

論文の内容の要旨

論文題目: 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)

氏名: 井上 伊知郎

1. 序文

19世紀末にW. C. Röntgen によって発見されたX線は、絶え間ない光源技術の進化を伴いながら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(XFEL)は、X線の歴史の中で初めて実現したレーザー光源である。XFELはこれまでのX線光源とは一線を画する3つの特徴:①既存の放射光源と比較して 10^8 倍の超高輝度、②フェムト秒の時間幅の極短パルス、③高い空間コヒーレンス、を有する革新的な光源であり、X線科学の新しい可能性を拓く夢の光として、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線を発生させる電子ビームの特性、さらにXFELと物質との相互作用を理解することは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。具体的には日本のXFELであるSPring-8 Ångstrom Compact free-electron LAsEr (SACLA)において、① 拡張型ヤングの実験によるXFELの空間コヒーレンス測定、② X線強度干渉法による電子ビームの時間構造評価、③X線ポンプ・X線プローブ法による高強度X線と物質との相互作用の観測、についての研究を行った。

2. 拡張型ヤングの実験による XFEL の空間コヒーレンス測定

XFELはビームの異なる位置の光の位相がよく同期した、高い空間コヒーレンスをもつ光である。しかし、シングルパスのXFELの光は完全空間コヒーレントではなく、電子ビームのエミッタンスやアンジュレータの長さなどによってコヒーレンス特性が敏感に変化することが予測されている。XFELの空間コヒーレンスは、利用研究のデザインや解釈、X線光学系の設計、高コヒーレンスなX線光源開発やコヒーレンスをもとにした電子ビーム診断、などと深く関係している根源的なパラメータであるため、その特性の精確な評価と理解はXFEL科学にとって重要な意味を持つ。

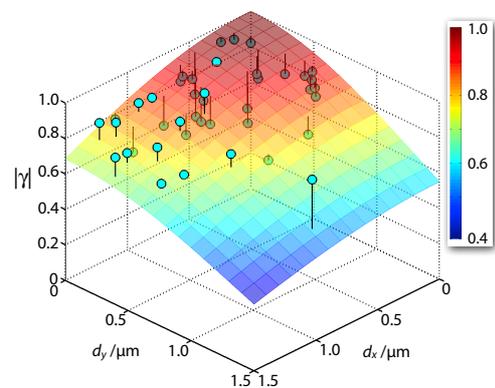


図 1: 拡張型ヤングの実験によって測定された XFEL の空間コヒーレンス特性

本研究ではXFELの空間コヒーレンス評価のために、大きさの異なる2つの球状粒子を利用した”拡張型ヤングの実験”を検討した。この方法では、2粒子からの散乱波の干渉の様子を2次元検出器用によって測定し、その画像を解析することで空間コヒーレンス特性を評価する。2粒子それぞれからの散乱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ため、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。このとき、visibilityはそれぞれの粒子からの散乱X線の振幅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特性を表すパラメータである、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の空間コヒーレンス特性の評価が可能になる。

上記の原理に基づいて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評価を行った。XFELを半値全幅で1.8 μm (水平) \times 1.3 μm (垂直)のサイズに集光し、粒子直径100 nm と150 nmの金コロイドの混合溶液を集光点の位置に導入した。そして、試料からの散乱を8.1 m下流のCCD検出器によってパルス毎に測定した。得られた散乱像の中から大きさが異なる2つの粒子からの散乱像を抽出して空間コヒーレンス評価を行った。図1は、実験の結果得られた複素コヒーレンス度の絶対値の粒子間距離依存性、すなわちXFELの空間コヒーレンス特性を表している。この依存性をGaussian関数 $|\gamma(d_x, d_y)| = \exp(-d_x^2/2l_x^2 - d_y^2/2l_y^2)$, (γ : 複素コヒーレンス度, d : 粒子間距離, l : 空間コヒーレンス長)でフィッティングした結果、XFELの空間コヒーレンス長は、 $1.7 \pm 0.2 \mu\text{m}$ (水平方向)、 $1.3 \pm 0.1 \mu\text{m}$ (垂直方向)と見積もられた。

これらの実験結果からXFELの空間コヒーレンス長はビームサイズと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可干渉である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。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持っていることを示唆している。

以上の結果は、XFELにおける初めての複素コヒーレンス度の測定結果である。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”であり、今後のXFELのコヒーレンス利用や高コヒーレントXFEL光源開発への応用が期待される。

3. X線強度干渉法による電子ビームの時間構造評価

XFELを発振させる電子ビームでは、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。現在、XFEL施設における電子ビームの時間構造評価は高周波デフレクター(RF-def)と呼ばれる装置を用いて行われているが、時間分解能は高々10 fs程度である。その一方で最近のXFELの光では10 fsよりも短い時間幅が実現されている。このXFEL発振においては発振に寄与する電子ビームの時間幅がRf-defの時間分解能以下である。現状のXFELの評価や、さらなる短パルスXFELの実現のために、より高い時間分解能で電子ビームの時間構造を評価法が求められている。

本研究では、X線領域の強度干渉法によって10 fsを切る時間分解能で電子ビームの時間構造を決定することを目指した。この方法では、まず電子ビームをアンジュレータ1台に入射して放射光X線を発生させる。次に、分光結晶によってX線パルスのエネルギーバンド幅を制御した後、強度の空間分布を2次元検出器によって測定する。そして、異なる2つの位置の強度干渉の程度を強度相関関数 $g^2 = \langle I_1 I_2 \rangle / (\langle I_1 \rangle \langle I_2 \rangle)$ で評価する。ここで、 $\langle \rangle$ は異なるパルスに関する平均である。 g^2 の大きさは、エネルギーバンド幅で決まるコヒーレンス時間とX線パルスの時間構造の大小関係によって決まる。そのため、分光結晶を変えて様々なコヒーレンス時間のもとで g^2 を測定することで、電子ビームの時間構造を決定することが可能になる。

以上の原理に基づいて SACLA のエネルギー8 GeV の電子ビームの時間構造評価を行った。アンジュレータの基本波である10.5 keVのX線をモノクロメータによって切り出した。そして、それに続くSiの単結晶によってバンド幅を制御して分光し、X線強度の空間分布をパルス毎に測定した。図2(a)の丸印は、測定で得られた近接した2点間の g^2 とコヒーレンス時間の関係を示している。時間的に離れた2つのガウシアン関数の和で電子ビームの時間構造を表わすことが出来ると仮定して図2(a)の結果をフィッティングした結果、SACLAの電子ビームは図2(b)で示した時間構造を持つことが分かった。図中の時間0 fs付近の電流値は鋭いピーク構造を示しており、その半値全幅は7.5 fs程度であった。

本研究で開発した強度干渉法は、XFELを発振させる電子ビームの10 fs以下の時間構造を調べることが出来る現時点で唯一の方法である。この方法によって電子ビームの時間構造の精密な診断が可能になり、XFEL科学の進展に繋がることが期待できる。

4. X線ポンプ・X線プローブ法による高強度X線と物質との相互作用の観測

XFELの高強度X線が試料に照射されると、試料中の原子がイオン化され、原子間のクーロン反発力によって試料が破壊される。このダメージ過程の理解のために様々な理論研究が進展してきた一方で、実験によるアプローチはほとんど行われていない。そのため、試料へのX線ダメージは既存のX線ダメージの物理モデルで十分に説明できるのか、というXFELを利用した計測の妥当性に関わる根本的な疑問が検証されていない。

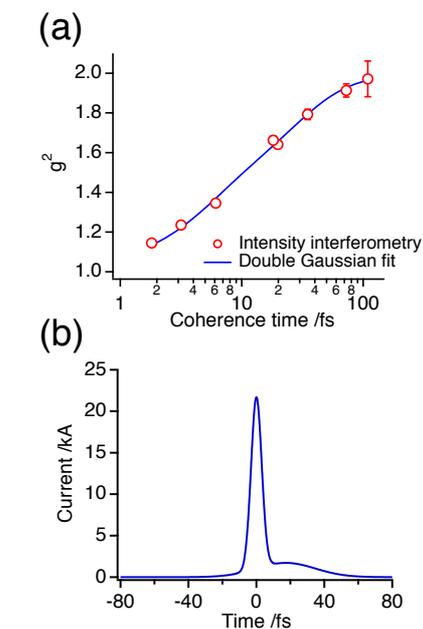


図 2(a): 強度相関関数とコヒーレンス時間の関係 (b): 強度干渉実験から求められた電子ビームの時間構造

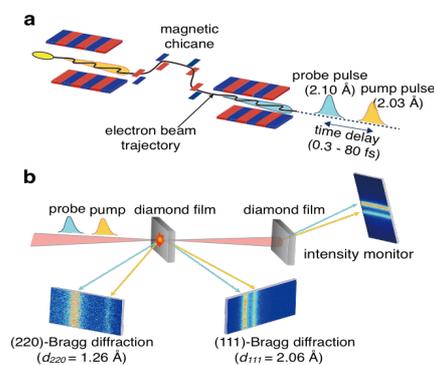


図 3: X線ポンプ・X線プローブ法の概略図

本研究では、フェムト秒のX線ダメージ過程を実験によって調べるために“X線ポンプ・X線プローブ法”の開発を行った。この方法では、アンジュレータ列を上流・下流の2つのセクションに分けて、独立にXFELを発振させる。さらにアンジュレータの磁石列のギャップを上下流で異なる値にすることで波長の違うダブルパルスを発振させる。このダブルパルスを試料にダメージを与える光（ポンプ光）、およびX線ダメージの程度を調べる光（プローブ光）として用いる。セクション間の磁場シケインによって電子ビームを迂回させることでダブルパルスの時間間隔を制御し、様々な時間間隔のもとでプローブ光を用いて試料状態を調べることによってX線ダメージの進行の様子を捉える。

ポンプ-プローブ法のデモンストレーションとしてダイヤモンドの粉末結晶を試料として実験を行った(Fig. 7)。SACLAから発振したダブルパルス(ポンプ光: 6.1 keV、プローブ光: 5.9 keV)を、100 nm程度に集光し、集光点に設置したダイヤモンド結晶からの回折(111反射と220反射)を測定した。ダブルパルスの時間間隔を大きくしていったところ、ポンプ光照射後20 fs以降から両方の反射においてプローブ光の回折強度が弱くなる傾向が見られた(図4)。このことは、X線ダメージによる炭素原子の移動がポンプ光照射後20 fsで起こり始めることを意味している。

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における高強度X線と物質との相互作用を調べるための強力な手段である。この手法によって高強度X線下での物質の振る舞いを計測して理論研究にフィードバックすることで高強度X線と物質との相互作用の理解の進展が期待できる。

5. まとめ

X線自由電子レーザーにおいて、光源から放出されたX線やX線を発生させている電子ビームの特性、さらにX線と物質との相互作用を調べるための新しい手法の開発を行った。これらの手法は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。これから建設・運用が始まる各地のXFEL施設において利活用され、XFEL科学の発展に貢献することに期待したい。

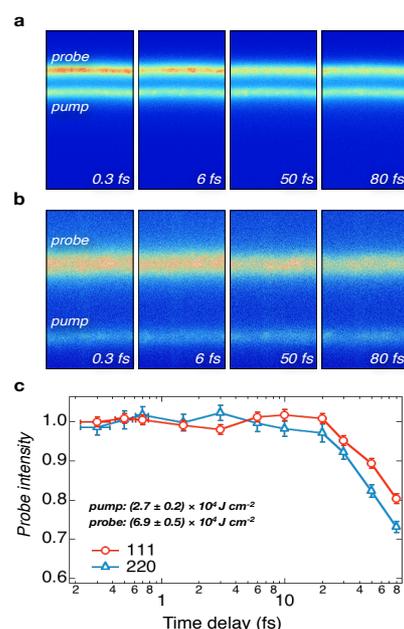


図4): ダブルパルスの時間間隔を変えた際の (a) 111 (b) 220 回折 (c) プローブ光の回折強度の時間間隔依存性