

令和元年9月9日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14137

研究課題名(和文) X線ポンプ・X線プローブ法によるフェムト秒X線ダメージ過程の解明

研究課題名(英文) Understanding femtosecond X-ray damage processes via X-ray pump-X-ray probe scheme

研究代表者

井上 伊知郎(Inoue, Ichiro)

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・基礎科学特別研究員

研究者番号：30783401

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、X線自由電子レーザー(XFEL)から出射された高強度X線が物質に照射された際に起こるフェムト秒X線ダメージ過程を解明することにある。そのために、ダイヤモンド薄膜を試料としてXFEL照射後にフェムト秒の時間スケールで起こる電子励起や構造変化を時間間隔を制御したダブルパルスX線レーザーを利用することで測定した。実験の結果、XFEL照射後約10フェムト秒程度で炭素-炭素間の共有結合が破壊されて原子間のポテンシャルが等方的になり、このポテンシャルの変化によってXFEL照射後20フェムト秒後から原子変位が起こることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高強度のX線自由電子レーザーを用いた実験では、パルス幅と同程度のフェムト秒時間スケールで起こるX線ダメージが無視できないという問題点がある。本研究によって明らかになった、電子励起による化学結合の切断や原子変位といったフェムト秒の時間スケールで起こるXFELの物質へのダメージ過程は、X線1分子構造解析などをはじめとした高強度XFELの利用実験を支える基礎となることが期待される。

研究成果の概要(英文)：To understand femtosecond damage processes induced by intense X-ray free-electron laser (XFEL) pulses, we performed a real-time observation of intense X-ray-induced electronic and structural changes in diamond through X-ray pump-X-ray probe diffraction technique using twin XFEL pulses with variable time separations. We find that chemical bonds of diamond are broken ~10 fs after XFEL irradiation, following inertial atomic motion caused by the interatomic potential changes.

研究分野：X線光学

キーワード：X線自由電子レーザー フェムト秒 放射損傷 ポンププローブ法

1. 研究開始当初の背景

近年、米国や日本で実現した X 線自由電子レーザー(X-ray free-electron laser; XFEL)によって X 線科学は変革の時を迎えている。XFEL では最先端の放射光源と比較して 10 億倍もの超高輝度な X 線がフェムト秒(femtosecond; fs)の極短パルスとして出射される。この短いパルス幅によって放射線損傷が起こる前に試料からの X 線散乱を測定することが可能になった。その結果、従来の放射線量の限界を超える高強度 X 線を使った場合でも放射線損傷なしの構造解析が実現できるようになり、原子分解能の X 線構造解析に必要な結晶サイズがマイクロメートルからナノメートルへとスケールダウンされた。現在では XFEL を集光することで更に高強度な X 線を生成し、1 つの分子を原子分解能で構造決定する「X 線 1 分子構造解析」の実現も視野に入りつつある。

X 線 1 分子構造解析は、材料科学や生物科学に大きなインパクトを与え得る革新的な計測法である。しかし、高強度 XFEL を利用するこの計測法では、パルス幅と同程度のフェムト秒時間スケールで起こる X 線ダメージが無視できないという問題点がある。XFEL が試料に照射されると光電吸収やオージェ過程によって自由電子が原子から放出される。これらの自由電子は周りの原子と次々と衝突することで電子を剥ぎ取り、原子のイオン化が進行する。そして、イオン化した原子間のクーロン反発力によって原子位置の変位が起こる。

試料の原子位置や電子状態が変わると X 線散乱の様子も変わるため、高強度 XFEL を利用する実験の解釈には X 線ダメージの効果を組み込んだ構造解析の理論が必要不可欠である。これらの解析法を実現するためには X 線ダメージをモデル化して、推定した構造に XFEL が照射した際の散乱像を計算する必要がある。しかし、どのようなモデルが現実の X 線ダメージの物理を適切に表現できるかは議論の最中である。この現状を打破し、信頼できる実験データに基づいて XFEL による試料へのフェムト秒ダメージを解明することが、X 線 1 分子構造解析などの高強度 XFEL の利用研究を実現するために求められていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、XFEL から出射された高強度 X 線が物質に照射された際に起こるフェムト秒 X 線ダメージ過程を解明することにある。具体的には、研究代表者らが日本の XFEL 施設 SACLA において開発した「X 線ポンプ・X 線プローブ法」によって、高強度 X 線が引き起こす、(i) 原子のイオン化の進行速度と程度、および (ii) 原子変位の時間発展を観測することを目指した。さらに、実験結果を説明できる理論モデルを構築することによってフェムト秒 X 線ダメージの物理描像を明らかにすることを最終目標として研究を実施した。

3. 研究の方法

X 線ポンプ・X 線プローブ法では、まず、SACLA において時間間隔を 0 fs から 150 fs までの間で制御したダブルパルスを生成する。そして、最初のパルス(ポンプ光)を試料にダメージを与える光として利用し、時間的に遅れた次のパルス(プローブ光)を試料におけるダメージの程度を評価するために用いる。このとき、ダブルパルスの時間間隔を様々に変えながらダメージの程度を評価することによって、フェムト秒の時間スケールでどのように X 線ダメージが進行していくのかを明らかにすることができる。

本研究では、まず、光子エネルギーを大きく離れたダブルパルス XFEL の生成技術に取り組み、光子エネルギーが 4 keV 程度離れたダブルパルス(ポンプ光: 7.8 keV, プローブ光: 11.5 keV)の生成に成功した。さらにこのダブルパルス XFEL を X 線集光ミラーを用いて 200 nm 程度のサイズにまで集光する技術を確立した。

この時間間隔を制御したダブルパルスを用いてダイヤモンド薄膜を試料とした X 線ポンプ・X 線プローブ実験を SACLA において行った。光子エネルギー 7.8 keV のポンプ光と 11.5 keV のプローブ光を集光ミラーによって 200 nm のサイズに集光し、集光点にダイヤモンドを設置した。そして、ポンプ光とプローブ光の時間間隔を様々に変えながら、ダイヤモンドからのプローブ光の 111, 220, 311, 400, 331 ブラッグ反射およびポンプ光の 220 ブラッグ反射の回折像を 2 次元検出器を用いてパルス毎に測定した。このときポンプ光 1 パルスの照射で試料が不可逆的に破壊されてしまうため、パルス毎に XFEL の試料への照射位置を変えながら実験を行った。さらに、ダイヤモンド薄膜をミラーよりも上流に設置し、ポンプ光とプローブ光の波長の違いによるブラッグ反射角の違いを利用して、それぞれのブラッグ反射の回折強度をモニターすることによって、ポンプ光とプローブ光のパルス毎の強度を評価した。この強度の評価に用いたダイヤモンド薄膜は 20 μm 以下と十分薄く XFEL の強度をほとんど失うことなく(透過する XFEL の強度は、ダイヤモンドに入射する XFEL の強度の 95%以上)、上記の X 線ポンプ・X 線プローブ実験を行うことができた。

4. 研究成果

図1にSACLAで行ったX線ポンプ・X線プローブ実験のセットアップおよび測定した回折像を散乱角に垂直な方向に積算することによって得られた1次元回折強度プロファイルを示す。ダブルパルスの時間化間隔が大きくなるにつれて、プローブ光のブラッグ反射強度が減衰していく様子が測定された。これは、ポンプ光の照射によるダイヤモンドへのダメージがフェムト秒の時間スケールで進展することを意味している。

得られた実験データから多極子モデルによって、ポンプ光照射後のダイヤモンドの電子密度の空間分布を求めた結果、図2に示すように、ポンプ光照射後20 fs程度から炭素原子の変位が起こり始めることが明らかになった。

また、実験データを詳細に解析することによって、この原子変位が起こり始める以前に炭素原子の価電子の空間分布が大きく変化しており、特にポンプ光照射後約10 fs程度で炭素-炭素間の共有結合が破壊されて価電子の空間分布が等方的になることが明らかになった(図3)。この結果は、ポンプ照射によって原子間のポテンシャルが変化して等方的になることが原子変位の駆動力となっていることを示唆している。これらの実験結果から、X線自由電子レーザーの照射による物質への構造ダメージが非熱的なものであることが明らかになったといえる。

X線ポンプ・X線プローブ実験によって得られたXFELによるダメージ過程は((i) 20 fsで原子変位が起こり始める、(ii) 10 fs程度で共有結合が破壊される)、tight-binding近似を利用した半古典的なプラズマ生成モデルによって再現できることを最近確認することができた。すなわち、XFELと物質とのフェムト秒の時間スケールでの相互作用を説明できるような物理モデルを選択することに成功したと言える。これらの結果は現在投稿論文としてまとめている段階であり、近日中に投稿する予定である。本研究によって明らかになった、フェムト秒の時間スケールでのXFELの物質へのダメージ過程は、X線1分子構造解析などをはじめとした高強度XFELの利用実験を支える基礎となることが期待される。

最後に本研究の副次的な成果について述べたい。本研究の遂行のために行ったダブルパルスXFELの発振技術の開発やXFELの評価法の開発を元にして、セルフシードXFELの発振や高調波XFELの抽出技術といった新しいXFEL光源および利用法の開発に成功した。これらの高度なXFELの発振モードは、今後XFELの応用範囲を広げることに貢献し得るだろう。

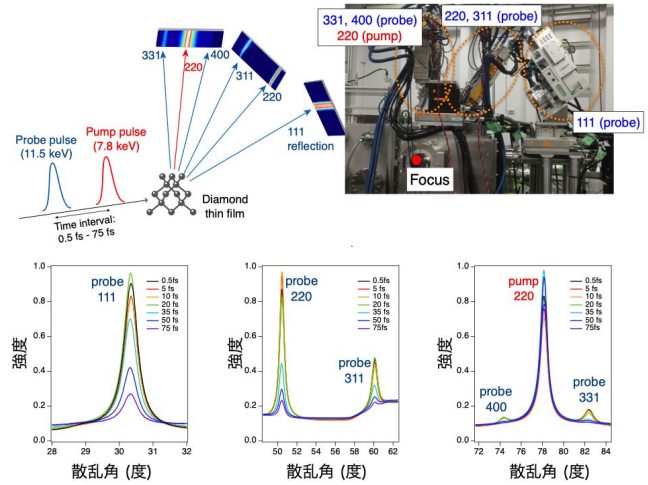
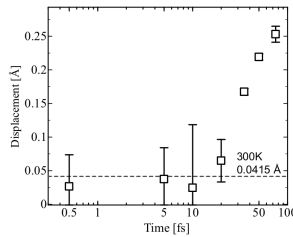
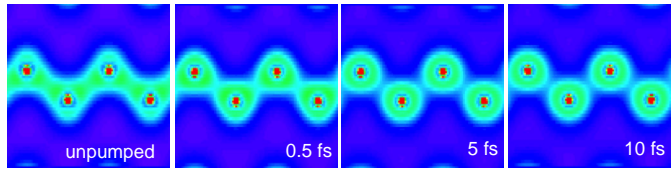


図1: X線ポンプ・X線プローブ実験のセットアップおよび1次元回折強度プロファイル



(左) 図2: ポンプ光照射後の原子変位の時間変化

(下) 図3: ポンプ光照射後のダイヤモンド(110)面の価電子の空間密度分布の時間変化



5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

- I. Inoue, T. Osaka, T. Hara et al., Nature Photon. 13, 319-322 (2019). (査読有り)
DOI: <https://doi.org/10.1038/s41566-019-0365-y>
- I. Inoue, T. Osaka, K. Tamasaku et al., J. Synchrotron Rad. 25, 346-353 (2018). (査読有り)
DOI: <https://doi.org/10.1107/S160057751800108X>
- I. Inoue, T. Hara, Y. Inubushi et al., Phys. Rev. Accel. Beams 080704 (2018). (査読有り)
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevAccelBeams.21.080704>
- 井上伊知郎, 矢橋牧名, "X線ハーモニックセパレータ:「従来の100倍明るいX線ビームを作り出す新技術」, アイソトープニュース 730, 23-25 (2018). (査読無し)
https://www.jrias.or.jp/books/pdf/201812_TRACER_INOUE_HOKA.pdf

〔学会発表〕(計 14 件)

- 井上伊知郎: "XFELの新奇特性の開拓とその利用" (日本放射光学会 奨励賞受賞講演), 第32回日本放射光学会年・放射光科学合同シンポジウム, 福岡, 1月 (2019).
- 井上伊知郎, 玉作賢治, 犬伏雄一, 大坂泰斗, 矢橋牧名, "蛍光X線の強度干渉現象を利用したXFELのパルス幅計測", 福岡, 1月 (2019).
- I. Inoue, T. Hara, Y. Inubushi et al., "Temporal diagnostics of femtosecond e-bunches via X-ray intensity interferometry", IBIC2018, Shanghai, China (2018).
- I. Inoue, "Reflection self-seeding at SACLA"(invited), SRI2018, Taipei, Taiwan (2018).
- I. Inoue, T. Osaka, K. Tamasaku et al., "Extracting specific harmonics of undulator radiation using an X-ray harmonic separator", SRI2018, Taipei, Taiwan (2018).
- I. Inoue, "Optics developments at SACLA: harmonic separator and μ -channel cut crystal", APS-ESRF-SPring-8 3-way meeting, Lemont, USA (2018).
- I. Inoue, "High energy pink beamline", APS-ESRF-SPring-8 3-way meeting, Lemont, USA (2018).
- I. Inoue, T. Osaka, T. Inagaki et al., "Reflection self-seeding at SACLA", XOPT2018, Yokohama (2018).
- 井上伊知郎, 大坂泰斗, 玉作賢治, 大橋治彦, 山崎裕史, 後藤俊治, 矢橋牧名, "X線自由電子レーザー・次世代放射光源のためのハーモニックセパレータの検討", 第31回日本放射光学会年・放射光科学合同シンポジウム, つくば, 1月 (2018).
- I. Inoue, "Reflection self-seeding at SACLA", 9th Hard X-ray FEL Collaboration Meeting, Kannabe, Japan (2017).
- I. Inoue, "Hanbury Brown-Twiss interferometry and X-ray harmonic separator", 9th Hard X-ray FEL Collaboration Meeting, Kannabe, Japan (2017).
- I. Inoue, T. Hara, Y. Inubushi et al., "Determination of XFEL pulse duration via X-ray intensity interferometry", XOPT2017, Yokohama, Japan, (2017).
- I. Inoue, Y. Inubushi, T. Osaka et al., "Observation of X-ray interaction with matter in femtosecond-ångstrom resolutions", Gordon Research Conference on X-ray Science, Easton, USA (2017).
- I. Inoue, "Recent developments of X-ray optics and photon diagnostics at SACLA" (invited), PhotonDiag 2017, Menlo Park, USA (2017).

〔その他〕
ホームページ

X線ハーモニックセパレーター -従来の100倍明るいX線ビームを作り出す新技術- (2018年3月1日)

http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180301_1/

電子ビームの時間幅「1,000兆分の1秒」の評価法を開発 -X線の強度干渉現象を利用して時間分解能の限界を突破- (2018年8月31日)

http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180831_2/

SACLAの明るさを6倍にすることに成功 -波長のそろったX線を種としたレーザー発振を実現- (2019年3月5日)

http://www.riken.jp/pr/press/2019/20190305_1/

6. 研究組織

(1) 研究分担者

(2) 研究協力者

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。