

令和 3 年 6 月 6 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K18307

研究課題名（和文）硬X線分割遅延光学系によるメソスケールピコ秒ダイナミクス測定に関する研究

研究課題名（英文）Study of meso-scale picosecond dynamics in disordered systems using split-and-delay optical system

研究代表者

大坂 泰斗 (Osaka, Taito)

国立研究開発法人理化学研究所・放射光科学研究センター・研究員

研究者番号：70782887

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：本申請課題では、超小型X線分光器を開発し、反射型セルフシード法と呼ばれる新たなX線自由電子レーザー（XFEL）発振法を実現することで、XFELの輝度を5倍以上に高めることに成功した。また、1つのXFELから時間差を精密に制御された2つのXFELを作り出す分割遅延光学系の整備を進めた。両技術を相補的に利用することで、強度自己相関法によるXFELパルス時間幅の直接測定、そして純水中で生じているメソスケール（数オングストロームから数十ナノメートル）の揺らぎ測定の実証に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

反射型セルフシード法によって得られる高輝度XFELは、従来のX線分光測定効率を高めるだけでなく、X線非線形分光といった新たなX線計測技術の開拓、それに伴う新たな発見につながるものである。また、XFELの時間構造の測定は至上命題として様々な研究が行われてきたが、本研究により初めて直接測定が達成され、より詳細かつ正確な時間構造決定へ向けた大きな一歩となる。そして反射型セルフシード法と分割遅延光学系を利用した純水の揺らぎ評価は、未だ謎の多い非晶質物質中で様々な時間・空間スケールで生じている揺らぎを解明する可能性を示すものであり、基礎科学から応用開発に及ぶ広い科学領域に貢献するものである。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed an ultra-compact x-ray monochromator and enhanced the spectral brightness of x-ray free-electron laser (XFEL) by a factor over 5 through a novel amplification method called the reflection self seeding for which the compact monochromator plays a key role. Also, we improved a split-delay optical system, which produces two XFEL pulses with a time separation precisely controlled. Utilizing these cutting-edge technologies, we succeeded in direct evaluation of the XFEL pulse duration through an intensity autocorrelation technique and demonstration of measuring meso-scale (from a few angstrom to tens of nanometers) spontaneous fluctuation in pure water.

研究分野：X線光学

キーワード：X線自由電子レーザー セルフシード X線分割遅延光学系 揺らぎ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 物質内部で生じるダイナミクスを知ることは、その構造や物性を理解する上で極めて重要である。特に液体やアモルファス材料のような非晶質物質では、様々な空間スケールにおいて様々な時間スケールの“揺らぎ”が生じており、特異な熱特性や機械特性、化学活性を示す要因だと考えられている。中でもメソスケール(数Å~数十nm)における揺らぎは、微視的な特性と巨視的な特性とを結ぶ鍵として注目されているものの、既存の測定手法では測定困難な“空白時空間領域”であり、大部分が未解明である。

(2) 超高ピーク輝度、ほぼ完全な空間可干渉性、そして数~数百fsという超短パルス特性とを併せ持つX線自由電子レーザー(X-ray Free-Electron Laser, XFEL)を利用した、空白時空間領域を埋めうる新たなダイナミクス測定手法が提案された。時間差を精密に制御された2つのXFELパルスを試料に照射し、各パルスから生じた粒状の散乱像(スペックル)の和を2次元検出器により測定する。各スペックルは各々のパルスが照射された際の瞬時的な電子密度分布を反映しており、時間差内で電子密度分布に変化がない(動いていない)場合はほぼ同一のスペックル同士の和、時間差内で動いた場合は異なるスペックルの和となるため、測定されるスペックルの可視度が増える。パルス間の時間差とスペックル可視度との関係性から、揺らぎの時間スケールを導出する手法であり、ダブルパルスX線可視度分光法(X-ray Speckle Visibility Spectroscopy, XSVS)と呼ばれている。この手法を実現するためには、メソスケール揺らぎの典型的な時間スケールである、数百fsから数百ピコ秒の時間差をもつダブルパルスXFELの利用が必須であり、X線分割遅延光学系(Split-Delay Optics, SDO)の開発が世界中のXFEL施設で盛んに行われていた。申請者らの研究グループでは、高品質シリコン(Si)結晶素子の開発を経て、世界で初めて実用的なX線SDOの開発に成功し、XFELのコヒーレンス時間測定を達成した。

(3) XFELは自己増幅自然放射(SASE)方式での発生が一般的である。SASE型XFELは前述のような素晴らしい特性を有する一方、バンド幅が広く、かつショットごとに大きく光特性が変化するという問題もある。SASE型XFELに対して分光器として機能するX線SDOを利用した際、利用効率の低さが課題として挙げられていた。この抜本的な解決手段として、バンド幅の狭いXFELを発生可能な“セルフシード”方式の実現が待望されていた。この手法はSASE型XFELを分光器に通して単色化し、その単色XFELを再度増幅させるものであり、米国のXFEL施設であるLCLSにおいて実証された。しかし、日本のXFEL施設SACLAにおいては、同様の分光器では輝度の向上には至っていなかった。この要因の1つとして、当時利用されていた透過型分光器がSACLAに適していなかったと考えた。透過型分光器では、単色化されたXFELだけでなく、その数十fs前にバンド幅の広いSASE光も生じている。SACLAのXFELには数fsのパルス幅のピークに加え、数十fsもの間弱いテール成分が含まれていることが示唆されており、このテール成分が単色化されたXFELよりも支配的に増幅されたと考えられた。従って、SACLAにおいて有効なセルフシード方式を達成するためには、SASE成分を完全に除去可能な新たな分光器が必要であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、空白時空間領域である非晶質物質中の揺らぎの測定手法を実証、確立することである。極めて身近な物質であるが未だ謎の多い水を具体的な測定対象とし、X線SDOを利用したダブルパルスXSVS法によるメソスケールの揺らぎ測定を目指した。本目的を達成するため、以下のような小目標を設定し、研究を実施した。

- (1) SACLAにおいて実用的なセルフシード方式による狭帯域XFEL発生の実現とX線SDOの改良とにより、X線SDO後のX線強度を劇的に向上させる。
- (2) X線SDOを通じた後のパルス時間構造を明らかにし、ダブルパルスXSVS法の時間分解能を評価する。
- (3) 純水に対してダブルパルスXSVS法を実施し、揺らぎ測定が可能であることを実証する。

3. 研究の方法

(1) バンド幅の広いSASE成分を完全に除去可能な、反射型分光器を開発し、SACLAにおいてセルフシード方式によるXFEL輝度の向上を試みた。セルフシード方式の達成には、単色化

した XFEL と電子ビームとを時空間的に重複させる必要がある。そのためには、分光器により生じる遅延時間が数十から数百 fs である必要があるが、一般的な反射型分光器では十倍以上(数ピコ秒以上)の遅延が生じてしまう。本研究では、ギャップ幅が 100 μm 以下のチャンネルカット結晶を開発することで、遅延時間の要求を満たした。

(2) X 線 SDO からの分割パルスの強度・位置診断法を確立し、その精度が各種応用研究に対して十分であることを確認した。

(3) XFEL のパルス時間構造を直接的に評価するため、強度自己相関法を実施した。本手法は、SDO によって発生させた 2 つのレプリカパルス間の時間差を変化させながら非線形媒質へ照射し、非線形信号強度を測定するものである。測定される時間トレースは、元々のパルスの時間領域自己相関関数となるため、パルス形状としてモデルを設定することで時間幅の導出が可能である。その簡便さ故に、広い波長域における超短パルスレーザー評価法として広く普及しているものの、X 線領域では非線形光学効果の効率の低さ、X 線 SDO の不足により実現していない。申請者らの開発した高安定 X 線 SDO、そして本研究によるセルフシード型 XFEL によって、世界初となる XFEL パルス幅の直接測定を試みた。

(4) 測定条件を最適化し、純水を測定試料としたダブルパルス XSVS 法による第 2 近接 O 原子間距離 (約 3Å) での揺らぎ測定を試みた。この空間スケールでの揺らぎは世界最高性能の X 線非弾性散乱法により既に測定されており、その結果と比較することで、本手法の実現可能性を評価した。

4. 研究成果

(1) ギャップ幅約 90 μm の Si(111)チャンネルカット結晶分光器 (以下、 μCCM と呼ぶ) を設計・試作した。SPRING-8 BL29XU 1 km ハッチにおける高分解能ロッキングカーブ測定によって 67% のピーク反射率を得て、理想的な反射率である 81% から大きな劣化が無いことを確認した。この反射率の低下は素子製作時に生じた反射表面の結晶性の乱れや粗さに起因し、平面波 X 線トポグラフィによる評価でもスペックル状の反射プロファイルを得た。数値シミュレーションにより、セルフシード増幅に対して大きな影響を及ぼさないことを確認した。また、X 線ビームのオフセット量からギャップ幅を求めた結果、設計値通りの 90.0 μm (10 keV における遅延時間 119 fs に相当) であることを確認し、セルフシード法に適用可能であることを示した。開発した Si(111) μCCM を SACL A の分光器チャンバへ導入し、下流に位置する Si(220)ダブルチャンネルカット分光器を用いて μCCM 後のスペクトル (増幅無し) を測定した結果、テールを含まない幅約 1 eV のスペクトルであることを確認した (図 1)。従って、従来の透過型と異なり、バンド幅の広い SASE 成分を完全除去可能なセルフシード用分光器を開発することに成功した (文献①)。

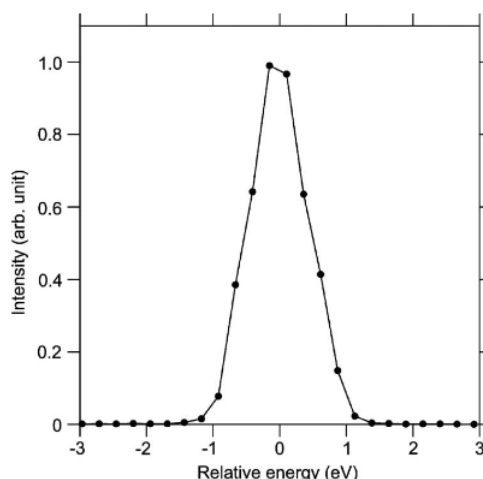


図 1 Si(111) μCCM 後の平均スペクトル。

(2) Si(111) μCCM を利用し、SACL A においてセルフシード増幅を確認した。電子ビームの時空間位置、アンジュレータパラメータの調整などを経て、平均バンド幅 3 eV の XFEL を発生し、Si(111)二結晶分光器後の強度を SASE に対して約 6 倍にまで向上させることに成功した。この成果は、調整の困難さやゲインの低さのため実証に留まっていたセルフシード方式を実用レベルへと引き上げた成果として注目され、論文が Nature Photonics へ掲載された (文献②)。

(3) 大阪大学山内研究室の独自技術である大気圧プラズママッチング手法を μCCM へ施すことで、結晶性の劇的な改善に成功した。より分解能の高い分光器の利用が可能となり、Si(220) μCCM を利用したセルフシード方式により、平均バンド幅 0.6 eV の XFEL 発生に成功した (文献③)。このセルフシード型 XFEL を利用することで、X 線 SDO 後の強度が SASE に対して約 10 倍にまで向上することを確認した。

(4) 高空間分解能の X 線カメラを利用し、1 μm 径にまで集光した分割 X 線ビームの集光位置安定性を評価した (図 2)。相対的なビーム位置の揺らぎは約 0.1 μm RMS とビームサイズに対して十分小さく、極限集光下でも安定した測定を行えることを確認した。また、X 線 SDO を He 雰囲気下で稼働できるように整備し、光学系の効率を数倍に高めることに成功した。

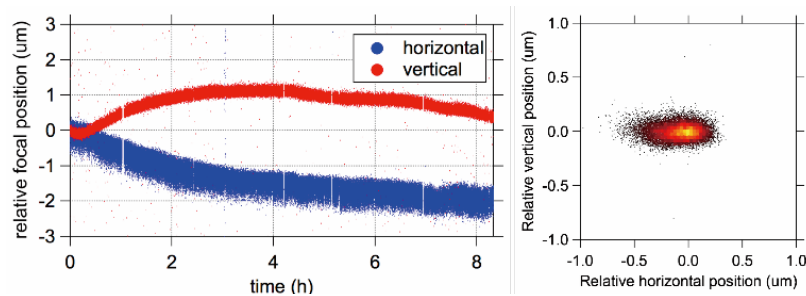


図2 相対的な集光位置のトレンド (左)、10000 ショットのヒストグラム。

(5) ジルコニウムの X 線直接 2 光子吸収を信号とした強度自己相関法により、XFEL のパルス幅を測定した。累計 800 万ショット以上のデータを取得し、慎重なデータ解析を行うことで、時間構造をガウス関数で仮定した場合、時間幅 7.6 ± 0.8 fs であることを確認した (図 3)。また、測定した自己相関関数は理論計算により導出した X 線 SDO 後の時間構造ともよく一致し、時間構造を正確に見積もることに成功した。本成果は X 線領域における初のパルス時間構造の直接測定であり、将来のモデルフリー測定へ向けた重要なマイルストーンとなる。なお、論文は現在 *Physical Review Letters* において査読中である。

(6) SACLA において、純水中の第 2 近接 O 原子間距離 (約 3\AA) の揺らぎをダブルパルス XSVS 法により測定した。揺らぎの緩和時間は第 1 パルスの強度に大きく依存しており、X 線吸収による熱発生とそれともなうダイナミクスの変化 (ダメージ) を確認した。ダメージの指標となる広角 X 線散乱プロファイルをもとに、ダメージを受けていないと考えられるショットのみを評価することで、X 線非弾性散乱法の結果とよく一致するスペックル可視度の変化を抽出することに成功した。本成果はダブルパルス XSVS 法による初のメソスケール揺らぎ測定の成功例であり、本手法の有効性ととも困難さも実験的に示したものとして注目されており、*Nature Communications* に論文が掲載された (文献④)。なお、本成果は米国 Oak Ridge National Laboratory の篠原裕也博士の研究グループとの共同研究によって得られたものである。

(7) 試料ダメージ以外にも X 線 SDO を利用したダブルパルス XSVS 法の課題を見つけた。中でも、これまで報告されている X 線 SDO のほぼ全てで利用されている波面分割 (結晶素子のエッジ部を X 線光軸上に挿入し、一部を結晶により反射、それ以外をそのまま通過させるビーム分割法) では、試料上で空間的に再重複させるためには両分割ビーム間に角度差が生じる。この角度差によって、検出器上で重複すべきスペックルが時間差ゼロにおいても分離してしまい、揺らぎの情報を抽出することが困難になるということが問題視された。この角度差の影響の表式化、さらには克服する手法を提案した。本成果はダブルパルス XSVS 法のある種パイブルとして注目され、*Physical Review Research* に掲載され、Editor's suggestion に選出された (文献⑤)。なお、本成果は米国 SLAC National Accelerator Laboratory の Diling Zhu 博士らのグループとの共同研究で得られたものである。

<引用文献>

- ① T. Osaka, I. Inoue, R. Kinjo, T. Hirano, Y. Morioka, Y. Sano, K. Yamauchi and M. Yabashi, "A micro channel-cut crystal X-ray monochromator for a self-seeded hard X-ray free-electron laser," *Journal of Synchrotron Radiation* **26**, 1496–1502 (2019).
- ② I. Inoue, T. Osaka, T. Hara, T. Tanaka, T. Inagaki et al., "Generation of narrow-band X-ray free-electron laser via reflection self-seeding," *Nature Photonics* **13**, 319–322 (2019).
- ③ S. Matsumura, T. Osaka, I. Inoue, S. Matsuyama, M. Yabashi, K. Yamauchi and Y. Sano, "High-resolution micro channel-cut crystal monochromator processed by plasma chemical vaporization machining for a reflection self-seeded X-ray free-electron laser," *Optics Express* **28**, 25706–25715 (2020).
- ④ Y. Shinohara, T. Osaka, I. Inoue, T. Iwashita, W. Dmowski, C. W. Ryu, Y. Sarathchandran and T. Egami, "Split-pulse X-ray photon correlation spectroscopy with seeded X-rays from X-ray laser to study atomic-level dynamics," *Nature Communications* **11**, 6213 (2020).
- ⑤ Y. Sun, M. Dunne, P. Fuoss, A. Robert, D. Zhu, T. Osaka, M. Yabashi and M. Sutton, "Realizing split-pulse x-ray photon correlation spectroscopy to measure ultrafast dynamics in complex matter," *Physical Review Research* **2**, 023099 (2020).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Yuya Shinohara, Taito Osaka, Ichiro Inoue, Takuya Iwashita, Wojciech Dmowski, Chae Woo Ryu, Yada Sarathchandran, and Takeshi Egami	4. 巻 11
2. 論文標題 Split-pulse X-ray photon correlation spectroscopy with seeded X-rays from X-ray laser to study atomic-level dynamics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 6213
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-020-20036-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Shotaro Matsumura, Taito Osaka, Ichiro Inoue, Satoshi Matsuyama, Makina Yabashi, Kazuto Yamauchi, and Yasuhisa Sano	4. 巻 28
2. 論文標題 High-resolution micro channel-cut crystal monochromator processed by plasma chemical vaporization machining for a reflection self-seeded X-ray free-electron laser	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 25706-25715
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.398590	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Yanwen Sun, Mike Dunne, Paul Fuoss, Aymeric Robert, Diling Zhu, Taito Osaka, Makina Yabashi, and Mark Sutton	4. 巻 2
2. 論文標題 Realizing split-pulse x-ray photon correlation spectroscopy to measure ultrafast dynamics in complex matter	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 23099
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.2.023099	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Ichiro Inoue, Kenji Tamasaku, Taito Osaka, Yuichi Inubushi, and Makina Yabashi	4. 巻 26
2. 論文標題 Determination of X-ray pulse duration via intensity correlation measurement of X-ray fluorescence	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 2050-2054
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1107/S1600577519011202	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Taito Osaka, Ichiro Inoue, Ryota Kinjo, Takashi Hirano, Yuki Morioka, Yasuhisa Sano, Kazuto Yamauchi, and Makina Yabashi	4. 巻 26
2. 論文標題 A micro channel-cut crystal X-ray monochromator for a self-seeded hard X-ray free-electron laser	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 1496-1502
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577519008841	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Inoue Ichiro, Osaka Taito, Hara Toru, Tanaka Takashi, Inagaki Takahiro, Fukui Toru, Goto Shunji, Inubushi Yuichi, Kimura Hiroaki, Kinjo Ryota, Ohashi Haruhiko, Togawa Kazuaki, Tono Kensuke, Yamaga Mitsuhiro, Tanaka Hitoshi, Ishikawa Tetsuya, Yabashi Makina	4. 巻 13
2. 論文標題 Generation of narrow-band X-ray free-electron laser via reflection self-seeding	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Photonics	6. 最初と最後の頁 319 ~ 322
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41566-019-0365-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 10件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 大坂 泰斗
2. 発表標題 X線自由電子レーザー先端利用のための新しいX線光学系の開発
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会放射光科学合同シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大坂 泰斗
2. 発表標題 X線自由電子レーザー-SACLAの高度化と新たな可能性
3. 学会等名 光・量子デバイス研究会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Taito Osaka, Ichiro Inoue
2. 発表標題 Road to Self-Seeding at SACLA
3. 学会等名 PhotonDiag 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Taito Osaka
2. 発表標題 The development and use of unique x-ray optics for free electron lasers
3. 学会等名 SPring-8 Symposium 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Taito Osaka
2. 発表標題 Advances on self-seeding at SACLA
3. 学会等名 2nd Forum on Advance FEL Techniques (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大坂泰斗, 井上伊知郎, 山田純平, 松村正太郎, 犬伏雄一, 登野健介, 佐野泰久, 山内和人, 玉作賢治, 矢橋牧名
2. 発表標題 強度自己相関法による硬X線FELのパルス幅評価
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Taito Osaka
2. 発表標題 New optical scheme produces energetically narrower x-ray beams
3. 学会等名 Future of SEeded free Electron lasers (FUSEE Workshop 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taito Osaka
2. 発表標題 Generation of Exotic X-Ray FELs with Novel Crystal Optics
3. 学会等名 The 2019 Gordon Research Conference on X-Ray Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taito Osaka
2. 発表標題 Generation of Exotic X-Ray FELs with Novel Crystal Optics
3. 学会等名 Gordon Research Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taito Osaka, Ichiro Inoue, Takashi Hirano, Yuki Morioka, Shotaro Matsumura, Yasuhisa Sano, Yuichi Inubushi, Kensuke Tono, Kazuto Yamauchi and Makina Yabashi
2. 発表標題 Upgrade of Hard X-Ray Split-and-Delay Optical System at SACLA
3. 学会等名 International Conference on X-ray Optics and Applications 2019 (XOPT2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大坂泰斗
2. 発表標題 反射型セルフシードによるXFELの狭帯域化
3. 学会等名 第25回FELとHigh-power Radiation研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大坂泰斗
2. 発表標題 反射型セルフシードによるXFELパルスの時間コヒーレンスの改善
3. 学会等名 第32回放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taito Osaka
2. 発表標題 Development of hard X-ray split-delay optics at SACLA
3. 学会等名 The 13th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (SRI2018)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

以下3賞を受賞。 1. 大坂泰斗、第25回日本放射光学会奨励賞、日本放射光学会、2021年1月 2. Ichiro Inoue, Taito Osaka, FELs of Europe Award on Photon Transport and Diagnostics, FELs of Europe, October 2020. 3. Taito Osaka, SPRUC 2020 Young Scientist Award, SPRUC, September 2020.

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------