

光の時間構造を使う

足立伸一 高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・放射光科学研究施設
〒305-0801 茨城県つくば市大徳 1-1
E-mail : shinichi.adachi@kek.jp

田中義人 理化学研究所・放射光科学総合研究センター・石川 X 線干渉光学研究室
〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
E-mail : yotanaka@riken.jp

1. はじめに

放射光は約50ピコ秒の時間幅を持つパルス光です。しかしほとんどの放射光ユーザーは、放射光をパルス光としてではなく、連続光として利用しています。せっかくパルス性を有しているのに利用しないなんてもったいないと思いませんか？ 赤外から紫外領域では、フェムト秒パルスレーザーを用いた研究が花盛りです。放射光が得意とする、より高いエネルギー領域に関心を寄せているレーザー研究者も多いことでしょう。実際に、ある種のパルスレーザーを用いると、軟 X 線領域までであればフェムト秒パルスを発生させることがすでにできていて、面白い研究成果が出始めています¹⁾。

なぜ放射光が得意とする真空紫外から硬 X 線領域において、パルス光利用研究がまだそれほど行われていないのでしょうか。それは、このエネルギー領域で手近に使いやすいパルス光源がないからです。しかし、放射光の時間構造を使いこなせば、サブナノ秒領域の放射光実験は難しいものではありません。サブナノ秒だからと馬鹿にしてはいけません。レーザー研究の歴史が示すように、「ナノ秒なくして、ピコ秒・フェムト秒なし」です。将来のフェムト秒 X 線実験に興味のあるあなた！まずは放射光の時間構造を使った時間分解測定の世界に足を踏み入れて見ませんか。

今回の「光の時間構造を使う」では放射光がなぜパルス光になるのか、その原理から始めて、放射光とレーザーの同期技術、放射光を望みの繰り返し周波数に間引く技術、放射光とレーザーのタイミングをモニターする技術についてなるべくわかりやすく解説します。最後に放射光の時間構造を利用した応用研究を概観するとともに、将来光源への展望に触れたいと思います。

2. 放射光の時間構造 (原理)²⁾

放射光の時間構造は、荷電粒子の加速機構によって決まっています。まず簡単に放射光施設における高速電子蓄積

機構について触れてみましょう。SPring-8 を例にしますと、蓄積リング中の電子の運動エネルギーは 8 GeV ですので、光速の99.999998%の速度で運動していることとなります。ご存じのように放射光とは、このように光速近くに加速された電子などの高速荷電粒子が磁場によって曲げられて加速度運動をするとき発生する電磁波です。第三代放射光施設では、アンジュレーターなどが使われて、より強い電磁波、すなわち放射光を発生させることができます。蓄積リング中の電子にとっては、放射光を発生させるとエネルギーを放出するわけですから、その放射光強度が強いほど、より自分自身の運動エネルギーを失い、そのまま失速し、最後には壁の内周にぶつかり消滅してしまいます。電子が回り続けるためには、放射光発生によって失ったエネルギーを高周波電場で補ってもらい必要があります。そのために、蓄積リング中に高周波 (RF) 加速空洞が設けられています。この RF 加速空洞を特定の位相 (安定位相) で通過する電子は加速エネルギーと放出エネルギーがバランスして蓄積リング内を安定に回り続けることができるのです。この安定位相の周りに形成される電子の集団のことを電子バンチと呼んでいます。この電子バンチがリング内の磁場中を通過すると電子バンチの進行方向の広がりに対応した時間幅を持つ放射光パルスが発生することになります。放射光パルスの時間幅は蓄積リングの運転条件にもよりますが、概ね半値全幅で50から100ピコ秒程度です。蓄積リングに存在できる電子バンチ数は、RF 加速空洞の高周波電圧の周波数と、電子のリング周回周波数の整数比によって決まり、この整数比をハーモニックナンバー (n_h) と呼びます。例えば、SPring-8 蓄積リング (8 GeV) と KEK の PF-AR リング (6.5 GeV) を比較すると、加速周波数はどちらも 508.58 MHz ですが、蓄積リングの周長が 1436 m (SPring-8) と 377 m (PF-AR) と約 4 倍異なるので、リング周回周波数はそれぞれ 209 kHz と 794 kHz であり、ハーモニックナンバーはそれぞれ、2436 と 640 になります。このハーモニックナンバーは蓄積リング内で電子を安定に蓄積できる場所の数であり、その場所を RF バケットと呼びます。必ずしもすべての RF バ

ケットに電子が均等に詰まっている必要はなく、蓄積リングの運転モードによって様々なフィリングパターンが可能で
す。したがって、電子バンチの間隔、すなわち放射光パ
ルスの時間間隔も、2 ns だけでなく、2 ns の整数倍をと
ることができるわけです。Fig. 1 に時間構造と重要なパラ
メータを示します。Fig. 2 には、実際に SPring-8 で運転さ
れた実績のあるフィリングパターンの中から数例を示しま
した。これらの図から、蓄積リングでは、パルス幅数十
ps のパルス列が、数 ns の整数倍の間隔をもって発生して
いることがわかります。原理的に実現できるパルス列の繰
り返し周波数は、209 kHz (1 つのパケットのみに電子が
入っている運転モードに対応) から 508.58 MHz (全ての
パケットに電子が入っているモードに対応) の範囲になり

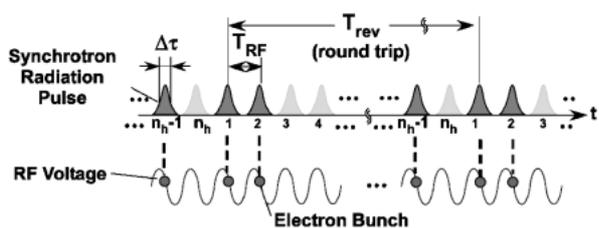


Fig. 1 Time structure of synchrotron radiation.

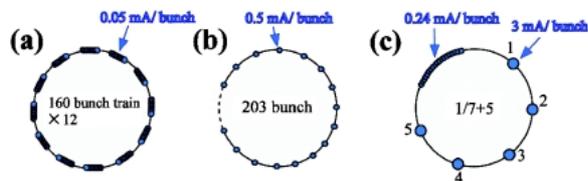


Fig. 2 Filling patterns of electron bunches in the storage ring (the examples in SPring-8).

ます。Table 1 に、主な放射光施設の時間構造に関するパ
ラメータをまとめました。

3. 放射光の時間構造を利用した測定法

放射光の時間構造を利用した測定法として、大きく分け
て、放射光を励起 (ポンプ) 光として使う方法と、プロ
ーブ光として使う方法があります。

まず、励起光として用いる場合についてですが、光電子
放出の時間分解測定や、核共鳴散乱実験がその例です。測
定対象とする現象の緩和時間より長い放射光パルス時間間
隔が必要なので、それに合わせたフィリングパターン (前
章) を選択します。検出系の時間は、放射光パルスの試料
への照射タイミングを基準にして決められます。検出器に
は、アバランシェフォトダイオード (APD) やマイクロ
チャンネルプレート (MCP) などが用いられています。

一方、プローブ光として放射光を利用する場合につい
て、時間分解能と対応する手法の関係を Fig. 3 に示しま
す。まず、蓄積リングでの時間分解測定の場合、放射光の
繰り返し周波数が高いため、数 ns より遅い時間の測定で
は、疑似連続光源とみなすことができ、検出器の時間分解
能を活かした測定ができます。図中(C)で示した領域では、
APD で検出した信号をマルチチャンネルスケーラー
(MCS) で取り込む手法があり、この場合、時間分解能約
1 ns は、APD の立ち上がりで決まっています。CCD カメ
ラなどの 2 次元検出器を利用する場合、露光時間で決ま
る時間分解能で測定することができます。より高速の領域
(図中(B)) では、パルス性を利用したポンプ・プローブ
法、すなわち、刺激を与えた瞬間よりある時間をおいた
X 線散乱分布をパルス X 線で得る方法が有効で、その時

Table 1 Parameters for synchrotron radiation facilities

	エネルギー (GeV)	リング周長 (m)	T_{RF} (ns)	T_{rev} (ns)	n_h	バンチ長 $\Delta\tau$ (ps)*1	最大電流値/バンチ (mA)	最大電荷量/バンチ (nC)
SPring-8	8.0	1436	1.97	4787	2436	34*2	3	14
PF	2.5	187	2.00	623	312	33*3	70	44
PF-AR	6.5	377	1.97	1257	640	62*3	60	75
UVSOR	0.75	53.2	11.1	177	16	108*4	70	12
ESRF	6.0	844	2.82	2797	992	73*5	16	45
APS	7.0	1104	2.84	3682	1296	65*6	16	61
ALS	1.0-1.9	197	2.00	656	328	65*7	25	16
BESSY II	1.7	240	1.97	795	400	16*8	20	16

*1 バンチ長は様々な条件で測定または計算された値であり、必ずしも最大電流値/バンチでの測定値ではありません。あくまで、目安とお考えください。

*2 SPring-8 年報2004年度 p. 19 (in FWHM)

*3 http://pfwww.kek.jp/pfacr/part_a/pf05aac1.pdf (in rms)

*4 <http://www.uvsor.ims.ac.jp/17uvsor/parameters.pdf> (in rms)

*5 <http://www.esrf.eu/Accelerators/Performance/> (in rms)

*6 http://www.aps.anl.gov/Facility/Storage_Ring_Parameters/node5.html (in rms)

*7 <http://www.als.lbl.gov/techspecs/srparameters.html> (in FWHM)

*8 <http://www.bessy.de/cms.php?idcatart=502> (in rms)

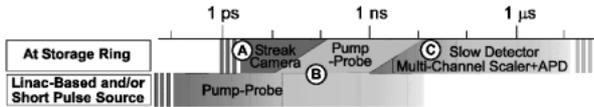


Fig. 3 Time resolution and the corresponding measurement methods.

間分解能は、刺激パルス、プローブ X 線パルスの時間幅、またはその制御時間精度で決まります。また、放射光パルスの持続時間より十分高速の時間領域 ($\ll 40$ ps : 図中(A)) では、放射光を連続光とみなせて、X 線ストリークカメラで散乱強度の超高速変化を調べることができます。X 線ストリークカメラの時間分解能は、光電面における二次電子の運動量分布で決まっており、ピコ秒程度です。このように放射光のもつ時間特性を利用して、対象とする現象の広い時間範囲の振る舞いから、超高速の振る舞いまで、眺めることができます。ただし、(B)ポンプ・プローブ法、および(A)ストリークカメラによる方法では、放射光とレーザーパルスや検出器との時間同期が必要となります。

4. 放射光との同期技術

放射光と同期をとるための手法としては、蓄積リング内の RF 加速空洞の電圧を駆動している元の RF 基準信号を分岐して、実験ステーションまでケーブルなどで導き、その信号に測定機器、または、刺激を与えるためのパルスレーザー等を時間同期させる方法が一般的です。

まず、RF 基準信号と電子バンチの同期精度について説明します。Fig. 4 の挿入図で示したように、RF 基準信号により制御されている RF 加速電圧 (RF 加速空洞での印加電圧) と電子バンチの間の位相が大きくずれる要因が二点考えられます。一つは RF 加速電圧の負荷によるピーク電圧降下の影響 (挿入図上) で、もう一つはアンジュレーターの放射パワー変化による電子のエネルギー損失変化の影響 (挿入図下) です。いずれも、電子が一定のエネルギーを維持できるように、RF 加速電圧における安定位相が変わることが原因です。等間隔でないフィリングパターンで運転されている場合 (Fig. 2 の(c) のような場合) には、電子バンチが連続して RF 加速空洞を通過するところでピーク電圧降下の影響が見られます。また、蓄積リング中に数多くのアンジュレーターがあり、その放射パワーが著しく変化した場合も、最大で 100 ps 程度の時間のずれが観測されています。より厳密に時間同期させるために、バンチ位相を観測し、測定系にフィードバックをかけるような方法の検討・開発が進められています。

次に、放射光パルスにピコ秒、フェムト秒のパルスを発生するレーザーを同期させる方法について説明します (Fig. 4)。超短パルスレーザーとしては、モード同期レー

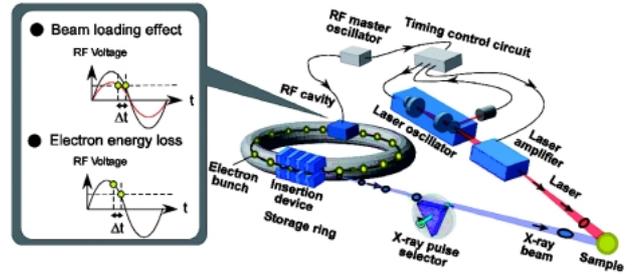


Fig. 4 Laser-SR synchronization system. Inset: Bunch phase change by beam loading and radiation loss.

ザーが有名です。モード同期レーザーでは、そのレーザーパルス出力の繰り返し周波数がレーザー共振器の長さで決まっています。このレーザーの共振器長に対してフィードバックをかけることによってレーザー光を RF 基準信号に同期させるという方法が取られています。たとえば SPring-8 では、508.6 MHz の RF 信号を 6 分周した 84.8 MHz の外部同期信号を使ってモード同期チタンサファイアレーザーを発振させています。

試料を励起するためにレーザーを用いる場合には、強いパワーがいること、また励起状態が緩和して元の状態に戻るまでの時間間隔が必要なことから、再生増幅器を用いて、繰り返し周波数 1 kHz 程度のレーザーをポンプ光とすることが多くなっています。レーザー同期の繰り返し周波数を決めるときに、リングのハーモニック数を考慮すれば、一つの電子バンチからの放射光パルスにレーザーを同期させることができ、ピーク電圧降下の影響を避けることができます。これにより放射光 X 線パルスとレーザーパルスが数 ps で同期していることが、可視光を同時測定できるストリークカメラを利用して報告されています (第 6 章参照)。

5. 放射光を望みの繰り返し周波数に間引く技術

ポンプ・プローブ測定を行うためには、放射光とレーザーパルス繰り返しの周期を一致させる必要があります。ポンプ光であるレーザーパルスは前章に述べたように 1 kHz またはそれ以下の繰り返しの周波数が用いられることが多くなっています。それに対して、放射光パルスの繰り返しは、第 2 章で示したように、数百 kHz から数百 MHz と非常に高い周波数で発生します。そこで、X 線の繰り返し周波数を低くするために回転式シャッターで X 線を間引く方法と、検出器側で取得信号に電氣的なゲートをかけて、レーザー照射の繰り返しと同じ周波数に間引く方法が用いられています。

イメージングプレートや X 線 CCD 検出器のような蓄積型検出器を測定に用いる場合には、検出器側で時間分解能を設定することができません。そのため検出器には単純に

イメージを蓄積させて、X線パルスを1 kHz以下まで間引いてレーザーパルスとX線パルスを一対一で試料に入射します。X線を1 kHzオーダーに間引くためには、回転ブレードに溝を切って高速回転させる方式のメカニカルチョッパーを使用しますが、1個の電子バンチから放射されるX線を安定に切り出すためには、X線パルス間の間隔が広く開いている方が望ましいのは言うまでもありません。したがって、ポンプ・プローブ実験用の蓄積リングのフィリングパターンとしては、単バンチモードや少数バンチモードが必要となります。例えば、ドイツのユーリッヒ研究所で開発されたRF信号同期型のメカニカルチョッパーはX線パルスセクタという名前の通り、約1 kHzの繰り返しでX線パルスを選択的に取り出すことを可能にする装置です。Fig. 4に示す三角形のディスクがほぼ1 kHzで高速回転しており、その一辺に掘られた開口部を通過できるタイミングで飛んできたX線パルスだけを試料に当てることができます³⁾。

このX線パルスセクタをKEK・PF-ARの単バンチモードで使用した場合のタイミングについて考えてみましょう。タイミングチャートをFig. 5に示します。PF-ARの単バンチモードでは、リング周回周波数794 kHz (1.26マイクロ秒間隔)でX線パルスが出射します。一方、946 Hz (= 794 kHz/840)で回転しているX線パルスセク

タは、1.06ミリ秒毎に開位置にやってきて1.64マイクロ秒だけ窓を開け、X線パルス列のうち840個に1個だけ開口部を通過させます。X線パルス列の間隔は1.26マイクロ秒ですので、X線パルスセクタの回転位相をうまく制御すれば、定常的に946 Hzの繰り返しでX線パルスが得られます。ちなみに回転位相のふらつきは2ナノ秒以下ですので、X線パルスセクタがX線パルスを1個切り出したり2個切り出したりといったことは通常起こりません。このようにして間引いたパルスX線と、第4章で述べた方法で同期させたパルスレーザーを用いることによりポンプ・プローブ測定が可能になるわけです。ちなみに、約1 kHzの繰り返し周波数をさらに下げたい場合には、もう一段遅い回転シャッターを入れるか、または1ミリ秒で開閉するX線シャッターを使用することで実現できます。

一方、検出器側で取得信号に電気的なゲートをかけることができる場合には、X線を間引くことなくポンプ・プローブ実験が可能です。検出器としては、アバランシェフォトダイオード (APD) やシンチレーションカウンタ等がこのような実験によく用いられます。検出器の取得信号とレーザーの同期信号をボックスカー積分器に通し、レーザーに同期した検出器信号にゲートをかけることにより、検出器から時間選択的に測定データを取り込むことができます。

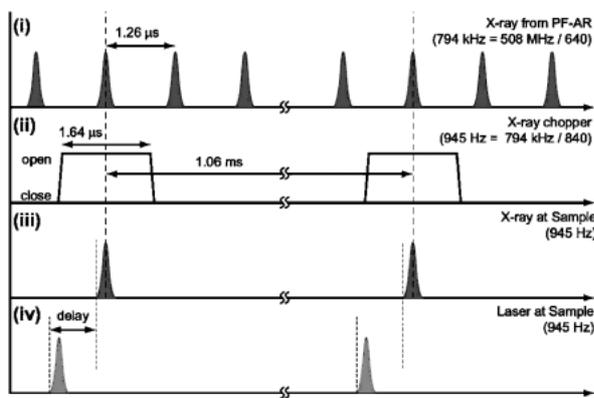


Fig. 5 Repetition rate control with a x-ray pulse selector. (Timing chart for the single-bunch mode operation at KEK・PF-AR.)

6. 放射光とレーザーのタイミングをモニターする技術

放射光とレーザーのパルスのタイミングをモニターするときの、代表的な方法を紹介します。基本は高速検出器を用いることです。まずは、APDやPINフォトダイオードを使う方法が簡便で実用的です。ギガヘルツの周波数帯域をもつオシロスコープを使って、これらのフォトディテクターからのパルス信号の立ち上がりの部分が揃うように、タイミングを調整すると、検出器上で数百ピコ秒の精度で一致させることができます。その際、X線とレーザーに対する強度比が同程度になるように、フィルター類を用いて調整することが大切です。大まかな光軸合わせも同時に

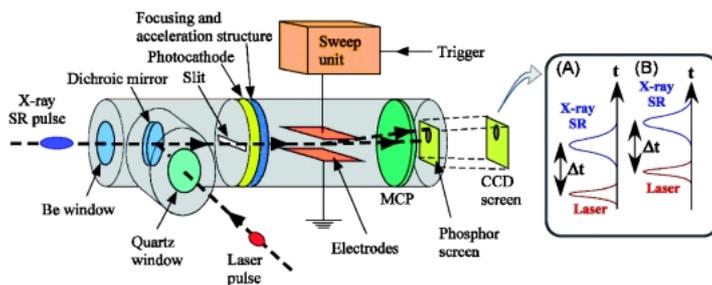


Fig. 6 Principle of streak camera.

できることとなります。

ピコ秒の精度で照射タイミングをモニターするためには、より速い検出器である X 線ストリークカメラを使う方法があります。簡単にストリークカメラの原理を Fig. 6 に示します。ただ、ピコ秒の精度になりますと、ストリークカメラへの電気信号トリガーの時間ドリフトも無視できなくなります。そこで、ストリークカメラの同一光電面上に放射光、レーザー光の両方を照射することにより、電気信号のジッターやドリフトに関係なく二つのパルス光の時間間隔を数ピコ秒の精度で測定することができます⁴⁾。ただし、光電面は X 線にもレーザー光にも感度をもつ必要がありますので、レーザーの波長や、光電面の種類を選択する必要があります。この方法以外にも、レーザースイッチ（ストリークトリガーを、レーザー光でスイッチする）にて、ジッターを抑えた方法が用いられた例もあります⁵⁾。

ここで、X 線ストリークカメラを用いて、レーザーと放射光 X 線パルスのタイミングをモニターした例を紹介しましょう⁴⁾。Fig. 7 は、実際に X 線ストリークカメラにピコ秒レーザーパルス（波長は、266 nm）と放射光パルス（波長は、0.078 nm（16 keV））を同時に光電面に照射して測定した結果です。(a)の状態から、レーザーのタイミングを調整して、(f)でピッタリ一致させた様子がわかります。

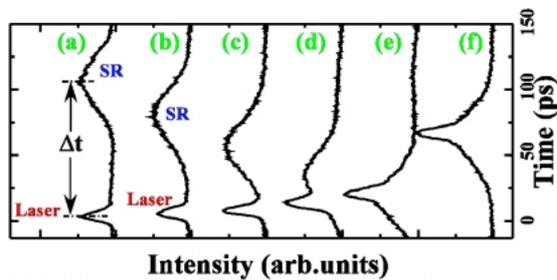


Fig. 7 Timing monitor of SR x-ray and laser pulses using an x-ray streak camera⁴⁾.

7. 単位時間・パルス当りのフォトン数の見積

放射光の時間構造をいかした時間分解測定では、多くの場合、入射パルスの繰り返し周波数を下げるために入射パルスを間引きますので、必然的に入射光のフォトン数不足が問題となります。時間分解測定で利用可能な放射光のフォトン数を見積もってみましょう。単一電子バンチから発生する放射光のフォトン数は、電子バンチあたりの電子数、光源の種類、フォトンのエネルギーなどに依存します。たとえば、PF-AR のビームライン NW14 のアンジュレーター U20 を用いると、Si(111) 結晶で分光した場合には 10^6 photons/pulse 程度、多層膜で分光した場合には 10^8 photons/pulse 程度、分光せず白色のまま使用する場合には 10^9 photons/pulse 程度のフォトン数が得られます。この単一電子バンチあたりのフォトン数と入射 X 線パルスの繰り返し周波数の積で、単位時間当たりに試料に入射するフォトン数が決まり、測定で得られる信号強度を見積もることができます。たとえば、典型的な時間分解 X 線実験について、単位時間当たりに試料に入射するフォトン数の見積を Table 2 にまとめてみました。時間分解実験を行うのに必要なフォトン数は試料と測定手法に依存しますが、比較的高い S/B 比が得られる回折実験の場合には、 10^9 photons/sec 程度のフォトン数が確保できれば、計測可能と判断できます。このフォトン数は PF の偏向電磁石ビームラインで得られる単色 X 線のフォトン数の 1 桁落ち程度に相当します。一方、S/B 比が低い散漫散乱や溶液散乱などの場合には、長時間積算を行うか、より多くの入射フォトン数を確保する必要があります。

Table 2 に示すとおり、入射フォトン数さえ十分に確保できれば、放射光の時間構造を生かした時間分解測定は多くの放射光実験に適用可能です。

Table 2 Estimation of photon flux at various time-resolved measurements

試料	測定対象	フォトンエネルギー	エネルギーバンド幅	繰り返し周波数	photons/pulse	photons/sec
タンパク質結晶	ラウエ回折	~12 keV	~10%	1 Hz	10^9	10^9
無機結晶 (非可逆過程)	ラウエ回折	~15 keV	~10%	single shot	10^9	—
有機・無機結晶	Bragg 回折 散漫散乱	10-15 keV	~0.1%	1 kHz	10^6	10^9
遷移金属酸化物	超格子反射	10-15 keV	~0.1%	1 kHz	10^6	10^9
遷移金属錯体 溶液	XAFS	5-9 keV	~0.1%	1 kHz	10^6	10^9
遷移金属酸化物	XAFS	5-9 keV	~0.1%	1 kHz	10^6	10^9
無機化合物溶液	溶液散乱	15-18 keV	~1%	1 kHz	10^8	10^{11}

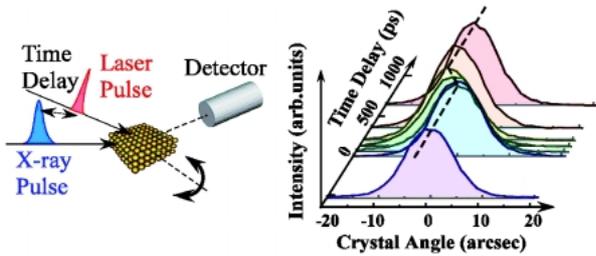


Fig. 8 Time-resolved rocking curve measurement⁶⁾.

8. 応用例

8.1 時間分解回折法による結晶構造のダイナミクス

Table 2 に示したとおり、1 kHz 程度の繰り返しで測定可能な 1 ミリ秒以下で可逆的に元にもどる試料の場合には、単色 X 線を用いた X 線回折実験が可能です。たとえば、1 kHz の短パルスレーザー照射によって単結晶試料中で可逆的に非平衡状態が誘起される場合を想定してみましょう。レーザーパルスと X 線パルスのタイミングを固定した状態で、計数型検出器と 4 軸回折計を使った回折強度測定を行えば、ある遅延時間での回折強度プロファイルのスナップショットを得ることができます。遅延時間を系統的に変化させることより、回折強度プロファイルやロッキングカーブの時間発展を測定し、結晶構造のダイナミクスを精密に追跡することができます (Fig. 8)。一方、タンパク質結晶や非可逆過程の単発現象のように、繰り返し周波数を高くできない測定試料の場合には、試料に入射する光子数を稼ぐために入射 X 線を白色のまま利用します。この場合、検出器としては CCD やイメージングプレートのような 2 次元積分型検出器を用います。

8.2 時間分解三結晶回折法を用いた結晶格子ダイナミクスの研究⁷⁾

放射光の時間構造をいかした時間分解測定例として、半導体単結晶における音響パルスエコーをピコ秒時間分解三結晶回折法でとらえた実験を紹介します。

パルス幅約 100 フェムト秒の短パルスレーザーを半導体単結晶基板の表面に照射すると、表面近くの格子がその瞬間膨張あるいは圧縮します。その歪みは音速で伝搬し、基板の裏面で反射後、再び表面まで戻ってきます (Fig. 9)。その繰り返し (エコー) を、ブラッグ反射角の変化でみることができます。三結晶回折法では、分光器で単色化された X 線に対する試料のブラッグ角 (θ) を特定するために、回折 X 線の角度 (2θ) 決定用のアナライザ結晶をおきます。これにより、試料のずれ歪み (回転) 等と区別して、格子の膨張圧縮を調べることができます。

まず、レーザーパルスを放射光パルスに時間同期させずに、APD の出力を MCS に取り込み、ブラッグピーク (角) の時間変化を概観します。Fig. 10(a) は、GaAs 単結

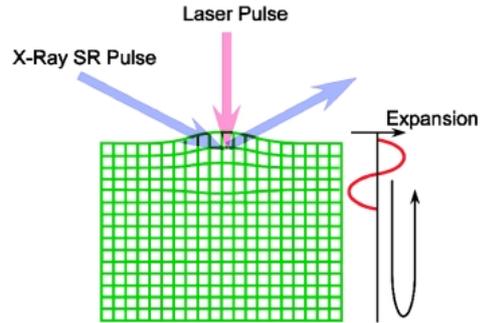


Fig. 9 Lattice deformation produced by a laser pulse, and its propagation as an acoustic pulse in a single crystal of semiconductor⁷⁾.

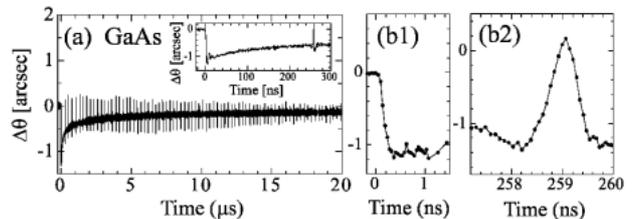


Fig. 10 Acoustic pulse echoes probed with MCS (a) and pump-probe method (b)⁷⁾.

晶の基板表面に時間幅 130 fs のパルスレーザーを照射したときの結果です。 $\Delta\theta$ はもとのブラッグ角からのずれで、負の方向が格子の膨張に対応します。レーザー励起により膨張し、このインパルスの刺激により音響パルスが発生している様子がわかります。同時に熱的膨張も起こり、それが緩和しているのがわかります。ポンプ・プローブ法により、初段の膨張と、一つめのエコーをサブ 100 ps の時間分解能でとらえた結果が、Fig. 10(b1), (b2) です。この測定をそれぞれのエコーパルスについて行うことにより、音響パルスがその波形の変化を伴いながら結晶中を伝播している様子がわかっています。

8.3 時間分解 XAFS

XAFS 実験においても 1 kHz 程度の繰り返し励起が可能な測定系では、単色 X 線を利用することができます。レーザーパルスと X 線パルスのタイミングを固定したポンプ・プローブモードで、通常の XAFS 測定と同様にエネルギースキャンを行うことにより、スナップショットの XAFS スペクトルを得ることができます⁸⁾。

一方、単色 X 線をエネルギースキャンするポンプ・プローブ法ではなく、必要なエネルギー範囲のスペクトルを一度に測定する方法として、エネルギー分散型 XAFS 法があります⁹⁾。この方法は、白色 X 線を湾曲結晶で分光してエネルギー分散した X 線に変換し、試料の透過 X 線スペクトルから XAFS スペクトルを得る方法です。この測定では、エネルギー分散した X 線をスペクトルに変換す

るために1次元リニア検出器を用いますが、検出器に対してゲートをかけることができますので、検出器のゲート時間により時間分解能を設定することができます。高速ゲート型の1次元リニア検出器では500ナノ秒のゲートが可能ですので¹⁰⁾、1個の放射光パルスから1つのスペクトルを測定することも原理的には可能となっています。

9. おわりに

これまで述べてきたように、放射光の時間分解能は、特別な方法によらない限りサブナノ秒が限界です。この時間分解能では、フェムト秒レーザー分光で行われているような、コヒーレントな分子振動励起やフォノン励起のダイナミクスを観測することは困難です。フェムト秒X線によるそのような測定はX線自由電子レーザー、エネルギー回収型ライナックなど線形加速器をベースとする次世代光源において実現可能となるでしょう。さらにX線の時間コヒーレンスをあらわに利用することがもし可能になったとすれば、そこにはアト秒・ピコメータオーダーの計測と物質制御という、まだ想像もつかないような世界が広がっています。一方で、次世代光源でフェムト秒X線を用いた時間分解利用研究の「花」を咲かせるためには、十分な「土作り」と「種まき」が必要であることはいうまでもありません。次世代光源が完成するまでの間に、測定技術・試料・測定条件などについて数多くの試行錯誤を経験することが必要でしょう。線形加速器ベースの光源は、蓄積リング光源よりシビアなビーム位置・タイミング制御が必要となります。特に時間ジッターについてはそれ自身を100 fs以下に軽減して超高精度を目指す方法の他に、ショットごとのタイミングを高精度で計測・記録しながらデータ収集し、データ取得完了後に相関をとるという「post-processing」法も検討され始めています。当面、このようなビーム計測技術開発が将来光源に向けての課題となるでしょう。またフェムト秒X線測定に適した試料の探索を始めることも非常に重要でしょう。そのためには、まずは既存の放射光光源を使った「足慣らし」からスタートしてみてはいかがでしょう。サブナノ秒からミリ秒に至る時間領域にも、面白い物理・化学・生物現象はまだたくさんあります。

多くの放射光利用研究者にはまだ馴染みの薄い放射光の時間構造を利用した実験法の技術的側面を中心に解説してきました。まだ歴史の非常に浅い実験手法ですので、ここで解説した内容は、次世代光源に向けて、どんどん新規な手法に置き換わって行くに違いありません。ご興味をお持ちの読者の方は、常に最新の報告を参照されることをお勧めいたします。

お願い

本シリーズでは、初心者ユーザーが陥りやすい誤りやビームライン担当者の貴重な経験談を募集しております。最終回で紹介したいと考えております。また、本シリーズに関してご意見・ご要望がございましたら編集担当 (SPring-8 JASRI 大橋治彦/hohashi@spring8.or.jp, KEK-PF 平野馨一/keiichi.hirano@kek.jp) までどうぞお便りください。

参考文献

- 1) E. Takahashi, Y. Nabelawa and K. Midorikawa: Appl. Phys. Lett. 84, 4 (2004); E. Seres, J. Seres and C. Spielmann: Appl. Phys. Lett. 89, 181919 (2006).
- 2) 加藤政博: 放射光 16, 41 (2003); 伊澤正陽: 放射光 17, 23 (2004).
- 3) B. Lindenau, J. Rabiger, S. Polachowski and J. Fremerey: AIP Conf. Proc. (SRI2003), 1019 (2004).
- 4) Y. Tanaka, T. Hara, H. Kitamura and T. Ishikawa: Rev. Sci. Instrum. 71, 1268 (2000).
- 5) J. Liu, J. Wang, B. Shan, C. Wang and Z. Chang: Appl. Phys. Lett. 82, 3553-3555 (2003).
- 6) 田中義人, 原 徹, 北村英男, 石川哲也: レーザー研究 30, 525 (2002).
- 7) Y. Hayashi, Y. Tanaka, T. Kirimura, N. Tsukuda, E. Kuramoto and T. Ishikawa: Phys. Rev. Lett. 96, 115505 (2006).
- 8) たとえば, L. X. Chen: *Angewandte Chemie Intl. Ed.* 43, 2886 (2004).
- 9) T. Matsushita and R. P. Phizackerley: *Jpn. J. Appl. Phys.* 20, 2223 (1981).
- 10) J. Headspith, G. Salvini, S. L. Thomas, G. Derbyshire, A. Dent, T. Rayment, J. Evans, R. Farrow, C. Anderson, J. Cliche and B. R. Dobson: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 512, 239 (2003).