



X線自由電子レーザー

X-Ray Free Electron Laser

石川哲也
Tetsuya Ishikawa

独立行政法人理化学研究所
播磨研究所放射光科学総合研究センター センター長

1 はじめに

科学技術の基本の一つに観察・観測があり、最も古くから使われてきた観察手段は「光」である。光は、物体に当たって散乱されるが、その散乱光を眼球の水晶体(レンズ)で網膜上に結像し、そこで電気信号に変換して脳に伝達することによって、我々は物体を見ている。目に見える光は、電磁波の波長 $0.4\mu\text{m}$ から $0.8\mu\text{m}$ 程度の間のものであり、可視光と呼ばれる。その光源は、太陽、炎、星など自然界に遍在しているため、光の研究とその応用のための装置開発は古くから進められ、近代科学史の中でも多彩な科学技術分野の形成に深くかかわってきた¹⁾。光学素子のなかでも簡単なレンズを考えてみても、その一つの応用としての望遠鏡の発明は、直ちに天体観測に用いられて惑星の存在を明らかにした。その運動様式から地動説が正しいことが証明され、また運動の詳細な解析はニュートンによる運動方程式の発見につながり、巨視的な物体の運動を記述する古典力学完成の原動力となった。一方で、光学レンズのもう一つの応用である光学顕微鏡の発明は、ミクロの世界の扉を開き、生物が細胞から成り立っていることを示すことをはじめとして、様々な分野での基本的発見をもたらした。

光を用いて物を見る場合、到達可能な空間分解能の限界は、一般には波長の程度であり、光学顕微鏡でいくら頑張っても分子は見えない。ナノメートルの世界を見るためには、ナノメートル以下の波長の光、すなわちX線が必要になるが、これがレントゲンによって発見されたのは1895年である²⁾。最初は実体が不明だったためXと名付けられたX線は、初期には透過力の高さから医学診断への応用が注目されたが、その後波長の短い光であることが明らかになり、1912年のマックス・フォン・ラウエによる結晶でのX線回折の発見によって、ナノの世界を見るための必要不可欠なプローブへと発展していくことになった³⁾。一方X線の分光学は、特性X線の

発見やコンプトン散乱などを通じて量子物理学の形成に関わることになる⁴⁾。そこで発見された電子の波動性により、電子線もナノメートル以下の世界を見るための重要なツールとなっている。X線回折の発見からほぼ一世紀を経過した今日、X線は回折・分光の様々な手法を通して、広範な科学技術分野での基盤的ツールとなっている。特に、1970年代から高エネルギー加速器での放射光を光源として用いるようになってから、利用可能なX線強度は飛躍的増大を続けている⁵⁾。

一方で、量子物理学の発展は20世紀中盤にレーザーという自然界には存在しない光源を創出した⁶⁾。原子や分子では、光を吸収・放出することによって、電子が異なる量子力学的エネルギー準位間を遷移する。同一の励起状態にある多数の原子の集団に、ある特定の遷移に対応する光が入射すると、誘導放出によって多数の原子が波長・方向・位相の揃った光を放出する。これがレーザーの原理であり、結果として波長・方向・位相の揃った(しばしばコヒーレントと言われる)、極めて良質の光が得られる。レーザーは1960年代に発明されて以来、科学技術の広範な分野に応用されている。また、半導体レーザーの開発により小型化が進み、CDやDVDの読み取り装置に使われることにより、一家に一台以上のレーザーがあると言っても過言ではなからう。レーザーがコヒーレントであることは、光の位相を情報伝達に利用できることを意味しており、実際に位相情報を利用して3次元立体像構成を行うホログラフィー技術が進んできた⁷⁾。

より小さなものを見るためには波長の短い光が必要なために、レーザー発明の直後から、その短波長化に向けての様々な努力が重ねられてきた。しかしながら、原子や分子のエネルギー準位を利用する従来のレーザーでは、X線領域までの短波長化は困難であった。一方で、波長の制限のないコヒーレント光発生技術として、自由電子レーザーが1970年代に提案された⁸⁾。原子から解き放たれた自由電子を加速器で運動させて、コヒーレント光を発生させるのが、もともとのコンセ

プトである。初期にはリング型加速器のアンジュレータと共振器を組み合わせて赤外領域の光を取り出すものが製作されたが、1990年代に自己増幅自発放射 (SASE: self-amplified spontaneous emission) という概念⁹⁾ が提唱されるに及んで、X線領域でのレーザーが現実的になってきた。そして1990年代後半に米国が国立スタンフォード線型加速器センターで Linac Coherent Light Source (LCLS) と名付けられたX線自由電子レーザー施設の整備を計画し¹⁰⁾、また2000年代に入って、ヨーロッパ連合がドイツ・ハンブルグに European X-Ray Free Electron Laser (Euro XFEL) と呼ばれる施設の整備計画を打ち出した¹¹⁾。

欧米でX線自由電子レーザー施設整備が盛んに議論されていたころ、日本では第三世代放射光施設である SPring-8 の整備に忙殺されており、次世代光源としてのX線自由電子レーザーを考える余裕は殆どなかった。しかしながら、SPring-8 のために開発した、1km ビームラインでの空間的コヒーレントX線の利用研究や、長尺アンジュレータはX線自由電子レーザーと直接的に関連する技術を多数包含しており、欧米で計画検討のために開催されるワークショップ等に SPring-8 関係者はよく呼ばれていた。ところが、欧米の計画は SPring-8 以前のアンジュレータ技術をベースにしたものであり、SPring-8 で開発された真空封止型アンジュレータを用いると、欧米とは全く異なるコンセプトでX線自由電子レーザーを実現できる可能性があることが、次第に明らかになってきた。このため、理化学研究所では、平成13年度からX線自由電子レーザーのための要素技術開発研究を開始し、平成17年度にはプロトタイプ機を完成させ、平成18年度から国家基幹技術としてX線自由電子レーザー実機建設を進めることになった¹²⁾。計画では、平成22年度にハードウェアとして完成し、平成23年度から SPring-8 と同様な共同利用施設として、全世界の研究者の利用に供される予定である。

これまでの経緯をかなり端折った形で紹介したが、本稿ではX線自由電子レーザーのハードウェアを紹介し、期待される光源性能を記述する。その上で、X線自由電子レーザーが何に使えるのかという問いに、ある程度の答えを与える。その上で、材料分野での応用に関する管見を述べたい。

2 X線自由電子レーザーの特徴と性能¹³⁾

X線自由電子レーザーは、現時点では人類の誰もが見たことの無いX線領域のレーザー光を実現するものであり、硬X線領域のコヒーレント光という科学技術への強力なツールを提供するものである。光源としての性能は、波長0.1ナノメートル以下のX線領域で、SPring-8の10億倍以上のピーク強

度を持つ完全空間コヒーレントなパルス光を発生し、そのパルス幅は SPring-8 の1/1000以下のフェムト秒 (10^{-15} 秒) に迫るものとなる。このような性能向上は、フォトンファクトリーのような第二世代放射光施設から、SPring-8 に代表される第三世代放射光施設への性能向上と比較しても遥かに大きなものである。

この性能向上は多数の電子が出すX線がコヒーレントに干渉することによって生ずる。SASE方式のX線自由電子レーザーは図1に示すように、低エミッタンス電子銃から出た電子ビームを、線型加速器で加速し、長いアンジュレータによって発光させる構成となっている。線型加速器は低エミッタンス電子銃からの電子ビームの品質を落とさずに加速することが可能である。アンジュレータに入った電子ビームは最初ランダムに分布して光を出す。アンジュレータ内を進行する間の光と電子の相互作用によって、電子が光の波長間隔に整列するようになる。光の波長間隔に並んだ電子が、アンジュレータの中でコヒーレントに運動して光を出すと、その光はコヒーレントに重なって強め合う。多数の電子に位相関係が存在しない蓄積リングのアンジュレータでは、N個の電子が出す光の強さは1個の電子が出す光の強さのN倍であるが、コヒーレントに強めあう自由電子レーザーの場合にはN²倍の強度となる。アンジュレータで光を出した後の電子ビームは電磁石によって軌道を曲げてダンプに落とし、直線的に進む光だけを実験装置に導いて利用する。

このような優れた光源は、既に述べたように海外でも欧米の2箇所が開発が進められており、それらとの比較を図2に

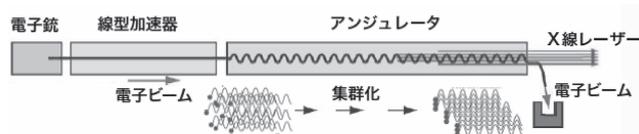


図1 X線自由電子レーザーの構成

我が国と欧米におけるXFEL開発計画

	【欧州】 DESY: Deutsche Elektronen-Synchrotron (ドイツ電子シンクロトロン研究所) European X-ray Free Electron Laser	【日本】 理化学研究所 & 高輝度光科学研究センター	【米国】 SLAC: Stanford Linear Accelerator Center (スタンフォード大学線形加速器研究センター) LCLS: Linac Coherent Light Source
全長	3.3km	0.7km	4km
発振波長	0.085nm	0.08nm	0.15nm
レーザー発振に必要な加速エネルギー (その分だけ加速器が必要)	25 GeV アンジュレータ周期長: 50mm	9 GeV アンジュレータ周期長: 15mm (アンジュレータ周期長が短いほど、必要エネルギーを抑えることができる)	15 GeV アンジュレータ周期長: 30mm
総コスト	9.08億ユーロ (約1300億円)	369億円	6.15億ドル以上 (約720億円)
運転開始	2013年	2010年	2009年~2010年
特徴	EU等13ヶ国共同プロジェクト プロトタイプ機にて、波長13nmのレーザー発振に成功	世界最高性能を世界に先駆けて実現。SPring-8とXFELが共存する世界唯一の放射光研究拠点。	DOEの研究施設整備計画においてプライオリティ第3位に位置付け、既存施設の活用により、3億ドル以上を削減



図2 欧・日・米のX線自由電子レーザー開発計画

示す。日本の計画の大きな特徴は、欧米の計画の1/4以下の規模でそれらとほぼ同等、あるいはそれ以上の性能を出す点にある。この小型化には、真空封止アンジュレータの採用による、磁場周期の短縮、磁場周期の短縮による必要電子ビームエネルギーの低減、線型加速器に高周波加速管を採用することによる加速勾配の増大とその結果としての線型加速器長の短縮等が複合的に寄与している。しかしながら、すべてをコンパクトにするためには、今までに例にない高品質電子ビームが必要となり、それを供給するための新型電子銃の開発を余儀なくされた。また、加速器やアンジュレータのアライメントも全長にわたって誤差数マイクロメートル以下の設置が要求され、それに向けての技術開発が進められている。

X線自由電子レーザーを実現するためには、非常に小さな空間領域に多数の電子を押し込める必要がある。電子は負の電荷を持つので、互いに反発し合い、一般的には微小空間に閉じ込められてはいない。しかし加速された電子では相対論的効果によって反発力が小さくなり、実験室系からみた微小空間に大量の電子を詰め込むことが原理的には可能になる。日本のX線自由電子レーザー計画は、このことに基づいて、加速しながら進行方向の電子ビームサイズを圧縮していく方式をとっている。この考え方は、欧米のRFレーザー電子銃によって最初から高密度電子ビームを作ってそれを高勾配加速器で加速するのは対照的であるため、当初は理解を得られなかった。しかしながら、平成17年に試験加速器を製作し、平成18年に波長49ナノメートルでの自由電子レーザーを実現すると、我々の考え方の正しさが認められ、小規模なSASE型自由電子レーザーに採用しようという動きがヨーロッパを中心に始めている。試験加速器の写真を図3に示す。

単体としての性能の他に、日本の計画にはSPring-8と同一サイトに建設されるという大きな特徴がある。完成予想図を図4に示すが、X線自由電子レーザー用の線型加速器はSPring-8の1kmビームラインと平行に設置される。SPring-8蓄積リングから遠い側に電子銃が設置され、線型

加速器で電子が加速され、アンジュレータでX線レーザー光を作り、蓄積リング棟の近くに設置される実験棟に導かれる。この実験棟には、SPring-8からの放射光を導入することが可能であり、X線自由電子レーザーでポンプし、放射光X線でプローブするような測定手法が可能となる。また、一つの試料をX線自由電子レーザーと放射光の様々な計測手法を組み合わせて、多角的に理解する新しい方法論の開発が可能となるだろう。また、将来的にはX線自由電子レーザー光をSPring-8蓄積リングに導入し、その高エネルギー電子ビームでのコンプトン後方散乱を用いて γ 線を生成する可能性もある。

3 X線自由電子レーザーの利用： ナノ三次元構造のイメージング

X線自由電子レーザーは、従来の光源と同様に利用方法は無限にあるが、そのなかでも最近注目を集めているのは、原子分解能でのイメージングである。

顕微鏡の空間分解能の理論限界は使用する光の波長程度となるため、短波長のX線を使う顕微鏡では原理的にはサブナノメートル分解能を達成することが可能である。しかしながら、今までは十分な性能を持つ光学素子作成が非常に困難であること等の問題があり、数十ナノメートルの分解能に留まっている。この分解能限界を打破する試みとして、コヒーレントX線を試料に照射して得られる散乱パターンから、計算によって実空間像を再構成するコヒーレント散乱顕微鏡の開発が進められた¹⁴⁾。電子密度の三次元フーリエ変換であるX線散乱パターンを、レンズを用いて逆フーリエ変換すると実空間での電子分布像が得られるはずであるが、高性能レンズがX線では得られないためにレンズの代わりに計算機を使って逆フーリエ変換を行うものである。しかしながら、散乱パターン計測ではフーリエ変換による実空間像再構成に必要な電磁波の位相情報が失われ、強度情報のみが得られるため、なんらかの方法で位相情報を回復する必要がある。計算

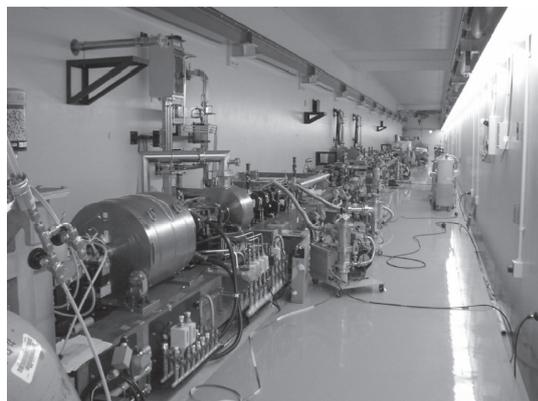


図3 SASE自由電子レーザー試験加速器

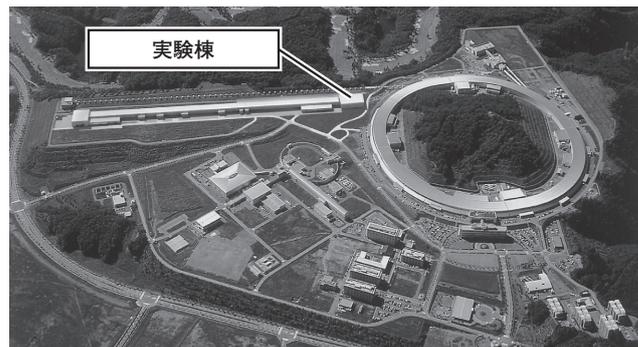


図4 X線自由電子レーザー施設完成予想図

機で位相回復を行うためには、入射電磁波は完全コヒーレントである必要があり、実験上もこの条件を整えることが必要となるため、X線自由電子レーザーの利用が期待されている。

概念的には、散乱パターンをナイキスト周波数より細かい間隔でサンプリング（オーバーサンプリング）することによって、位相回復に十分な数の方程式を得ることができる。実際にはGerchberg-Saxton¹⁵⁾が提案し、Fienup¹⁶⁾が改良した逐次近似計算法を用いると、高い確率で正しい位相に収束することが判っている。図5にSPring-8の航空写真を二次元フーリエ変換し、その位相を消して作った強度データから始めて、Fienupの方法で実空間像に戻したシミュレーション結果を示す。この方法は可視光レーザーでは良く知られているが、到達分解能は使用する波長程度であるため、可視光レーザーの散乱データから再生できる実空間像は光学顕微鏡でも見えてしまう。ところが、波長の短いX線に適用すると光学顕微鏡の限界を遥かに超えた分解能に到達できる。また、入射方向の異なる散乱パターンから3次元実空間像の再構成も可能となる。

X線を用いたこのようなコヒーレント散乱顕微法は、最初に比較的簡単に高い空間的コヒーレンスが得られる長波長の軟X線領域で試みられ¹⁴⁾、次第に短波長X線領域に移ってきている¹⁷⁻¹⁹⁾。SPring-8では5keV付近のX線により、無機試料の場合2次元投影では10nmを切る空間分解能が実現され、3次元実空間再構成でも30nm程度の分解能に到達している。軽い元素で構成され散乱強度が小さい生物試料でも、25nm程度の2次元投影空間分解能が達成されている。

このようなイメージング方法とX線自由電子レーザーを組み合わせると結晶ではない（すなわち、周期的な繰り返し構造をもたない）ナノ構造イメージングが可能になる、という予想のもとに世界中でこのようなイメージング手法の実現に向けての開発研究が進められている。特に、タンパク質分子の構造はその機能と強い関わりがあるとして、タンパク3000プロジェクトが進められたが、薬品の開発のために重要な膜た

んぱく質については、殆ど構造が決まっていないのが現状である。タンパク3000プロジェクトでの構造決定にはX線結晶回折と核磁気共鳴法（NMR）が用いられてきたが、重要な膜タンパク分子はNMRで解析するには分子量が大きすぎ、また結晶化が困難なためX線結晶解析もできなかったためである。X線自由電子レーザーによる、単分子原子分解能イメージングは、従来手法の困難を打ち破るものとして期待されている。X線自由電子レーザーでは光があまりに強いために、タンパク分子が壊れてしまうおそれがあるが、光パルスを十分に短時間化すると分子が壊れる前に構造データが取得可能であると予測されている²⁰⁻²¹⁾。

3次元の繰り返し構造（＝結晶構造）を持たない物質の原子分解能イメージングを可能にする点で、コヒーレント散乱イメージング法は特徴的であるが、電子顕微鏡のような薄片試料を作る必要はなく、バルクの内部情報のイメージングが可能になる。また、原理的には、液体中の物体のイメージングも可能になるので、将来的には生きた細胞内部の蛋白質の形態や相互作用をイメージとして捉えることが可能になるかもしれない。また、X線自由電子レーザーでは、パルス幅と同程度の高速現象の観察が原理的に可能となることから、原子・分子の形と動きを追いかける＝物質の機能を可視化するための、重要なツールとなることが期待されている。

4 材料科学での期待

ナノ三次元構造のイメージングは、基本的には電子密度の3次元マップを作るものであり、材料科学分野でも多くの応用を持つことは容易に予想される。ここでは、一つの具体例として、SPring-8で行われた合金中のメゾスコピックな析出の3次元可視化の結果¹⁹⁾を紹介することにより、X線自由電子レーザー利用での展開を考察したい。

アルミニウム材料などで合金化させることにより材料強度を制御するための機構として、析出硬化現象が知られてい

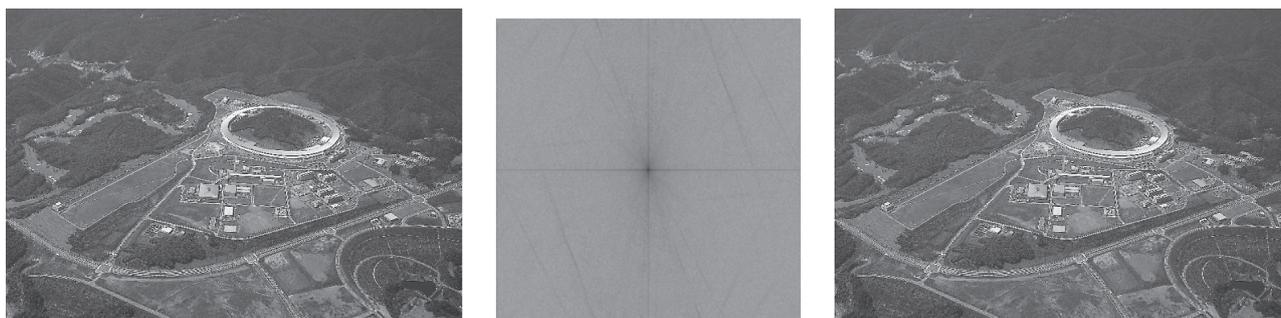


図5 SPring-8の航空写真（左）の2次元フーリエ変換を作り位相の消えた強度データを作る（中央）。これから、逐次近似法で位相回復を行うと、逆フーリエ変換によって元の像が再生される（右）。再生像は5000ステップの逐次近似を行って得たもの。

る。母材中に微小析出物を形成させることによって、材料硬度を上げることが可能であり、メゾスコピックな析出物の立体配置を理解することは、新たな合金設計にとって非常に重要である。このような析出物は、ひずみ場や濃度勾配によって他の析出物と干渉しながら成長すると考えられているが、その成長過程をその場観察することは、さらに進んだ合金設計の指針を与えることとなる。

元素構成比 96.376% Al, 0.763% Si, 0.010% Fe, 1.887% Cu, 0.431% Mn, 0.515% Mg, < 0.005% Cr, 0.004% Zn, 0.006% Ti, < 0.003% Zr のアルミニウム合金を 773K で 1 時間溶解し、水中でクエンチした後、448K のオイルバス中で 10 時間焼鈍した粒径約 $1\mu\text{m}$ の試料を観察した。試料中には、電荷密度が異なる領域が見出された。この試料中には構成が Al_2CuMg である S 相析出があることが知られており²²⁾、Al 母材の電荷密度が 7.8×10^2 電子/ nm^3 、 Al_2CuMg の電子密度が 1.0×10^3 電子/ nm^3 であることを利用して、試料中の析出領域の形状を再構成した。図 6 は、29 個の異なる方位からの回折パターンを利用して 3 次元再構成されたアルミニウム合金粒であり、 Al_2CuMg 析出物による高電荷密度領域が、粒のイメージ内部に描かれている。現状での空間分解能は 29nm であり、これは SPring-8 の輝度で制限されている。

ピーク輝度が圧倒的に高い X 線自由電子レーザーでは、このようなイメージングを単一パルスでしかも、より高い分解能で行うことが可能になり、単純に見積もると空間分解能は 1nm 以下となる。将来的には、析出の途中段階の時分割イメージングなども十分視野の中に入ってくるものと思われ、メゾスコピック、非破壊、埋もれた構造の可視化、時間変化のその場観察、といった他の方法とは相補的な原子レベルイメージング法として、様々な応用があるように思われる。

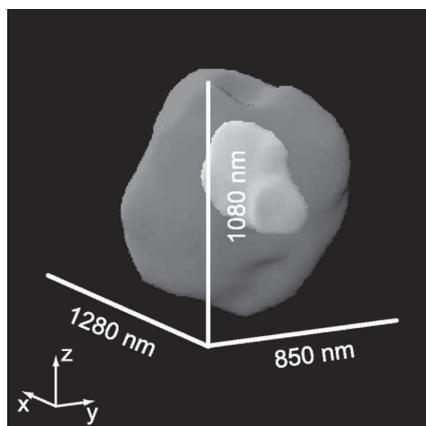


図 6 SPring-8 で測定された Al 合金粒中メゾスコピック析出物の 3 次元可視化。粒径約 $1\mu\text{m}$ の合金中の、数百 nm 径の埋もれた析出物の 3 次元構造が再構成されている。空間分解能 29nm。輝度の高い X 線自由電子レーザー利用によって、分解能が 1nm 以下まで向上することが期待されている。

5 おわりに

本稿では、現在建設が進められている X 線自由電子レーザー施設の紹介を行い、その応用として期待されている散乱イメージング法を紹介した。現在、サイエンスと産業の間の距離は急速に縮まり、またサイエンスが産業に応用される時間も、どんどん短縮されている。2010 年に完成する X 線自由電子レーザーにおいては、現在以上にサイエンスと産業の連携が密接になることを期待する。他方で、SPring-8 や X 線自由電子レーザーのような大型先端基盤施設は、単に個々の産業の要請に個別的にこたえる以上の役割を果たす必要があるようにも感じられる。この大きな役割に関しては、現状では一致する見解は存在しないが、X 線自由電子レーザーの完成や、その後続くであろう SPring-8 のアップグレードに向けて、産官学一体となって考えていくべきであろう。

参考文献

- 1) 例えば, E. Hecht : Optics 4th Edition, Addison Wesley, Boston, (2002)
- 2) W.C.Röntgen : Ann Phys, second ser. 64 (1898) 1, 13, 19.
- 3) L. V. Azaroff : X-ray Diffraction, McGraw Hill, New York, (1974)
- 4) L. V. Azaroff : X-ray Spectroscopy, McGraw Hill, New York, (1974)
- 5) SPring-8 website : <http://www.spring8.or.jp>
- 6) T. Maiman : Nature, London, 187 (1960), 493.
- 7) P. Hariharan : Basics of Holography, Cambridge University Press, Cambridge, (2002)
- 8) J. M. J. Madey : J. Appl. Phys., 42 (1971), 1906.
- 9) K-J. Kim : Nucl. Instrum, Methods, A 250 (1986), 396.
- 10) Stanford Linear Accelerator Center website : <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls/>
- 11) The European X-Ray Laser Project website : <http://www.xfel.eu/en/index.php>
- 12) 内閣府 website 第三期科学技術基本計画, <http://www8.cao.go.jp/cstp/kihonkeikaku/honbun.pdf>
- 13) SPring-8 Compact SASE Source (SCSS) : Conceptual Design Report, <http://www-xfel.spring8.or.jp/SCSSCDR.pdf>
- 14) J. W. Miao et al. : Nature, London, 400 (1999), 342.
- 15) R.W. Gerchberg and W. O. Saxton : Optik, 35 (1972), 237.

- 16) J. R. Fienup : Opt. Lett., 3 (1978), 27.
- 17) J. W. Miao et al. : Phys. Rev. Lett., 89 (2002),
0088303.
- 18) J. W. Miao et al. : Proc. Natl. Acad. Sci., USA, 100
(2003), 110.
- 19) Y. Takahashi et al. : Appl. Phys. Lett., 90 (2007),
184105.
- 20) R. Neutze et al. : Nature, London, 406 (2000), 752.
- 21) J. W. Miao et al. : Proc. Natl. Acad. Sci., USA, 98
(2001), 6641.
- 22) J. M. Silcock : J. Inst. Met., 89 (1960), 203.

(2008年6月30日受付)