数  $R$  はポンプ光の光子エネルギー (6.1 keV) では  $R_{\text{pump}} = 7.2 \times 10^4$  J/C、プローブ光の光子エネルギー (5.9 keV) では  $R_{\text{probe}} = 6.4 \times 10^4$  J/C である。2 色のダブルパルスがビームモニターに入射した場合、フォトダイオードの電荷量  $Q$  はポンプ光およびプローブ光による電荷量  $Q_{\text{pump}}$ ,  $Q_{\text{probe}}$  の和となる。また、それぞれの電荷量は  $I_0(\text{pump})$ ,  $I_0(\text{probe})$  に比例するので、 $Q$  は比例定数  $C_{\text{pump}}$ ,  $C_{\text{probe}}$  を介して

$$Q = C_{\text{pump}}I_0(\text{pump}) + C_{\text{probe}}I_0(\text{probe}) \quad (6.4)$$

と表すことができる。各ダブルパルス毎に測定した  $Q$ ,  $I_0(\text{pump})$ ,  $I_0(\text{probe})$  をこの関係式でフィッティングすることによって電荷量と積分回折強度の間の比例定数  $C_{\text{pump}}$ ,  $C_{\text{probe}}$  を求めた。さらに、この比例定数をそれぞれ  $R_{\text{pump}}$ ,  $R_{\text{probe}}$  で乗じることによって、ポンプ光 (プローブ光) の積分回折強度からポンプ光 (プローブ光) のパルスエネルギーへの変換係数を決定した。

この変換係数を利用して求めた、ダブルパルスの各時間間隔条件でのポンプ光とプローブ光のパルスエネルギーについてのヒストグラムを **Fig. 6.7** に示す。それぞれの図でショット数の合計は 12000 である。各時間間隔条件でのポンプ光とプローブ光のパルスエネルギーのヒストグラムは、ほとんど同一のものになった。このことは、磁場シケインにおいて電子ビームの時間構造の変化やエミッタンスの増加などといった電子ビームの質の劣化が起こっていないことを意味している。また、ポンプ光とプローブ光のショットごとの強度の揺らぎが非常に大きいことが分かった。単色の XFEL を



**Figure 6.7**

Histograms of the pump and the probe pulse energies for different time delays.

発振する通常の SACLA の運転モードでは、パルスエネルギーの変動係数(標準偏差を算術平均で割ったもの)はおおよそ 10%程度である。一方で、ヒストグラムから分かるようにダブルパルス発振モードにおけるポンプ光・プローブ光のパルスエネルギーの変動係数は 10%よりも明らかに大きい(ポンプ光・プローブ光の変動係数はそれぞれ 25%、30%程度)。この理由はダブルパルス発振モードでは発振に寄与するアンジュレータの台数が少ないために、XFEL 増幅が飽和に達しておらず、電子ビームのパルス毎の時間構造の微妙な違いが出力に大きく影響を与えるためであると考えられる。

#### 6.4.2 ダブルパルスの時間間隔を変えた際の散乱像の変化

6.4.1 の手順によってスペクトロメータから各ダブルパルスにおけるポンプ光・プローブ光のパルスエネルギーが評価できるようになった。ところで、XFEL のダメージ過程においてダメージの大小を左右するのは XFEL のパルスエネルギーではなく、

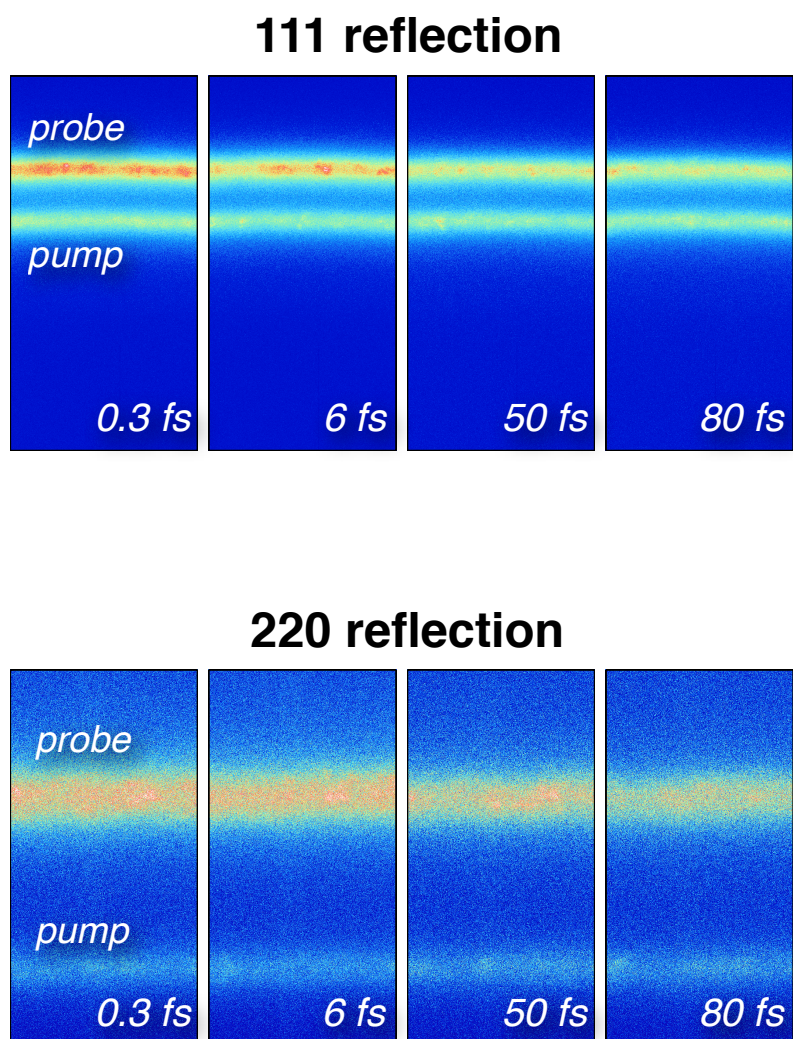
エネルギー密度、すなわちフルーエンスである。そこで以下では、ポンプ光・プローブ光の強さを表す尺度として、それぞれの光のパルスエネルギーを集光サイズで割ることで算出したフルーエンスを用いることにする。

特定のフルーエンスを持つポンプ光・プローブ光が試料に照射されたときにダブルパルスの時間間隔によって集光点においたダイヤモンドからの 111 および 220 反射の散乱強度がどのように変わるのかを見ていこう。**Fig. 6.8** はポンプ光・プローブ光のフルーエンスがそれぞれ  $(3.1 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ,  $(6.9 \pm 1.1) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$  の範囲に含まれるダブルパルスについて、その 111 および 220 反射の散乱像を平均したものである。両方の反射の散乱像において画像の縦方向が散乱角の大きさに対応しており(画像の上方向が散乱角が大きくなる向き)、横方向が実験配置における垂直方向に対応している。いずれの反射においても、ダブルパルスの時間間隔が大きくなるにつれてプローブ光の反射強度が小さくなっていることがこれらの画像から分かる。このことはポンプ光照射によって誘起されたダメージがフェムト秒の時間スケールで進行していくことの明確な証拠である。

### 6.4.3 X 線ダメージの時間発展過程の定量評価

次に、ダブルパルスの時間間隔を変えた際のプローブ光の散乱強度の変化を調べることで、X 線ダメージの時間発展過程の評価を行なった。まず、特定のフルーエンスのダブルパルスについて平均散乱像を計算した。そして、その 1 次元化した散乱強度を以下のようにして算出した。まず、散乱像の各ピクセルの散乱強度を実験配置によって決まる偏光因子で割ることで、X 線の偏光方向に起因する散乱強度の減少を補正した。そして、散乱像の短手方向(実験における垂直方向)の散乱強度を平均することで 1 次元の散乱強度プロファイルを求めた。**Fig. 6.9** は、**Fig. 6.8** の散乱像それぞれを 1 次元化したものである。参考のために、各ピクセルに対応する散乱角  $2\theta$  も合わせて示している。111, 220 のどちらの反射についても、ダブルパルスの時間間隔が異なってもポンプ光によるブラッグ反射強度はほとんど変わらない。一方で、プローブ光の反射強度は 6.4.2 で述べたとおり、ダブルパルスの時間間隔が大きくなるにつれて小さくなる。1 次元の散乱強度プロファイルは、散乱角に依存しないフラットなベースラインにポンプ光・プローブ光の Bragg 反射由来のピークが加わった形状をしている。そこで、これらの 1 次元強度プロファイルを 2 つのローレンツ関数とベースライ





**Figure 6.8**

Scattering images of the diamond 111 and 220 reflections at time intervals between the pump and the probe pulses of 0.3 fs, 0.6 fs, 50 fs, and 80 fs, which are averaged over multiple shots with specific fluences of the pump [ $(3.1 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ] and the probe [ $(6.9 \pm 1.1) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ] pulses.



ンの和で表される関数:

$$L(i) = \frac{I_{\text{pump}}}{\pi\gamma_{\text{pump}} \left[ 1 + \left( \frac{i-i_{\text{pump}}}{\gamma_{\text{pump}}} \right)^2 \right]} + \frac{I_{\text{probe}}}{\pi\gamma_{\text{probe}} \left[ 1 + \left( \frac{i-i_{\text{probe}}}{\gamma_{\text{probe}}} \right)^2 \right]} + B \quad (6.5)$$

でフィッティングすることで、111 および 220 反射のポンプ光・プローブ光の積分回折強度を求めた。ここで、 $i$  はピクセルインデックス、 $L$  は各ピクセル位置における X 線強度、 $B$  はベースライン、 $i_{\text{pump}}$  ( $i_{\text{probe}}$ ),  $I_{\text{pump}}$  ( $I_{\text{probe}}$ ),  $\gamma_{\text{pump}}$  ( $\gamma_{\text{probe}}$ ) はそれぞれポンプ光 (プローブ光) の Bragg 反射ピーク位置に対応したピクセル、積分強度、ピーク幅を表している。

各ダブルパルスの時間間隔条件でのプローブ光の散乱強度を定量的に比較するためには、サンプルの厚みの不均一性や入射光のポンプ光・プローブ光の強度の違いを補正する必要がある。そこで、これらの要素を補正したプローブ光の 111, 220 反射強度  $I_{111}$ ,  $I_{220}$  を次の定義式によって計算した:

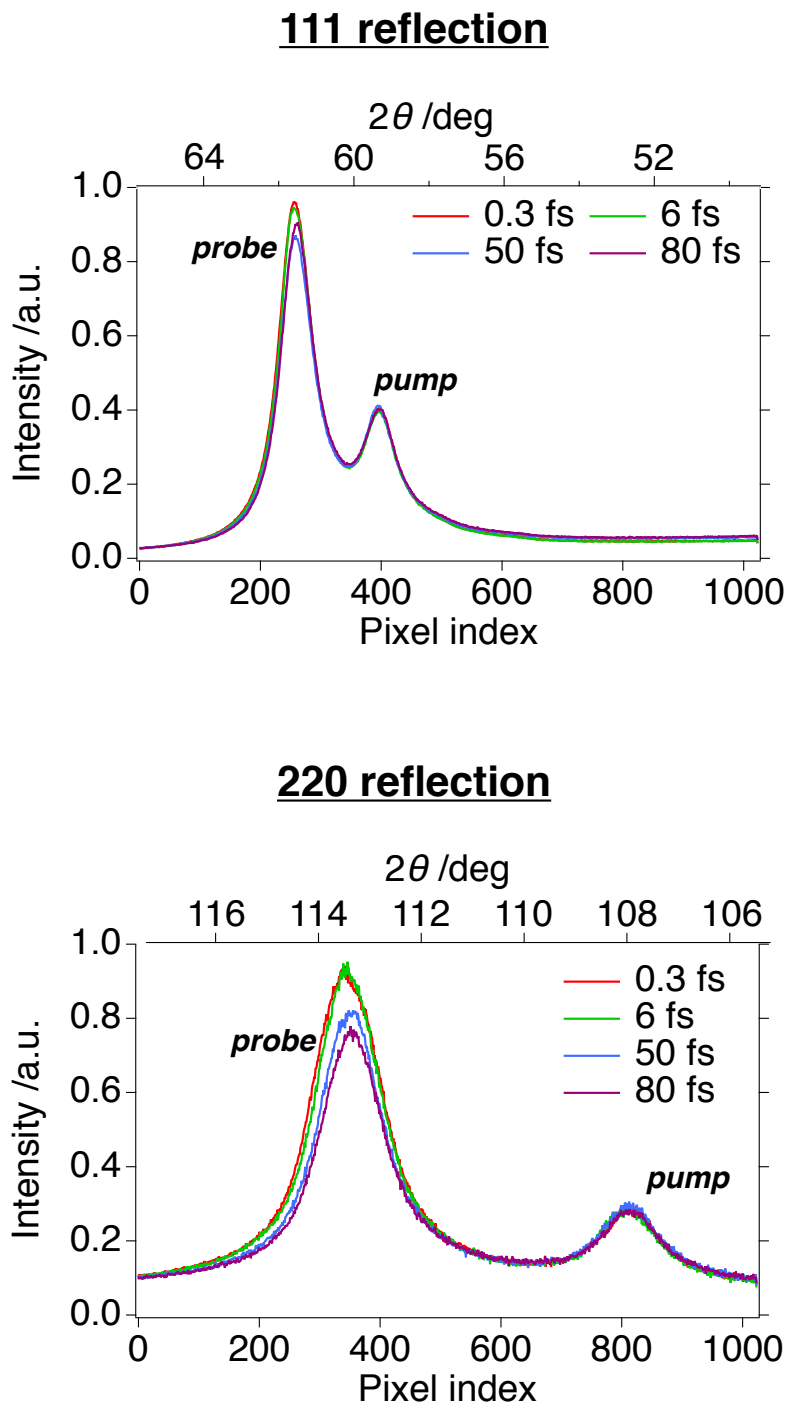
$$I_{111} = \frac{I_{\text{probe}}(111)/I_0(\text{probe})}{I_{\text{pump}}(111)/I_0(\text{pump})}, \quad (6.6)$$

$$I_{220} = \frac{I_{\text{probe}}(220)/I_0(\text{probe})}{I_{\text{pump}}(220)/I_0(\text{pump})}. \quad (6.7)$$

ここで  $I_0(\text{pump})$  ( $I_0(\text{probe})$ ) は試料下流のスペクトロメータにおけるポンプ光 (プローブ光) の積分強度の平均値、 $I_{\text{pump}}(111)$ ,  $I_{\text{pump}}(220)$  ( $I_{\text{probe}}(111)$ ,  $I_{\text{probe}}(220)$ ) は、式 (6.5) によって求めた試料からのポンプ光 (プローブ光) の 111 反射, 220 反射の積分強度である。式 (6.6) や (6.7) の分母はサンプルの厚みを補正する項である。

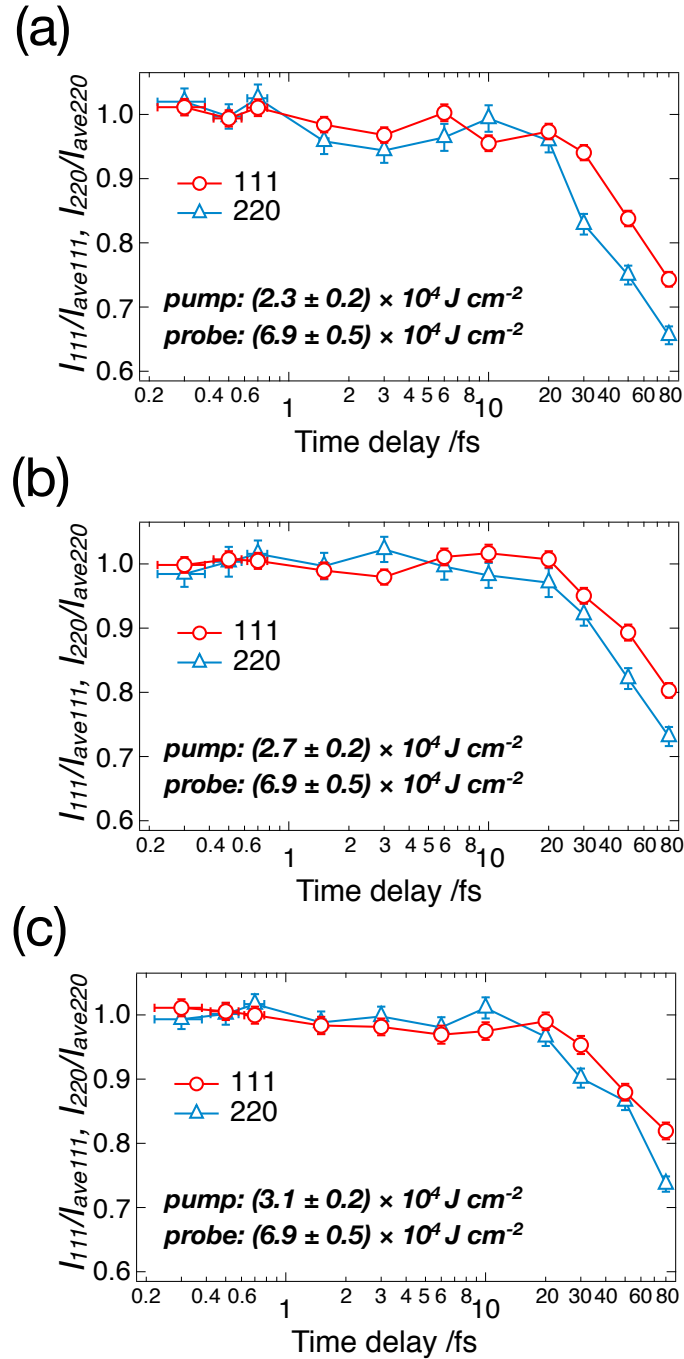
次に、様々なポンプ光・プローブ光のフルーエンス条件のもとで、補正後のプローブ光の 111, 220 反射強度  $I_{111}$ ,  $I_{220}$  のポンプ光照射後の時間変化を評価した。例として **Fig. 6.10** に、ポンプ光のフルーエンスが **(a)**  $(2.3 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ , **(b)**  $(2.7 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ , **(c)**  $(3.1 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ 、プローブ光のフルーエンスが  $(6.9 \pm 0.5) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$  の範囲に含まれるダブルパルスについてのプローブ光の 111, 220 反射強度の時間変化を示す。ただし、これらの図において、プローブ光の 111, 220 反射強度はダブルパルスの時間間隔が短い 4 条件 (0.3, 0.5, 0.7, 1.5 fs) の場合の平均値 ( $I_{\text{ave}111}$ ,  $I_{\text{ave}220}$ ) で規格化している。**Fig. 6.10 (a)-(c)** の 3 つの図すべてにおいて、プローブ光の 220 反射強度は 111 反射強度と比較して、大きく減衰する傾向がある。

前述のとおり、ダイヤモンド中の炭素原子の位置が変わらず、その電子構造が変わっている場合には 111 反射と 220 反射の減衰の割合は等しくなる。そのため、**Fig. 6.10** の結果はポンプ光の照射後に炭素原子の変位が起こっていることを意味している。



**Figure 6.9**

Intensity profiles of the 111 and 220 reflections calculated by horizontally integrating the detector signal of **Fig. 6.8** after compensating the effect of XFEL polarization on the diffraction intensities.

**Figure 6.10**

Dependence of the probe diffraction intensities of the 111 and 220 reflection on the time delay for specific fluences of the pump [(a)  $(2.3 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ , (b)  $(2.7 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ , and (c)  $(3.1 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ] and the probe [ $(6.9 \pm 0.5) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ] pulses.

### 炭素原子の内殻イオン化がプローブ光の散乱強度に与える影響

ここまでで、ポンプ光の照射後に炭素原子の変位が起こることが明らかになったが、ポンプ光による光電吸収やその後の電子雪崩による炭素原子のイオン化もプローブ光反射強度の減衰に寄与している可能性がある。ここでは、ポンプ光が引き起こす炭素原子のイオン化がプローブ光の散乱強度がどの程度影響を与え得るかについて考える。

今回の実験条件であるフルエンスが $3 \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ のポンプ光がダイヤモンドに照射されると、炭素原子のうち0.7%が光電吸収によって内殻のイオン化が起こり [142]、同時にポンプ光とほとんど同じエネルギー (6 keV 程度) を持つ光電子が放出される。この光電子が周りの束縛電子と衝突し、電子を原子から剥ぎ取ること (電子-電子衝突) によって原子のイオン化が進行する。この電子-電子衝突によって6 keVの光電子は徐々にエネルギーを失っていく。シミュレーションによると、光電子は放出後1 fs程度で炭素原子のK殻の束縛エネルギー (273 eV) よりも小さくなり、内殻電子をイオン化出来なくなる [145]。また、同じシミュレーションによって、光電子の放出後1 fsまでに1つの光電子当たり約30個の束縛電子が原子から剥ぎ取られると計算されている。エネルギーが273 eVから6 keVの範囲にある電子については、どの電子エネルギーにおいても電子と炭素原子のK殻との衝突イオン化断面積はL殻とのそれと比較して1%以下である [146]。そのため、1つの光電子が剥ぎ取ることが出来る炭素原子のK殻電子は高々0.3個である。よって、全炭素原子のうち電子-電子衝突によって内殻がイオン化されたものの割合は0.2%以下である。光電吸収による内殻イオン化と合わせても、ポンプ光照射中および照射後において全炭素原子のうち内殻空孔を持つものの割合は最大でも1%と見積もられる。これは、プローブ光の散乱強度が1%程度減少することに対応しているが、今回の実験におけるポンプ光照射後のプローブ光の散乱強度の減少の度合いと比較すると無視できるほど小さい。そのため、プローブ光の散乱強度の減少はポンプ光が引き起こす構造へのダメージ (原子変位) によるものであり、ポンプ光による電子系へのダメージは無視できると考えることができる。

### Debye-Waller model による原子変位の評価

次に、Debye-Waller モデル [147] によってプローブ光の Bragg 反射強度からポンプ光照射後のダイヤモンドの原子変位の時間変化を評価した。このモデルは各原子が結晶格子点を中心とした原子変位をしており、尚且つ各原子の変位量は相関を持たないことを仮定したものである。この場合、Bragg 面に垂直な方向の原子変位の二乗平均平

方根 (root mean square; rms) を  $\sigma$  とすると、Bragg 反射強度は  $\exp(-q^2\sigma^2)$  に比例する。今回の実験では、ダブルパルスの時間間隔が短い場合 (0.3, 0.5, 0.7, 1.5 fs) にはプローブ光の散乱強度はほとんど変わらない。そこで、ダブルパルスの時間間隔が短い場合、原子変位の rms は室温におけるダイヤモンドの原子変位の rms である  $\sigma_0 = 0.043 \text{ \AA}$  [148] と等しいと仮定した。この過程の下では、各時間間隔条件における  $I_{111}, I_{220}$  とそれぞれの反射面に垂直な方向の原子変位の rms,  $\sigma_{111}, \sigma_{220}$ , との間に

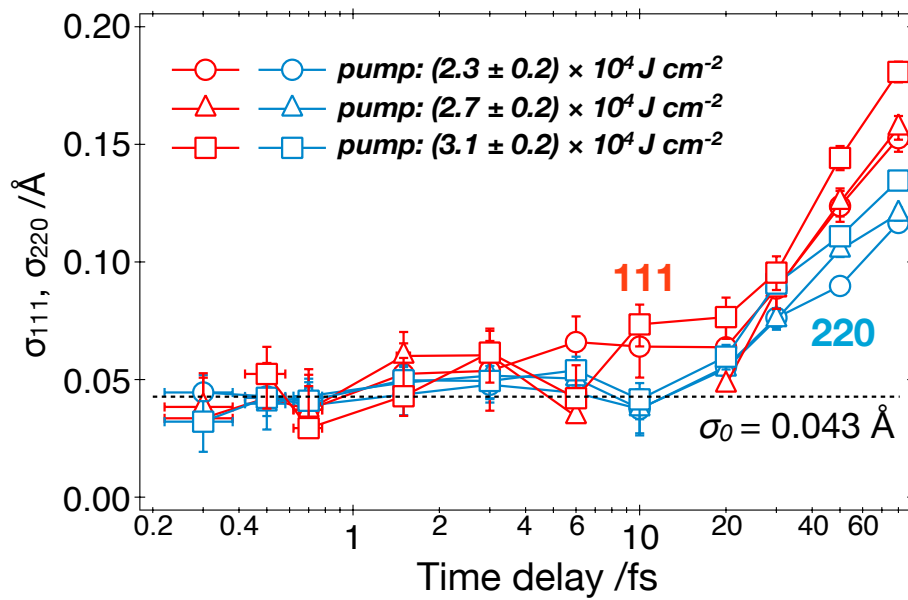
$$I_{111}/I_{ave111} = \frac{\exp(-q_{111}^2\sigma_{111}^2)}{\exp(-q_{111}^2\sigma_0^2)}, \quad I_{220}/I_{ave220} = \frac{\exp(-q_{220}^2\sigma_{220}^2)}{\exp(-q_{220}^2\sigma_0^2)} \quad (6.8)$$

なる関係が成り立つ。ここで、 $q_{111} = 3.1 \text{ \AA}^{-1}$ ,  $q_{220} = 5.0 \text{ \AA}^{-1}$  はそれぞれ 111, 220 反射に対応した散乱ベクトルである。

この関係を用いてポンプ光のフルーエンスが、 $(2.3 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ,  $(2.7 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ,  $(3.1 \pm 0.2) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$  の範囲に含まれる 3 条件についてポンプ光照射後の原子変位の時間変化を求めた。その結果を **Fig. 6.11** に示す。ただし、この原子変位は、それぞれのポンプ光のフルーエンス条件においてプローブ光のフルーエンスが  $(5.9 \pm 0.5) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ,  $(6.9 \pm 0.5) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$ ,  $(7.9 \pm 0.5) \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$  の 3 つの範囲に含まれた場合の原子変位の平均値として求めたものである。ポンプ光照射後 20 fs 程度までは、X 線ダメージによる原子変位の増加は顕在化していない。一方で、ポンプ光照射後 20 fs 以降に原子変位が増加していく様子が観測された。この結果は、高強度 X 線による物質へのダメージの時間発展を定量的に測定した初めての研究例である。興味深いことに、111 反射に垂直な方向の原子変位と 220 反射に垂直な方向の原子変位の大きさが異なるという傾向が見られた。この理由としては、各原子は独立に変位しているのではなく原子間の相関が無視できないこと (いわゆる第 2 種の乱れ [149]) などが挙げられる。しかし、実験で観測された原子変位の異方性のメカニズムを今回の実験のみから明らかにすることは難しい。今後、高次の Bragg 反射についての X 線ポンプ・X 線プローブの実験を行うことや、ポンプ光のエネルギーを変えた際の X 線ダメージの振る舞いを観測することによって X 線ダメージ過程の詳細な理解が進むことが期待される。

#### 6.4.4 高強度 X 線による構造解析についての考察

高強度 X 線を利用した構造解析では、パルスの時間幅の中で原子位置の変位が起こらないようにする必要がある。最後に、現在の XFEL のパルス幅の条件下で、原子



**Figure 6.11**

Temporal changes of the atomic displacement in diamond after irradiation of the probe pulses. The atomic displacements of carbon atoms in diamond are estimated using a simple Debye-Waller model. The atomic displacement of carbon atoms in diamond in the undamaged state ( $\sigma_0 = 0.043 \text{ \AA}$ ) is also shown for the comparison.

変位無しの散乱測定が可能な XFEL のフルーエンスについて考えてみる。今回の実験では、フルーエンス  $3 \times 10^4 \text{ J cm}^{-2}$  のポンプ光が試料に照射されてから 20 fs 程度の間、原子位置の変位が顕在化しないことが分かった。一方で、分子動力学法 (Molecular Dynamics; MD) を用いたシミュレーション研究によると、X 線照射による原子移動距離はフルーエンスの 1/2 乗に比例するという結果が得られている [147, 150]。現在の XFEL のパルス幅は数 fs 程度であるため、今回の実験のフルーエンスよりも 2 桁程度大きなフルーエンス ( $10^6 \text{ J cm}^{-2}$  から  $10^7 \text{ J cm}^{-2}$  程度) の光が試料に照射されてもパルス幅の中での原子変位は起こらないと考えられる。光子エネルギー 6 keV における  $10^7 \text{ J cm}^{-2}$  のフルーエンスは光子密度に直すと、 $10^6 \text{ photons \AA}^{-2}$  である。

シミュレーションによると、分子量 500 kDa の蛋白質 1 分子に光子エネルギー 12 keV、光子密度  $10^6 \text{ photons \AA}^{-2}$  の XFEL が照射された場合、分子の向きが分かっている場合でもその散乱像から分子の方位を決定することが出来る [118]。実験の結果から推測された光子密度の上限値は、分子方位を決定するための光子密度の条件を満たす。分子方位が散乱像から決定できれば、多数の散乱像を測定して各分子方位に対応した散乱像をそれぞれ足し合わせることによって、原子分解能で分子構造を決定することが出来る。そのため間接的ではあるが、実験結果は XFEL を利用した原子分解能の X 線 1 分子構造解析の可能性を支持している。

## 6.5 結論と今後の展望

XFEL によるフェムト秒の時間スケールにおける試料へのダメージ過程を明らかにするために、SACLA の 2 色ダブルパルス発振技術と X 線ミラーを組み合わせた X 線ポンプ・X 線プローブ法という方法を提案・開発した。この方法では、ダブルパルスそれぞれを試料にダメージを与えるポンプ光、X 線ダメージの時間発展を調べるプローブ光として用いる。そして、ダブルパルスの時間間隔を変えながらプローブ光を用いて試料からの信号を測定することで、X 線ダメージの時間発展を計測する。

この方法を用いてダイヤモンドを試料としたデモンストレーション実験を行った。その結果、プローブ光による Bragg 反射強度がポンプ光照射後 20 fs まではほとんど変わらず、20 fs 以降に強度が減衰していく様子が観測された。このことは今回の実験条件では、ポンプ光照射後 20 fs までは構造への X 線ダメージ (原子位置の変位) が顕在化しないことを意味している。この実験結果は、フェムト秒の時間スケールにおいて X 線ダメージが進行する様子を捉えた初めての実験結果である。さらに、実験結

果をシミュレーションから予測されているX線フルーエンスと原子位置の変位量との間に成り立つスケリング則と合わせることによって、蛋白質1分子構造解析が可能であることが示唆された。

最後にX線ポンプ・X線プローブ法に関する今後の展望について述べる。本研究の次の応用先として考えられるのは、電子系へのX線ダメージ過程の観測である。電子系へのX線ダメージは、今回の実験と比較して更なる高強度のXFELを使う場合や、特定の原子の吸収端付近で実験を行う場合において無視できない。電子系へのダメージによって各原子がイオン化されると、その原子形状因子が大きく変化する[105,151,152]。さらに、電離した自由電子によるX線の散乱は、試料からの散乱に様なバックグラウンドを加算するため、試料の構造情報を含んだ散乱信号が埋もれてしまう可能性がある。そのため、フェムト秒の時間スケールにおける(i)電離イオンの価数と割合の時間変化、(ii)電子雪崩によって起こる自由電子数の増加の様子、を理解することはXFELを利用した計測学を発展するために重要な研究課題と言える。

(i)を測定するためには、プローブ光を利用した発光分光が有効な手段である。イオン化した原子においては、原子核の電荷の遮蔽効果が弱まるために、電子の束縛エネルギーが大きくなる。その結果、プローブ光によって内殻電子を励起した後の緩和過程において放出される発光X線の光子エネルギーは、イオンの状態によって異なる。そのため、発光スペクトルの測定から生成された電離イオンについての情報を得ることが出来る。実際に、パルス幅の長い(80 fs)軟X線のFELをアルミニウムに照射した際に、イオンの状態に応じて様々な波長の光が放出されることが報告されている[153]。(ii)の測定には、プラズマ診断の分野でX線トムソン散乱法と呼ばれている手法[154-156]が有効である。この方法では、自由電子によって散乱されたプローブ光のスペクトル広がりを見計測する。それぞれの自由電子は、その速度に応じてエネルギーをシフトした散乱X線を放出する。そのため散乱X線のスペクトルを見計測することで、生成された自由電子の密度やその速度分布が分かる。

フェムト秒のX線ダメージ過程の理解は、XFELを利用する計測のデザインや妥当性に関わる根本的な研究課題である。X線ポンプ・X線プローブ法は、XFELによる物質の“破壊の物理”の解明に大きく貢献し得る。この手法によって信頼できる実験結果を測定し、理論にフィードバックすることによって高強度X線科学の進展が期待できる。



## 第7章 結論

本研究では、X線自由電子レーザーから放出されるX線やX線を発生させている電子ビームの特性、さらにXFELと物質との相互作用を精確に理解するために、3つの新しい計測技術の開発およびSACLAにおける実証実験を行なった。本章では研究で得られた結論について述べる。

まず、第1の計測法としてXFELの特徴である高い空間コヒーレンスを測定するための“拡張型ヤングの実験”を考案した。この方法では、元々のヤングの実験で用いられているダブルスリットの代わりに大きさの異なる大小2つの球状粒子からの散乱波干渉の様子を測定する。そして、干渉縞のvisibilityを各散乱角ごとに求め、その最大値から2つの粒子位置のXFELに対応した空間コヒーレンス度を決定する。この方法は2粒子位置におけるX線強度の情報なしに空間コヒーレンス度を決定することが出来るため、ショットごとにX線強度の空間分布が異なるXFELの光の空間コヒーレンス評価が可能になる。

以上の原理に基づいてSACLAからの光子エネルギー6 keVの空間コヒーレンス評価を行なった。XFELをミラー光学系によって半値幅 $1.8\ \mu\text{m}$  (水平) $\times 1.3\ \mu\text{m}$  (垂直)のサイズに集光し、集光点に粒子半径50 nmと75 nmの2種類の球状金粒子を含むコロイド溶液を導入した。ショットごとに測定した散乱像をフーリエ変換することで2粒子からの散乱像を抽出し、それぞれについて散乱角ごとのvisibilityを解析することによって、XFELビームの2点間の位置の関数として空間コヒーレンス度を決定した。そして、実験から得られた空間コヒーレンス度の粒子間距離依存性を2次元ガウス関数でフィッティングすることによって、空間コヒーレンス長を $1.7\pm 0.2\ \mu\text{m}$  (水平)および $1.3\pm 0.1\ \mu\text{m}$  (垂直)と評価した。この結果からXFELの集光ビームサイズと空間コヒーレンス長がほとんど等しく、XFELがビーム全体に渡って可干渉であることが明らかになった。さらに、空間コヒーレンス長と集光XFELのビームサイズの比が水平・垂直方向でほとんど等しいことが明らかになった。非集光のXFELは等方的なビームプロファイルを持つため、実験の結果は非集光のXFELがビーム光軸に垂直な平面において等方的な空間コヒーレンス特性をもっていることを示唆している。最後に、ビー

ムサイズと実験で測定された空間コヒーレンス長を用いて XFEL の空間モード数を評価した。その結果、SACLA からの 6 keV の XFEL の空間モードの数  $M$  が  $M = 1.8$  と見積もられた。空間モードの数が明らかに 1 よりも大きいことから、SACLA からの XFEL において高次の空間モードが X 線強度に寄与していることが明らかになった。以上の結果は、XFEL における初めての定量的な空間コヒーレンス度の測定結果である。本研究で開発した拡張型ヤングの実験は XFEL の質を評価する新しいものさしである。

次に、第 2 の計測法として電子バンチの時間構造を評価するための“X 線強度干渉法”を考案した。X 線強度干渉法では、電子バンチがアンジュレータ 1 台を通過した際の放射光を Si 結晶によって分光して、パルス毎の X 線強度の空間プロファイルを 2 次元検出器によって測定する。そして、積分強度相関関数によって異なる位置の X 線の強度干渉の程度を評価する。様々な分光結晶を用いてコヒーレンス時間を変えた時の積分強度相関関数を測定することによって、電子バンチの時間構造情報を得ることができる。

この方法を用いて SACLA において光子エネルギー 10.5 keV の XFEL を発振させている電子バンチの時間構造評価を行なった。10.5 keV の XFEL を発振させている SACLA の運転条件から、最上流のアンジュレータ 1 台だけを残して残りのアンジュレータのギャップを開いた状態で電子バンチから X 線パルスを放射させた。そして二結晶分光器によって 10.5 keV 付近のエネルギーの光を切り出し、さらに Si の平板結晶によって X 線パルスを分光した後に、X 線強度プロファイルをパルス毎に測定した。様々な Si の平板結晶を用いた場合において、アンジュレータの光軸上の放射に対応する X 線強度と軸外放射光の X 線強度との間の強度干渉の程度を積分強度相関関数によって評価した。RF デフレクターの結果をもとに電子バンチの時間構造が 2 つのガウス関数の和として表されると仮定して、強度干渉実験によって得られた積分強度相関関数のコヒーレンス時間依存性をフィッティングすることで電子バンチの時間構造を求めた。その結果、SACLA における電子バンチの電流値が半値全幅 8 fs 程度、ピーク電流値が 20 kA という鋭いピーク状の時間構造を持っていることが明らかになった。さらに、この電子バンチの電流値を XFEL のゲイン長の測定結果と合わせることによって、XFEL を発振させている部分の電子バンチの規格化エミッタンスが 1.1 mm·mrad と見積もられた。この値は、電子銃から放出された直後の電子バンチの規格化エミッタンスよりも大きく、電子バンチの加速および圧縮の過程においてエミッタンスの劣化が起こっていることが明らかになった。

最後に、第3の計測法としてXFELによる試料へのダメージ過程を捉える“フェムト秒X線ポンプ・X線プローブ法”を考案した。この方法では、まず、SACLAのアンジュレータ列を上下流2つのセクションに分けて、それぞれのセクションで独立にXFELを発振させる。そして、シケインで電子ビームを迂回させることで、上流から発振したXFELと下流から発振したXFELの間に時間差をつける。更に上流と下流のアンジュレータのK値を異なった値にすることで上下流のセクションで異なった波長のXFELを発振させる。このようにして発振させたダブルパルスをそれぞれ、試料にダメージを与える光（ポンプ光）、およびX線ダメージの時間発展を調べる光（プローブ光）として用いる。そしてダブルパルスの時間間隔を変えながら、プローブ光によって試料の状態を調べることでX線ダメージの進行の様子を捉える。

この方法のデモンストレーション実験として、ダイヤモンドにおけるX線ダメージ過程を調べた。ポンプ光として6.1 keV、プローブ光として5.9 keVの光子エネルギーのXFELを用いて、それらをSACLAの2段集光システムを利用することで半値全幅130 nm (水平) × 200 nm (垂直)のサイズに集光した。そして集光点にダイヤモンドの多結晶薄膜を設置して、ショットごとに照射位置を変えながらダイヤモンドからの111および220反射を測定した。ダブルパルスの時間間隔を0.3 fsから80 fsまで変化させながらBragg反射強度を測定した結果、ポンプ光照射後20 fs以降からダイヤモンドを構成している炭素原子の原子変位が増加してゆく様子を捉えることに成功した。これは、XFELが引き起こすダメージ過程の時間発展を捉えた初めての結果である。さらに、この実験の結果をシミュレーションから予測されているX線フルーエンスと原子位置の変位量との間に成り立つスケーリング則と合わせることによって、蛋白質1分子構造解析が可能であることが示唆された。フェムト秒のX線ダメージ過程の理解は、XFELを利用する計測のデザインや妥当性に関わる根本的な研究課題である。X線ポンプ・X線プローブ法は、XFELによる物質の“破壊の物理”の解明に大きく貢献し得る。この手法によって信頼できる実験結果を測定し、理論にフィードバックすることによって高強度X線科学の進展が期待できる。

本研究で開発した以上の3つの手法は、それぞれ計測が困難であった光源パラメータや物理現象を測定するもので、XFELの利用研究や加速器科学の発展に貢献し得る。また、3つの方法とも簡単な原理に基づいた計測法である。現在世界では、複数のXFELの建設や計画が進んでおり、2020年頃までに多くのXFELが運転を開始する予定になっている。より先の未来について考えてみると、プラズマ加速技術 [157–159] の発展によって電子加速器がコンパクトになったり、高次高調波発生技術 [160–163] がX

線領域に達することで、実験室レベルの空間でX線レーザーが実現することも決して夢物語ではないだろう。本研究で開発した3つの手法やその発展版が、これから本格化するであろう21世紀のX線レーザーの時代において利活用され、X線科学の発展に貢献することを期待したい。

## 謝辞

末筆ではありますが、雨宮研究室での学生生活でお世話になった方々に厚く御礼申し上げます。

東京大学大学院新領域創成科学研究科の雨宮慶幸教授には指導教員として学部・修士・博士過程の6年間もの長い間お世話になりました。お忙しいにも関わらず、いつも時間を工面して研究の折々で丁寧に指導して頂きました。また、私が博士課程においてSACLAで研究する機会を作って頂きました。さらに研究の面だけではなく、日常生活の過ごし方など含めて様々な有り難いお言葉をかけて頂きました。私が学生生活を楽しく過ごせたのは先生の指導や気遣いがあったからこそであり、感謝の意に堪えません。

同研究科の有馬孝尚教授には修士課程の後半からリーディング大学院プログラムの副指導教員を引き受けて頂きました。先生と研究についてお話するときは、どんな鋭い質問が飛んで来るか分からず、いつも緊張してばかりでしたが、得られるものはとても多くて勉強になりました。一方で普段から気さくに声をかけていただき、大変ありがたかったです。

理化学研究所の矢橋牧名グループディレクターには、本論文でまとめたXFELの研究全般について指導して頂きました。スピード感を持って研究に取り組むということや実験計画を綿密に立てることの大事さを教わりました。SACLAが共用運転を開始してから1年後という非常に忙しい時期に受け入れて頂いたこと、実験を何度も失敗してもチャンスを与え続けて頂いたことに大変感謝しています。

筑波大学大学院数理物質科学研究科の西堀英治教授にはリーディング大学院プログラムの自発融合研究に関係して、粉末構造解析の実験手法を教えてくださいました。また、本論文の2色XFELの実験計画について様々なアドバイスを頂きました。

東京大学大学院新領域創成科学研究科の岡本博教授、原田慈久准教授には、お忙しい中、本論文の副査を引き受けていただいたことを感謝いたします。博士論文審査において先生方から頂いたコメントは、普段考えたことがあまりない新鮮なもので、本論文を書く上で大変参考になりました。

雨宮研究室の篠原佑也助教には学部の4年生から修士を卒業するまで一番身近な指導者として放射光実験での実験技術の基礎や研究の進め方を教えていただきました。雨宮研究室の学生の皆様には、楽しい研究室生活を一緒に過ごさせていただいたことを感謝します。特に、学部・修士課程の時に同じ研究室の居室で過ごした、半田昌史氏、田村豪主博士、仲旭氏、坂井崇人氏、清家はるか氏、太田崇士氏、渡部慧氏、名越健誠氏、山本奈央子氏、吉井輝明氏、の皆様を感謝します。また、研究室の先輩でもある住友ゴム工業株式会社の岸本浩通博士には、学部から今に至るまでひとかたならぬお世話になりました。研究室秘書の川尻幸代氏、八島恵子氏、榊原千晶氏には出張の手続きなどで大変お世話になりました。

理化学研究所のXFEL研究開発部門と高輝度光科学研究センターのXFEL利用研究推進室の皆様のご協力無しには、本論文にまとめた研究は行えませんでした。昼夜を問わず一緒に実験した、登野健介チームリーダー、犬伏雄一博士、富樫格博士、片山哲夫博士、小川奏博士、大和田成起博士、城地保昌チームリーダー、亀島敬博士に感謝しています。田中均部門長からは常日頃から温かく、熱い励ましを頂きました。原徹チームリーダー、玉作賢治チームリーダー、初井宇記チームリーダー、田中隆次主任研究員、稲垣隆宏博士、澤田桂博士、金城良太博士の皆様には研究に関わる様々なアドバイスを頂きました。また、金徹坤氏、藤原嘉朗博士をはじめとするSACLAエンジニアリングチームの皆様には24時間体制で実験をサポートして頂きました。SPring-8での実験では香村芳樹ユニットリーダーに支援していただきました。

SACLAのユーザーの方々からも様々なことを教わりました。特に東京大学の佐藤堯洋助教、高輝度光科学研究センターの鈴木基寛チームリーダー、分子科学研究所の繁政英治准教授、岩山洋士助教、スタンフォード大のJerome Hasting教授、スタンフォード国立加速器研究所のAymeric Robert博士、大阪大学の太田泰斗氏、理化学研究所の武井大博士には公私共々大変お世話になりました。

楽しい学生生活や研究生活を過ごすことが出来たのは、これらの皆様と家族を始めとする多くの方々のおかげです。特に祖母の林美佐子様にはこれまでの多くの支援をしていただいたことを感謝しています。この紙面で名前を挙げた方以外にも多くの皆様に支えられて、博士課程を過ごすことができました。すべてのお世話になった方々に深く感謝の意を表して本論文の結びとさせていただきます。

本研究は、SPring-8 萌芽的研究支援課題(2012A1562)およびSACLA 大学院生研究支援プログラムのもとで行われました。

## 参考文献

- [1] Röntgen, W. C. On a new kind of rays. *Science* **3**, 227–231 (1896).
- [2] Emma, P. *et al.* First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser. *Nature Photon.* **4**, 641–647 (2010).
- [3] Ishikawa, T. *et al.* A compact X-ray free-electron laser emitting in the sub-ångstrom region. *Nature Photon.* **6**, 540–544 (2012).
- [4] McNeil, B. W. & Thompson, N. R. X-ray free-electron lasers. *Nature Photon.* **4**, 814–821 (2010).
- [5] Hecht, E. *Optics* (Addison-Wesley, 2002).
- [6] Mandel, L. & Wolf, E. *Optical Coherence and Quantum Optics* (Cambridge University Press, 1995).
- [7] Goodman, J. *Statistical Optics* (Wiley-Interscience, New York, 1985).
- [8] Wolf, E. *Introduction to the Theory of Coherence and Polarization of Light* (Cambridge University Press, 2007).
- [9] Madey, J. M. Stimulated emission of bremsstrahlung in a periodic magnetic field. *J. Appl. Phys.* **42**, 1906–1913 (1971).
- [10] Elias, L. R., Fairbank, W. M., Madey, J. M., Schwettman, H. A. & Smith, T. I. Observation of stimulated emission of radiation by relativistic electrons in a spatially periodic transverse magnetic field. *Phys. Rev. Lett.* **36**, 717 (1976).
- [11] Deacon, D. A. *et al.* First operation of a free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.* **38**, 892 (1977).

- [12] Kondratenko, A. & Saldin, E. Generating of coherent radiation by a relativistic electron beam in an undulator. *Part. Accel.* **10**, 207–216 (1980).
- [13] Bonifacio, R., Pellegrini, C. & Narducci, L. Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser. *Opt. Commun.* **50**, 373–378 (1984).
- [14] O’Shea, P. G. & Freund, H. P. Free-electron lasers: status and applications. *Science* **292**, 1853–1858 (2001).
- [15] Hogan, M. *et al.* Measurements of high gain and intensity fluctuations in a self-amplified, spontaneous-emission free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.* **80**, 289–292 (1998).
- [16] Nguyen, D. C. *et al.* Self-amplified spontaneous emission driven by a high-brightness electron beam. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 810–813 (1998).
- [17] Milton, S. V. *et al.* Observation of self-amplified spontaneous emission and exponential growth at 530 nm. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 988–991 (2000).
- [18] Andruszkow, J. *et al.* First observation of self-amplified spontaneous emission in a free-electron laser at 109 nm wavelength. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3825–3829 (2000).
- [19] Milton, S. *et al.* Exponential gain and saturation of a self-amplified spontaneous emission free-electron laser. *Science* **292**, 2037–2041 (2001).
- [20] Ayvazyan, V. *et al.* Generation of GW radiation pulses from a vuv free-electron laser operating in the femtosecond regime. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 104802 (2002).
- [21] Ackermann, W. a. *et al.* Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window. *Nature Photon.* **1**, 336–342 (2007).
- [22] Shintake, T. *et al.* A compact free-electron laser for generating coherent radiation in the extreme ultraviolet region. *Nature Photon.* **2**, 555–559 (2008).
- [23] Allaria, E. *et al.* Highly coherent and stable pulses from the fermi seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet. *Nature Photon.* **6**, 699–704 (2012).
- [24] 田中隆次. X線自由電子レーザー概論. 高エネルギー加速器セミナー OHO’13 (2013).



- [25] Schmüser, P., Dohlus, M., Rossbach, J. & Behrens, C. *Free-Electron Lasers in the Ultraviolet and X-ray Regime* (Springer, 2014).
- [26] Xie, M. Exact and variational solutions of 3D eigenmodes in high gain FELs. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Sect. A* **445**, 59–66 (2000).
- [27] Saldin, E., Schneidmiller, E. & Yurkov, M. Coherence properties of the radiation from X-ray free electron laser. *Opt. Commun.* **281**, 1179–1188 (2008).
- [28] Saldin, E. L., Schneidmiller, E. A. & Yurkov, M. V. Statistical and coherence properties of radiation from x-ray free-electron lasers. *New J. Phys.* **12**, 035010 (2010).
- [29] Kim, K.-J. & Xie, M. Self-amplified spontaneous emission for short wavelength coherent radiation. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Sect. A* **331**, 359–364 (1993).
- [30] Tanaka, T. FEL simulation code for undulator performance estimation. *Proc. FEL 2004*, 435–438 (2004).
- [31] Togawa, K. *et al.* CeB<sub>6</sub> electron gun for low-emittance injector. *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **10**, 020703 (2007).
- [32] Hara, T. *et al.* Two-colour hard X-ray free-electron laser with wide tunability. *Nature Commun.* **4**, 2919 (2013).
- [33] Tanaka, T. *et al.* Undulator commissioning by characterization of radiation in x-ray free electron lasers. *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **15**, 110701 (2012).
- [34] Tono, K. *et al.* Beamline, experimental stations and photon beam diagnostics for the hard x-ray free electron laser of sacla. *New J. Phys.* **15**, 083035 (2013).
- [35] Nugent, K. A. Coherent methods in the X-ray sciences. *Adv. Phys.* **59**, 1–99 (2010).
- [36] Sutton, M. *et al.* Observation of speckle by diffraction with coherent X-rays. *Nature* **352**, 608–610 (1991).
- [37] Miao, J., Charalambous, P., Kirz, J. & Sayre, D. Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens. *Nature* **400**, 342–344 (1999).

- [38] Miao, J. *et al.* High resolution 3D X-ray diffraction microscopy. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 088303 (2002).
- [39] Chapman, H. N. & Nugent, K. A. Coherent lensless X-ray imaging. *Nature Photon.* **4**, 833–839 (2010).
- [40] Brauer, S. *et al.* X-ray intensity fluctuation spectroscopy observations of critical dynamics in Fe<sub>3</sub>Al. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2010–2013 (1995).
- [41] Dierker, S. B., Pindak, R., Fleming, R. M., Robinson, I. K. & Berman, L. X-ray photon correlation spectroscopy study of brownian motion of gold colloids in glycerol. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 449–452 (1995).
- [42] Grübel, G. & Zontone, F. Correlation spectroscopy with coherent X-rays. *J. Alloys and Compounds* **362**, 3–11 (2004).
- [43] Sutton, M. A review of X-ray intensity fluctuation spectroscopy. *C. R. Physique* **9**, 657–667 (2008).
- [44] Rodenburg, J. M. *et al.* Hard-X-ray lensless imaging of extended objects. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 034801 (2007).
- [45] Thibault, P. *et al.* High-resolution scanning X-ray diffraction microscopy. *Science* **321**, 379–382 (2008).
- [46] Dierolf, M. *et al.* Ptychographic X-ray computed tomography at the nanoscale. *Nature* **467**, 436–439 (2010).
- [47] Eisebitt, S. *et al.* Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray spectroholography. *Nature* **432**, 885–888 (2004).
- [48] Cerbino, R. *et al.* X-ray-scattering information obtained from near-field speckle. *Nature Phys.* **4**, 238–243 (2008).
- [49] Lu, X., Mochrie, S. G. J., Narayanan, S., Sandy, A. R. & Sprung, M. X-ray near-field speckle: implementation and critical analysis. *J. Synchrotron Radiat.* **18**, 823–834 (2011).

- [50] Zanette, I. *et al.* Speckle-based X-ray phase-contrast and dark-field imaging with a laboratory source. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 253903 (2014).
- [51] Bérújon, S., Ziegler, E., Cerbino, R. & Peverini, L. Two-dimensional X-Ray beam phase sensing. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 158102 (2012).
- [52] Bérújon, S., Wang, H., Pape, I. & Sawhney, K. X-ray phase microscopy using the speckle tracking technique. *Appl. Phys. Lett.* **102**, 154105 (2013).
- [53] Bérújon, S. & Ziegler, E. Near-field speckle-scanning-based x-ray imaging. *Phys. Rev. A* **92**, 013837 (2015).
- [54] Leitenberger, W., Kuznetsov, S. M. & Snigirev, A. Interferometric measurements with hard X-rays using a double slit. *Opt. Commun.* **191**, 91–96 (2001).
- [55] Suzuki, Y. Measurement of x-ray coherence using two-beam interferometer with prism optics. *Rev. Sci. Instrum.* **75**, 1026–1029 (2004).
- [56] Snigirev, A. *et al.* X-ray nanointerferometer based on si refractive bilenses. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 064801 (2009).
- [57] Lin, J. J. A. *et al.* Measurement of the spatial coherence function of undulator radiation using a phase mask. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 074801 (2003).
- [58] Pfeiffer, F. *et al.* Shearing interferometer for quantifying the coherence of hard X-Ray beams. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 164801 (2005).
- [59] Kohn, V., Snigireva, I. & Snigirev, A. Direct measurement of transverse coherence length of hard x rays from interference fringes. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2745–2748 (2000).
- [60] Alaimo, M. D. *et al.* Probing the transverse coherence of an undulator X-ray beam using brownian particles. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 194805 (2009).
- [61] Yabashi, M., Tamasaku, K. & Ishikawa, T. Characterization of the transverse coherence of hard synchrotron radiation by intensity interferometry. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 140801 (2001).

- [62] Singer, A. *et al.* Intensity interferometry of single x-ray pulses from a synchrotron storage ring. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 064801 (2014).
- [63] Saldin, E., Schneidmiller, E. A. & Yurkov, M. V. *The Physics of Free Electron Lasers* (Springer-Verlag Berlin, 2000).
- [64] Saldin, E., Schneidmiller, E. & Yurkov, M. Diffraction effects in the self-amplified spontaneous emission FEL. *Opt. Commun.* **186**, 185–209 (2000).
- [65] Saldin, E., Schneidmiller, E. & Yurkov, M. Coherence properties of the radiation from SASE FEL. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Sect. A* **507**, 106–109 (2003).
- [66] Vartanyants, I. A. *et al.* Coherence properties of individual femtosecond pulses of an x-ray free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 144801 (2011).
- [67] Singer, A. *et al.* Spatial and temporal coherence properties of single free-electron laser pulses. *Opt. Express* **20**, 17480–17495 (2012).
- [68] Inoue, I. *et al.* Characterizing transverse coherence of an ultra-intense focused X-ray free-electron laser by an extended Young's experiment. *IUCrJ* **2**, 620–626 (2015).
- [69] Yumoto, H. *et al.* Focusing of X-ray free-electron laser pulses with reflective optics. *Nature Photon.* **7**, 43–47 (2013).
- [70] Kameshima, T. *et al.* Development of an X-ray pixel detector with multi-port charge-coupled device for x-ray free-electron laser experiments. *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 033110 (2014).
- [71] Song, C. *et al.* Multiple application X-ray imaging chamber for single-shot diffraction experiments with femtosecond X-ray laser pulses. *J. Appl. Cryst.* **47**, 188–197 (2014).
- [72] Otake, Y. *et al.* Beam monitor system for an x-ray free electron laser and compact laser. *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **16**, 042802 (2013).
- [73] 前坂比呂和. 低エミッタンス熱電子銃. 高エネルギー加速器セミナー *OHO'13* (2013).

- [74] Ego, H. *et al.* Transverse C-band deflecting structure for longitudinal electron-bunch-diagnosis in XFEL SACLA. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Sect. A* **795**, 381–388 (2015).
- [75] Ding, Y. *et al.* Femtosecond x-ray pulse temporal characterization in free-electron lasers using a transverse deflector. *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **14**, 120701 (2011).
- [76] Behrens, C. *et al.* Few-femtosecond time-resolved measurements of X-ray free-electron lasers. *Nature Commun.* **5** (2014).
- [77] Inubushi, Y. *et al.* Determination of the pulse duration of an x-ray free electron laser using highly resolved single-shot spectra. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 144801 (2012).
- [78] Zholents, A. A. & Fawley, W. M. Proposal for intense attosecond radiation from an x-ray free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 224801 (2004).
- [79] Dunning, D. J., McNeil, B. W. J. & Thompson, N. R. Few-cycle pulse generation in an x-ray free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 104801 (2013).
- [80] Tanaka, T. Proposal for a pulse-compression scheme in x-ray free-electron lasers to generate a multiterawatt, attosecond x-ray pulse. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 084801 (2013).
- [81] Tanaka, T. Proposal to generate an isolated monocycle x-ray pulse by counteracting the slippage effect in free-electron lasers. *Phys. Rev. Lett.* **114**, 044801 (2015).
- [82] Brown, R. H. & Twiss, R. A test of a new type of stellar interferometer on sirius. *Nature* **178**, 1046–1048 (1956).
- [83] Brown, R. H. & Twiss, R. Correlation between photons in two coherent beams of light. *Nature* **177**, 27–29 (1956).
- [84] Geloni, G., Saldin, E., Schneidmiller, E. & Yurkov, M. Transverse coherence properties of X-ray beams in third-generation synchrotron radiation sources. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Sect. A* **588**, 463–493 (2008).
- [85] Shuryak, E. Two-photon correlations in synchrotron radiation as a method of studying the beam. *Sov. Phys. JETP* **40**, 30–31 (1975).

- [86] Ikonen, E. Interference effects between independent gamma rays. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2759–2761 (1992).
- [87] Gluskin, E., McNulty, I., Viccaro, P. & Howells, M. X-ray intensity interferometer for undulator radiation. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Sect. A* **319**, 213–218 (1992).
- [88] Kunimune, Y. *et al.* Two-photon correlations in X-rays from a synchrotron radiation source. *J. Synchrotron Radiat.* **4**, 199–203 (1997).
- [89] Gluskin, E., Alp, E., McNulty, I., Sturhahn, W. & Sutter, J. A classical Hanbury Brown-Twiss experiment with hard X-rays. *J. Synchrotron Radiat.* **6**, 1065–1066 (1999).
- [90] Yabashi, M., Tamasaku, K. & Ishikawa, T. Characterization of the transverse coherence of hard synchrotron radiation by intensity interferometry. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 140801 (2001).
- [91] Yabashi, M., Tamasaku, K. & Ishikawa, T. Measurement of x-ray pulse widths by intensity interferometry. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 244801 (2002).
- [92] Yabashi, M., Tamasaku, K. & Ishikawa, T. Intensity interferometry for the study of x-ray coherence. *Phys. Rev. A* **69**, 023813 (2004).
- [93] 矢橋牧名. X線領域における強度干渉法の研究. 博士論文, 東京大学 (2003).
- [94] Tamasaku, K. *et al.* Double core-hole creation by sequential attosecond photoionization. *Phys. Rev. Lett.* **111**, 043001 (2013).
- [95] 前坂比呂和. 高精度ビーム診断. 高エネルギー加速器セミナー *OHO'13* (2013).
- [96] Als-Nielsen, J. & McMorrow, D. *Elements of modern X-ray physics* (John Wiley and Sons, 2011).
- [97] Henderson, R. Cryo-protection of protein crystals against radiation damage in electron and X-ray diffraction. *Proc. R. Soc. Lond. B* **241**, 6–8 (1990).
- [98] Owen, R. L., Rudiño-Piñera, E. & Garman, E. F. Experimental determination of the radiation dose limit for cryocooled protein crystals. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **103**, 4912–4917 (2006).

- [99] Owen, R. L. *et al.* Outrunning free radicals in room-temperature macromolecular crystallography. *Acta Cryst. D* **68**, 810–818 (2012).
- [100] Howells, M. *et al.* An assessment of the resolution limitation due to radiation-damage in X-ray diffraction microscopy. *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **170**, 4–12 (2009).
- [101] Hau-Riege, S. P. *High-Intensity X-rays-Interaction with Matter: Processes in Plasmas, Clusters, Molecules and Solids* (John Wiley and Sons, 2012).
- [102] Neutze, R., Wouts, R., van der Spoel, D., Weckert, E. & Hajdu, J. Potential for biomolecular imaging with femtosecond X-ray pulses. *Nature* **406**, 752–757 (2000).
- [103] Hau-Riege, S. P., London, R. A. & Szoke, A. Dynamics of biological molecules irradiated by short x-ray pulses. *Phys. Rev. E* **69**, 051906 (2004).
- [104] Hau-Riege, S. P., London, R. A., Huldt, G. & Chapman, H. N. Pulse requirements for x-ray diffraction imaging of single biological molecules. *Phys. Rev. E* **71**, 061919 (2005).
- [105] Hau-Riege, S. P., London, R. A., Chapman, H. N., Szoke, A. & Timneanu, N. Encapsulation and diffraction-pattern-correction methods to reduce the effect of damage in x-ray diffraction imaging of single biological molecules. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 198302 (2007).
- [106] Hau-Riege, S. P. & Chapman, H. N. Modeling of the damage dynamics of nanospheres exposed to x-ray free-electron-laser radiation. *Phys. Rev. E* **77**, 041902 (2008).
- [107] Kai, T. Single-differential and integral cross sections for electron-impact ionization for the damage of carbon clusters irradiated with x-ray free-electron lasers. *Phys. Rev. A* **81**, 023201 (2010).
- [108] Nakamura, T., Fukuda, Y. & Kishimoto, Y. Ionization dynamics of cluster targets irradiated by x-ray free-electron-laser light. *Phys. Rev. A* **80**, 053202 (2009).
- [109] Caleman, C. *et al.* Simulations of radiation damage in biomolecular nanocrystals induced by femtosecond X-ray pulses. *J. Mod. Opt.* **58**, 1486–1497 (2011).

- [110] Lorenz, U., Kabachnik, N., Weckert, E. & Vartanyants, I. Impact of ultrafast electronic damage in single-particle x-ray imaging experiments. *Phys. Rev. E* **86**, 051911 (2012).
- [111] Hau-Riege, S. P. Photoelectron dynamics in x-ray free-electron-laser diffractive imaging of biological samples. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 238101 (2012).
- [112] Sentoku, Y., Paraschiv, I., Royle, R., Mancini, R. & Johzaki, T. Kinetic effects and nonlinear heating in intense x-ray-laser-produced carbon plasmas. *Phys. Rev. E* **90**, 051102 (2014).
- [113] Hau-Riege, S. P. & Bennion, B. J. Reproducible radiation-damage processes in proteins irradiated by intense x-ray pulses. *Phys. Rev. E* **91**, 022705 (2015).
- [114] Quiney, H. M. & Nugent, K. A. Biomolecular imaging and electronic damage using X-ray free-electron lasers. *Nature Phys.* **7**, 142–146 (2011).
- [115] Martin, A. V., Corso, J. K., Coleman, C., Timneanu, N. & Quiney, H. M. Single-molecule imaging with longer X-ray laser pulses. *IUCrJ* **2**, 661–674 (2015).
- [116] Huldt, G., Szőke, A. & Hajdu, J. Diffraction imaging of single particles and biomolecules. *J. Struct. Biol.* **144**, 219–227 (2003).
- [117] Shneerson, V., Ourmazd, A. & Saldin, D. Crystallography without crystals. i. the common-line method for assembling a three-dimensional diffraction volume from single-particle scattering. *Acta Cryst. A* **64**, 303–315 (2008).
- [118] Fung, R., Shneerson, V., Saldin, D. K. & Ourmazd, A. Structure from fleeting illumination of faint spinning objects in flight. *Nature Phys.* **5**, 64–67 (2009).
- [119] Tokuhisa, A., Taka, J., Kono, H. & Go, N. Classifying and assembling two-dimensional X-ray laser diffraction patterns of a single particle to reconstruct the three-dimensional diffraction intensity function: resolution limit due to the quantum noise. *Acta Cryst. A* **68**, 366–381 (2012).
- [120] Inoue, I. *et al.* Observation of femtosecond X-ray interactions with matter using an X-ray–X-ray pump–probe scheme. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **113** (2016).



- [121] De Ninno, G., Mahieu, B., Allaria, E., Giannessi, L. & Spampinati, S. Chirped seeded free-electron lasers: Self-standing light sources for two-color pump-probe experiments. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 064801 (2013).
- [122] Lutman, A. A. *et al.* Experimental demonstration of femtosecond two-color x-ray free-electron lasers. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 134801 (2013).
- [123] Allaria, E. *et al.* Two-colour pump-probe experiments with a twin-pulse-seed extreme ultraviolet free-electron laser. *Nature Commun.* **4**, 2476 (2013).
- [124] Lutman, A. A. *et al.* Demonstration of single-crystal self-seeded two-color x-ray free-electron lasers. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 254801 (2014).
- [125] Marinelli, A. *et al.* High-intensity double-pulse X-ray free-electron laser. *Nature Commun.* **6**, 6369 (2015).
- [126] Geloni, G., Kocharyan, V. & Saldin, E. A novel self-seeding scheme for hard X-ray fels. *J. Mod. Opt.* **58**, 1391–1403 (2011).
- [127] Amann, J. *et al.* Demonstration of self-seeding in a hard-X-ray free-electron laser. *Nature Photon.* **6**, 693–698 (2012).
- [128] Inagaki, T. *et al.* Hard x-ray self-seeding set-up and results at sacla. In *Proceedings of FEL conference*, 603–608 (2014).
- [129] Yabashi, M., Tanaka, H. & Ishikawa, T. Overview of the SACLA facility. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 477–484 (2015).
- [130] Yamauchi, K., Yabashi, M., Ohashi, H., Koyama, T. & Ishikawa, T. Nanofocusing of X-ray free-electron lasers by grazing-incidence reflective optics. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 592–598 (2015).
- [131] Ferguson, K. R. *et al.* The Atomic, Molecular and Optical Science instrument at the Linac Coherent Light Source. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 492–497 (2015).
- [132] Liang, M. *et al.* The Coherent X-ray Imaging instrument at the Linac Coherent Light Source. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 514–519 (2015).

- [133] Chollet, M. *et al.* The X-ray Pump–Probe instrument at the Linac Coherent Light Source. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 503–507 (2015).
- [134] Alonso-Mori, R. *et al.* The X-ray Correlation Spectroscopy instrument at the Linac Coherent Light Source. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 508–513 (2015).
- [135] Nagler, B. *et al.* The Matter in Extreme Conditions instrument at the Linac Coherent Light Source. *J. Synchrotron Radiat.* **22**, 520–525 (2015).
- [136] Kirkpatrick, P. & Baez, A. V. Formation of optical images by X-Rays. *J. Opt. Soc. Am.* **38**, 766–774 (1948).
- [137] Yoneda, H. *et al.* Atomic inner-shell laser at 1.5-angstrom wavelength pumped by an X-ray free-electron laser. *Nature* **524**, 446–449 (2015).
- [138] Tamasaku, K. *et al.* X-ray two-photon absorption competing against single and sequential multiphoton processes. *Nature Photon.* **8**, 313–316 (2014).
- [139] Yoneda, H. *et al.* Saturable absorption of intense hard X-rays in iron. *Nature Commun.* **5**, 5080 (2014).
- [140] Mimura, H. *et al.* Generation of  $10^{20}$  W cm<sup>-2</sup> hard X-ray laser pulses with two-stage reflective focusing system. *Nature Commun.* **5** (2014).
- [141] Tono, K. *et al.* Single-shot beam-position monitor for x-ray free electron laser. *Rev. Sci. Instrum.* **82**, 023108 (2011).
- [142] Henke, B. L., Gullikson, E. M. & Davis, J. C. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at  $e = 50\text{--}30,000$  eV,  $z = 1\text{--}92$ . *At. Data Nucl. Data Tables* **54**, 181–342 (1993).
- [143] Hau-Riege, S. P. X-ray atomic scattering factors of low- $Z$  ions with a core hole. *Phys. Rev. A* **76**, 042511 (2007).
- [144] Ding, Y. *et al.* Femtosecond x-ray pulse characterization in free-electron lasers using a cross-correlation technique. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 254802 (2012).
- [145] Ziaja, B., London, R. A. & Hajdu, J. Unified model of secondary electron cascades in diamond. *J. Appl. Phys.* **97**, 064905 (2005).

- [146] Bartlett, P. L. & Stelbovics, A. T. Electron-impact ionization cross sections for elements  $Z=1$  to  $Z=54$ . *At. Data Nucl. Data Tables* **86**, 235–265 (2004).
- [147] Barty, A. *et al.* Self-terminating diffraction gates femtosecond X-ray nanocrystallography measurements. *Nature Photon.* **6**, 35–40 (2012).
- [148] Sears, V. & Shelley, S. Debye–waller factor for elemental crystals. *Acta Cryst. A* **47**, 441–446 (1991).
- [149] Roe, R.-J. *Methods of X-ray and Neutron Scattering in Polymer Science* (Oxford University Press, 1999).
- [150] Chapman, H. N., Caleman, C. & Timneanu, N. Diffraction before destruction. *Phil. Trans. R. Soc. B* **369** (2014).
- [151] Son, S.-K., Young, L. & Santra, R. Impact of hollow-atom formation on coherent x-ray scattering at high intensity. *Phys. Rev. A* **83**, 033402 (2011).
- [152] Son, S.-K., Chapman, H. N. & Santra, R. Multiwavelength anomalous diffraction at high x-ray intensity. *Phys. Rev. Lett.* **107**, 218102 (2011).
- [153] Vinko, S. *et al.* Creation and diagnosis of a solid-density plasma with an X-ray free-electron laser. *Nature* **482**, 59–62 (2012).
- [154] Glenzer, S. *et al.* Demonstration of spectrally resolved x-ray scattering in dense plasmas. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 175002 (2003).
- [155] Glenzer, S. H. *et al.* Observations of plasmons in warm dense matter. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 065002 (2007).
- [156] Glenzer, S. H. & Redmer, R. X-ray Thomson scattering in high energy density plasmas. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1625 (2009).
- [157] Blumenfeld, I. *et al.* Energy doubling of 42 GeV electrons in a metre-scale plasma wakefield accelerator. *Nature* **445**, 741–744 (2007).
- [158] Esarey, E., Schroeder, C. & Leemans, W. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1229 (2009).

- [159] Litos, M. *et al.* High-efficiency acceleration of an electron beam in a plasma wake-field accelerator. *Nature* **515**, 92–95 (2014).
- [160] Popmintchev, T., Chen, M.-C., Arpin, P., Murnane, M. M. & Kapteyn, H. C. The attosecond nonlinear optics of bright coherent X-ray generation. *Nature Photon.* **4**, 822–832 (2010).
- [161] Midorikawa, K. High-order harmonic generation and attosecond science. *Jpn. J. Appl. Phys.* **50**, 090001 (2011).
- [162] Popmintchev, T. *et al.* Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV X-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *Science* **336**, 1287–1291 (2012).
- [163] Weisshaupt, J. *et al.* High-brightness table-top hard X-ray source driven by sub-100-femtosecond mid-infrared pulses. *Nature Photon.* **8**, 927–930 (2014).