

## タイミングを測る II (ストリークカメラと高速フォトディテクタ)

田中義人 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  
E-mail : yotanaka@riken.jp

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  
E-mail : shinichi.adachi@kek.jp

### 1. はじめに

「放射光はピコ秒のパルス光源です」と言われても実際にそのパルス幅や時間構造を確認された方は多くないのではないのでしょうか。また、高繰り返しのパルス光源であり、疑似連続光ともみなせるため、通常はパルス光であることすら意識せずに利用できますので、なおさらです。放射光の時間構造については、前回の「タイミングを測る I」で紹介されたように、パルス幅は半値全幅で30~300 ps, パルスの間隔は最も密なフィリングモードで2 ns 程度となります。また、非常に高精度な時間制御が行われていて、時間安定性は高く、パルス時間幅より小さい変動しかありません。

今回の「タイミングを測る II」では、放射光のパルス構造や安定性についての観測方法と、この高精度のタイミングで発生するパルス放射光を利用して、それに外部信号のタイミングを同期させて時間分解測定法に応用する手法を中心に解説します。

まず、放射光のパルス波形を含む時間構造を知るためには、それを観測する為の目、すなわち高速の検出器が必要になります。パルスの形状を見たい場合に求められる時間分解能は、そのパルス幅より十分短い時間ということになります。つまり、上述のように、実際の放射光のパルス幅は数十ピコ秒から数百ピコ秒程度ですので、少なくとも数ピコ秒程度の時間分解能をもつ検出器が必要です。高速検出器の代表格にはストリークカメラがあり、放射光 X 線のパルス形状測定等に実際に応用されています。

また、このように高精度でパルスの形状をみることができると、外部信号との同期の様子を確認することができるようになります。放射光で得られるパルス光と計測系とのタイミングをとることによっていろいろな実験が可能になります。一つの典型例がレーザーポンプ、放射光プローブ法になります (Fig. 1 参照)。ただし、通常の実験時に、ストリークカメラを持ち込んでタイミング測定をするのは、やや大がかりで、そのうえ価格も数千万円かかりますので、簡便とは言えません。そこで、高速フォトディテクタ

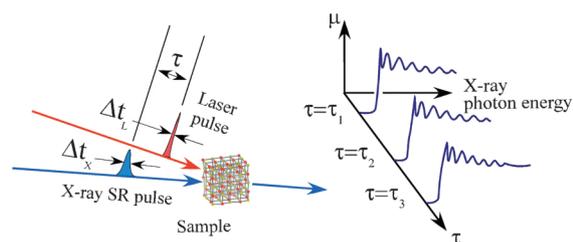


Fig. 1 放射光の X 線パルスとレーザーパルスを時間同期した応用測定例。レーザーポンプ・放射光プローブ法による時間分解 XAFS の概念を示した。

を用いれば、波形とまではいきませんが、時間構造の全容を知ることができて、かつ、その立ち上がり時刻を計測することにより、他の計測系や光パルスとのタイミングを比較的簡便に測ることができます。

今回は、第 2 章で X 線ストリークカメラについて解説し、放射光の時間構造の評価や、超短パルスレーザーとの時間同期を観測した例を紹介します。つづいて第 3 章で、試料位置でのタイミングを高精度で合わせるための高速フォトディテクタについて解説し、ピコ秒時間分解 XAFS 測定における具体的な使用例を紹介します。

### 2. X 線ストリークカメラ<sup>1)</sup>

#### 2.1 概要と原理

ストリークカメラは到達時刻を空間分布に変換する装置です。光を電子に変換して、電子を一方向に加速し、それに垂直な方向に強度が時間変動する高電圧をかけ、到達時間によって、スクリーンに写る場所が違うことを利用して到達時刻やその時間波形を観測することができます。

X 線ストリークカメラ全容の写真を Fig. 2 に示します。写真中央の少し傾いた白い箱型の部分がストリークカメラ本体です。おおよそのサイズは一辺 50 cm, 重さは 20 kg 程度です。放射光 X 線では光軸方向を自由に変えることは容易でないため、カメラ本体が姿勢制御のできる架台の上に搭載されています。



Fig. 2 SPring-8 BL19LXU に設置された X 線ストリークカメラ。

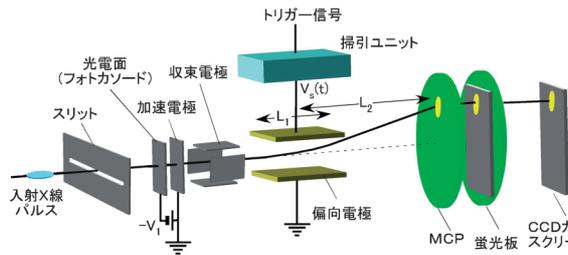


Fig. 3 ストリークカメラの内部構造。ストリーク管部分である光電面から蛍光板までは、真空中に保たれている。

Fig. 3 にストリークカメラの内部構造を示します。測定される X 線はスリット上に入射され、光電面（フォトカソード）に導かれます。フォトカソードで光は電子に変換され、その後、加速電極によりストリークカメラの中心軸方向に加速され、偏向電極の場所で上下に振られます。入力の X 線パルスと同期している高速のランプ電圧がこの偏向電極にかけられており、偏向した電子は MCP（マイクロチャンネルプレート：前回「タイミングを測る I」参照）上に達し、増幅された後、ストリーク管の最後部の蛍光板に到達します。光電子はこの蛍光板で光に変換され、光学像を形成します。この光学像を CCD カメラで読み取ります。

可視光用ストリークカメラとの特徴的な違いは、X 線の場合、(i)可視光用ほどの簡便なレンズがないため、スリット系でビーム径を絞ること。(ii)透過 X 線が後段の電子回路に影響を与えないように、ストリーク管が入射 X 線軸から少し傾けられて設置されていること。(iii)特に軟 X 線用には適当な窓材がないため、入力系が真空と直結していることです。

もう少し詳しく原理を説明しましょう。X 線は、スリットを通過してストリーク管の光電面上に達します。光電面は入射した光をその強度に応じた数の電子に変換しますので、ここで X 線パルスは電子群に変換され、電位差  $V_1$  の加速電極により加速されて MCP に向かって飛び出て行きます。その時の電子のカメラ中心軸方向の速度  $v$  は、二次電子の初速度を無視した場合<sup>2)</sup>、

$$v = \sqrt{\frac{2}{m} e V_1} \quad (1)$$

と表すことができます。ここで、 $m$  は電子の質量、 $e$  は素電荷量です。この電子群が掃引電極の間を通過する時、タイミングを合わせて掃引電極に印加された高電圧  $V_s(t)$ （時間特性については Fig. 5 (a) 参照）により、高速掃引（電子を下方から上方へ振る）が行われます。電極の長さを  $L_1$ 、電極間の距離を  $d_1$ 、カメラの中心軸に対する偏向の角度を  $\theta$  とし、ストリーク管の中心軸方向を  $x$ 、ストリーク掃引電圧がかかる方向を  $y$  とすると、

$$\theta = \frac{dy}{dx} \Big|_{x=x_1} = \frac{\frac{dy}{dt} \Big|_{x=x_1}}{\frac{dx}{dt}} = \frac{e V_s(t) L_1}{m d_1 v^2} \quad (2)$$

と表すことができます。ここで、 $x_1$  は、偏向電極の後端の位置を表します。ただし、簡単のため、電子が電極間を通過している間は、電圧一定と仮定しました。偏向電極の中心から  $L_2$  の距離に位置する MCP 上の到達位置を  $y_1$  とすると、

$$\begin{aligned} y_1 &= \frac{e V_s(t)}{d_1 2m} \left( \frac{L_1}{v} \right)^2 + \theta \left( L_2 - \frac{L_1}{2} \right) \\ &= \frac{e V_s(t)}{m d_1 v^2} L_1 L_2 \end{aligned} \quad (3)$$

となります。途中の式の第 1 項は、電極内で生じた変位です。この式をみると、MCP 上には、時間的に変動する電圧  $V_s(t)$  に比例した変位位置に到達します。電子群は MCP を通過する際、数千倍まで電子の数を増倍された後、蛍光板に衝突し、再び光に変換されます。蛍光面上では、 $V_s(t)$  が時間に比例している場合、すなわち、 $V_s(t) = at (a > 0)$  である場合、早く入射したパルスに対応する蛍光像が下方に位置し、遅く到達したパルスに対応した蛍光像が上方に現れます。このように、蛍光板上の垂直方向が時間軸になります。なお、蛍光像の明るさは、それぞれの入射光パルスの強度に比例し、水平方向の位置は、入射光の水平方向の位置に対応しています。つまり、蛍光像の明るさから光強度を、蛍光像の位置から時間と入射位置を読み取ることができるわけです。

ストリークカメラの種類は、光の感度波長域、時間分解能、ダイナミックレンジ、ストリーク掃引方法の違いによって、多様に設定されています。以下に、それぞれの特性について記述します。

## 2.2 光電面の感度と波長

まず光の波長域についてですが、一般に観測する波長によって、光電面の材料が異なります。光電面は何種類かの金属やその化合物膜を窓材の表面に積層させたもので、その感度は、吸収率や、仕事関数に強く依存します。可視光

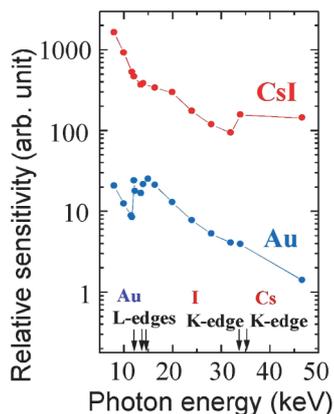


Fig. 4 X線用光電面の感度特性<sup>3)</sup>。

領域ではマルチアルカリが使用されています。一方、X線領域では、金が使われることが多いようです。Fig. 4に金およびヨウ化セシウムの感度特性を示します<sup>3)</sup>。光電面の厚みは、数十 nm で、約100 nm 厚のパリレン膜の上に蒸着してあります。縦軸は、CCD カメラ上での強度、横軸は、入射 X 線の光子エネルギーです。図から、光電面の感度は吸収率を強く反映していて、一般に高エネルギーになるほど、感度が下がり、吸収端でやや高くなっている様子がわかります。

実際にどれほどの X 線強度を観測できるかを求めるには、光電面の量子効率、蛍光面の変換効率、MCP の利得、レンズ系の透過率、CCD の量子効率、感度を総合的に考慮する必要があります。総合して、どれくらいの強度まで観測できるかですが、数 keV の X 線について、MCP の利得を1000とした場合、デジタル出力10ビットの CCD で、光子 1 個が 1 ビットに対応する程度の感度です<sup>4)</sup>。CCD 画面上での S/N にも依存しますが、50 ps 程度のパルス幅をもつ X 線の波形をフルスケール800 ps の画面で観測しようとする、入射スリットを通る光量として、概ね $10^4$  個以上の光子数が必要と考えていた方がいいでしょう。また、高繰り返しで、かつ、トリガー信号のタイミングのばらつき（ジッター）が小さいシステムで有効なフォトンカウンティングモードが用意されているものもあります。これは、MCP の利得を数千倍まで高めて、1 フォトンが 1 つのピークとして現れる条件で、閾値以上の信号を検出し、メモリ上で積算していくものです。

### 2.3 時間分解能

ストリークカメラの時間分解能は、(i)スリットサイズの大きさ（線像分布関数（Line spread function）に相当）、(ii)光電面から飛び出す初速度分布、(iii)ストリーク管内の電子レンズ系での空間電荷の影響、(iv)ストリーク電圧の時間誤差（トリガージッターを含む）などで決まっています。X 線ストリークカメラの場合、(ii)が無視できなくなることが多く、時間分解能は数ピコ秒になりますが、やや低め

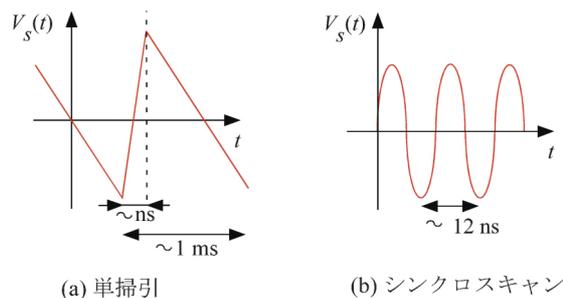


Fig. 5 ストリーク掃引用電圧の種類。

の X 線領域では 1 ps 程度のものまであります（例えば 700 fs (FWHM)@2 keV)。ただし、このように高速のものではダイナミックレンジが 10 : 1 程度と相対的に低くなっています。一方、ダイナミックレンジが 100 : 1 まであり、時間分解能が 10 ps というタイプもあります。このように時間分解能とダイナミックレンジが強く関係しているのは、(i)や(iii)の影響のためです。なお、紫外-近赤外域用のストリークカメラでは、(ii)の効果が小さいこともあり、一般に X 線ストリークカメラより時間分解能が高い傾向があります。可視光用のものでは、200 fs というものまでありますが、やはりこれもダイナミックレンジは 10 : 1 程度です。

### 2.4 電圧掃引方法の種類

偏向電極にかかる電圧掃引すなわち、 $V_s(t)$  の種類には主に単掃引と、シンクロスキャンの 2 種類があります。用途によって、電源ユニットを取り替えられるタイプもあります。また、垂直方向のシンクロスキャンユニットでの掃引に加えて、水平方向に比較的ゆっくりとした単掃引を行うといった 2 軸掃引ができるものがあります。

#### 2.4.1 単掃引

単掃引とは、1 回のみ掃引することですが、ストリーク掃引の場合には、鋸歯状の電圧 (Fig. 5(a) 参照) を指すことが多く、繰り返し測定を行い、データ積算する場合を含みます。したがって、掃引電圧は入射光パルスと時間同期している必要があります。また、電圧掃引が、被測定光がストリークカメラに到着したところの時刻に開始されるように、トリガー信号の時間遅延を調整する必要があります。そのため、トリガー信号の遅延時間を制御するユニットやトリガー用信号の繰り返し周波数が高過ぎる場合に分周を行う分周器などが用いられています。

#### 2.4.2 シンクロスキャン

シンクロスキャンとは、高速繰り返し掃引のことで、偏向電極には高周波正弦電圧を印加します (Fig. 5(b))。掃引周波数を繰り返し現象に同期させることにより、蛍光面上の同一位置にストリーク像を重ね合わせること（積算）

ができますので、微弱な光現象まで高いS/N比で測定することができます。繰り返し現象は掃引周波数と同じか、その整数倍または整数分の1である必要があります。

### 2.4.3 2軸掃引

入射スリットの横方向も絞り、ストリーク電圧を横方向にもかけることができるタイプもあります。2軸が時間軸になるというものです。よく使用される組み合わせは、2.4.2で紹介したシンクロスキャンを垂直方向の掃引に使用し、水平方向には、ゆっくりとした単掃引(2.4.1参照)を用いるものです。対象とする現象がゆっくりとした周期性をもち、基準信号からの光パルスのタイミングドリフトや時間プロファイルの変化を見たい場合に適しています。具体的な使用例として、放射光パルスのタイミング変調を観測した例を2.6章で紹介します。

## 2.5 使用方法

装置の一般的な接続方法をFig. 6に示します。放射光をモニターする場合、蓄積リングの高周波基準信号をストリークカメラのトリガーとしてスキャンユニットにつなぎます。そのときに、時間遅延や周波数を調整できるタイミング制御回路を途中に接続することが一般的です。一方、X線などを照射した試料での散乱光などをフォトディテクタで検出し、これをトリガーとしてストリークカメラのスキャンユニットにつなぐ方法もあります(Fig. 6中、点線で表示)。高周波基準信号から信号ケーブルを引き回す手間が省けますが、適切なフォトディテクタを選択する必要があります。

また、トリガー信号のタイミングのばらつきを押さえるための工夫も時間分解能を維持するために必要です。ここでは代表的なものを二つ紹介します。一つは、シンクロスキャンユニット使用時に、トリガタイミングのドリフトを抑制するために、フェーズロック回路(PLL: phase locked loop)を追加する方法です。この回路は、高周波入力信号と、その出力信号の周波数を一致させるように働かせる回路で、入力信号と出力信号の位相差を検出し、その差を埋め合わせるように回路を制御するものです。二つめは、

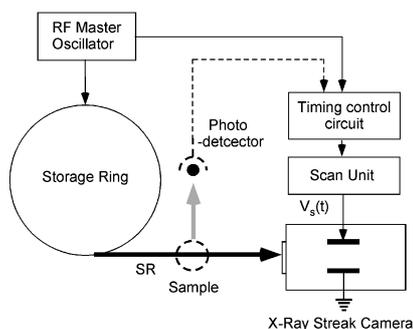


Fig. 6 ストリークカメラの基本な接続方法。

単掃引ユニット使用時に、トリガーのタイミングジッターを抑えるために、試料に刺激を与える超短パルスレーザーの一部を直接掃引ユニットのトリガーの光伝導スイッチに照射する方法です<sup>5)</sup>。この光伝導スイッチとは、光電効果を利用して光伝導膜にパルスレーザーを照射して電気を発生させるスイッチのことで、光照射のタイミングでサブピコ秒の精度で動作します。

## 2.6 応用例

具体的な応用例として、SPring-8の蓄積リング中の加速空洞での電子ビーム負荷の影響を、2軸掃引によりモニターした例と、超短パルスレーザーと放射光の時間同期を行う際にストリークカメラでタイミングをモニターした例を紹介します。

Fig. 7に2軸掃引時の装置の接続方法を示しています。高周波基準信号は、シンクロスキャンに対応できるよう適当な周波数に分周されています<sup>6)</sup>。この例では6分周の信号をシンクロスキャンのトリガーとして利用しています。また、水平方向の掃引として、さらに大きく分周した信号で、遅い単掃引ユニット(Fig. 7ではdual time base extender unitに相当する)にトリガーをかけています。このときのトリガー信号は、蓄積リングの周回周期の整数倍になり、かつ、約10 Hzになるように分周されています。

Fig. 8に測定の結果を示します。(a)は2軸掃引時のストリークカメラ管中の電子のスクリーン上での軌跡をあらわしています。蓄積リングでのフィリングパターンが(b)のように非対称である場合に、加速空洞の部分で電子ビームの負荷による電圧降下が起こり、それによって、電子のRF基準信号に対する位相がややシフトする現象があります。Fig. 8(c)は、そのストリーク像です。薄い色になって

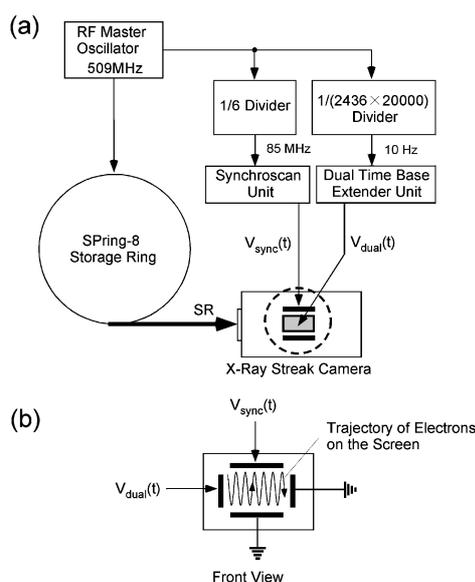


Fig. 7 (a) 2時間軸掃引時の模式図。(b) ストリーク管の掃引電極部を前面から見た図。

いる部分が信号強度の高い部分です。上下でペアになっている信号は、それぞれ上下方向のスキャンに対応します。縦方向の信号の幅が電子バンチの時間幅に対応し、横方向の周期構造は、蓄積リングの周期に対応します。一周ごとに電子バンチによる負荷のない部分で電圧が回復し、その結果、一周で40 ps ほどシフトしていることを示しています。

もう一つの例として、超短パルスレーザーと、放射光 X 線をストリークカメラに同時に導入し、その時間プロファイルをモニターしながらパルスレーザー光のタイミングを光学遅延等により調整した例を Fig. 9 に示します。この例では水平方向のストリーク電圧をかけず、シンクロスキャンユニットのみを使って掃引しています。光電面は金です。仕事関数が5.1 eV であるため可視光レーザーに対しては感度が低く、そのため紫外光 (波長約266 nm) のレーザーを使用しています。Fig. 9 で放射光のパルス幅は

約50 ps, レーザー光のパルス幅は10 ps 程度に見えていますが、実際のレーザーパルス幅は2 ps 程度で、ストリークカメラのぼやけ (時間分解能) のため、このように広がってみえています。(a)では、レーザー光と放射光が105 ps 離れて光電面に到達していますが、(d)で2-3 ps の精度で時間一致している様子がわかります。

### 3. 高速フォトディテクタ

この章では高速フォトディテクタとして、ショットキー型フォトディテクタを紹介します。

#### 3.1 概要と原理

金属と半導体を接合すると、金属の仕事関数と半導体の持つ電子親和力の差が障壁として現れることがあります。このような金属と半導体の接合をショットキー接合、あるいはMS接合 (Metal-Semiconductor接合) と呼びます。ここでは、実際に放射光パルスによる立ち上がり測定やパルスレーザーとの同期に用いられている浜松ホトニクス社のMSM (Metal-Semiconductor-Metal) フォトディテクタについて説明します。浜松ホトニクス社のMSM フォトディテクタには、GaAs (G4176シリーズ) とInGaAs (G7096シリーズ) の2種類があり、InGaAsの方が近赤外域でより広い分光感度特性を持っています。どちらのタイプとも、立ち上がりおよび立ち下りの応答時間は30-40 ps となっており、放射光パルス測定には理想的な高速フォトセンサであると言えます。Fig. 10 の写真のように、MSM フォトディテクタの受光部はくし形のショットキー電極を左右対称に形成することにより作製されており、比較的受光面が大きくなっているため、光学系とのアライメントが比較的容易に行うことができることも利点です。

#### 3.2 使用方法

MSM フォトディテクタは X 線領域と可視~赤外領域

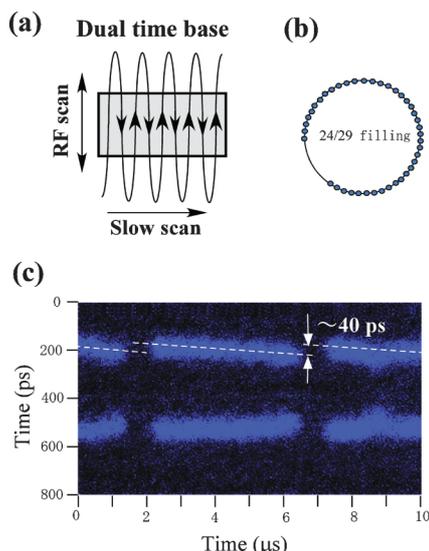


Fig. 8 (a) 2時間軸掃引のイメージ。蓄積リングの電子バンチのフィリングパターンが(b) 時のストリーク像(c)。

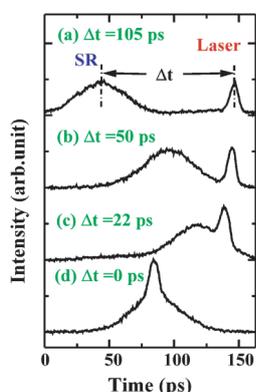


Fig. 9 ストリークカメラによる紫外パルスレーザー光と X 線放射光のタイミングモニターの様子<sup>7)</sup>。

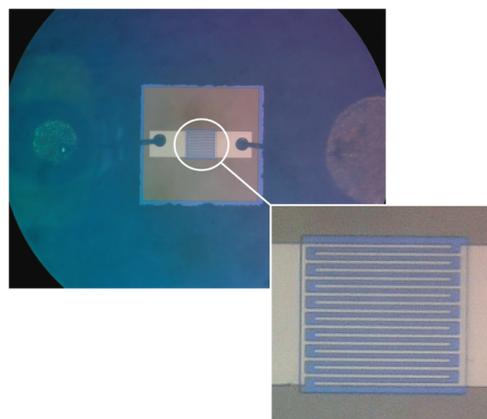


Fig. 10 MSM フォトディテクタの受光部 (白丸部分を拡大)。

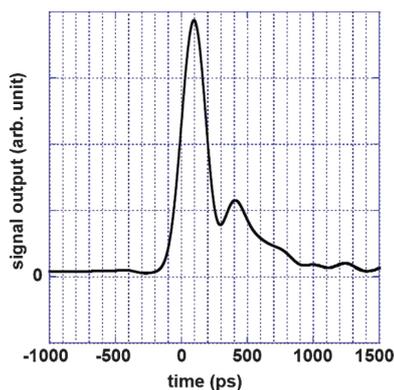


Fig. 11 MSM フォトディテクタと高速オシロスコープでみたピコ秒パルスレーザーの信号波形。

のどちらにも感度を持っており、1 個の検出器で X 線パルスとレーザーパルスのタイミングを測定することができます。別々の検出器を X 線とレーザーのタイミング測定のために用いる場合、2 つのパルスの正しい同期測定のためには、それぞれの検出器からオシロスコープまでの測定ケーブル長の違いを考慮しなければなりません、1 個の検出器で 2 つのパルスの測定を行えば、ケーブル長の違いを考慮する必要がないので便利です。

MSM フォトディテクタとオシロスコープを長さ 1 m 程度の SMA 同軸ケーブルでつないで、ピコ秒レーザーパルスの形状の測定をした例を Fig. 11 に示します。この測定例で使用した MSM フォトディテクタは InGaAs タイプの G7096-03 です。この MSM フォトディテクタに Picosecond Pulse Labs 社のバイアス T (Model 5541A) を直接接続し、その出力を Tektronix 社のデジタル・オシロスコープ DPO7254 (周波数帯域 2.5 GHz, 40 GS/s, 立ち上がり時間 160 ps) に接続して測定しています。Fig. 11 において、パルスの立ち上がり時間は 200 ps 程度になっていますが、この立ち上がり時間は MSM フォトディテクタではなく、オシロスコープの立ち上がり時間性能で決まっています。

### 3.3 ピコ秒時間分解 X 線吸収微細構造 (XAFS) 測定への応用<sup>8,9)</sup>

MSM フォトディテクタによる X 線パルスとレーザーパルスのタイミング同期測定を応用して、ピコ秒時間分解 XAFS 測定を行った例を紹介します。この測定では、水溶液中の鉄 2 価-トリスフェナントロリン錯体 ( $[\text{Fe}(\text{phen})_3]^{2+}$ ) が、フェムト秒レーザーパルス (波長 400 nm) によって低スピン状態から高スピン状態に励起された後、高スピン状態が約 700 ps の寿命で低スピン状態に熱的に緩和する過程を、時間分解 XAFS 法により観測しています。実験の模式図を Fig. 12 に示します。PF-AR のシングルバンチモードを利用すると、X 線パルスは 794 kHz の繰り返しで試料位置に到着し、同じ繰り返し周波数で試料が

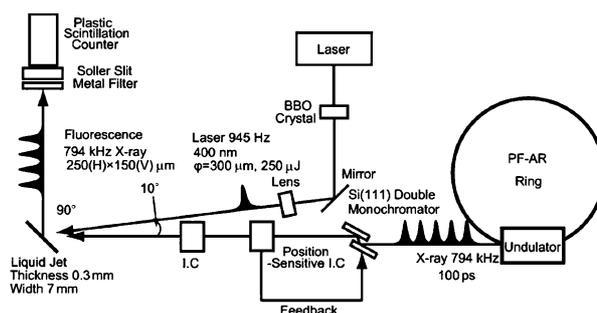


Fig. 12 時間分解 XAFS 実験の模式図。

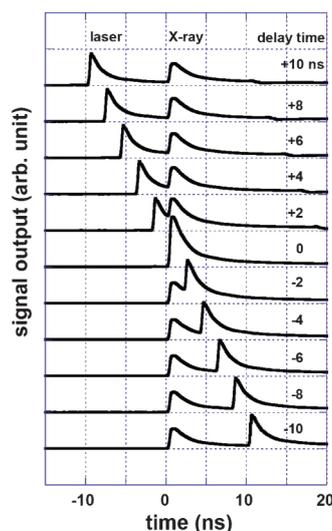


Fig. 13 MSM フォトディテクタによる放射光 X 線とピコ秒可視光レーザーのタイミングモニターの様子<sup>8)</sup>。

ら蛍光 X 線が発生します。一方レーザーパルスは 794 kHz を 840 分の 1 に分周した 945 Hz で試料位置に到着します。従ってレーザーパルスで励起する直前と直後の蛍光 X 線の強度を検出器 (シンチレータ) で測定し、その差分を取ることによって、光励起によって生じた化学種の時間分解 XAFS スペクトルを測定することができます。

X 線パルスとレーザーパルスのタイミング同期測定例を Fig. 13 に示します。放射光パルスとレーザーパルスの同期測定は、できる限り試料に近い位置で行うべきです。この測定例では、MSM フォトディテクタを試料位置付近に置き、試料アライメント用の CCD カメラの画像を見ながら、くし形になったフォトディテクタの受光面を試料位置にほぼ一致するように検出器位置を調整しています。また MSM フォトディテクタを使った放射光パルス測定の際に気をつけなければならないのは、MSM 素子面を保護している透明ガラスによる放射光の吸収です。放射光のエネルギー領域によっては、放射光がガラスを透過せず検出できなくなりますので、保護ガラス部分を取り除いて使用する必要があります。

この同期測定では、デジタルオシロスコープを実験ハッ

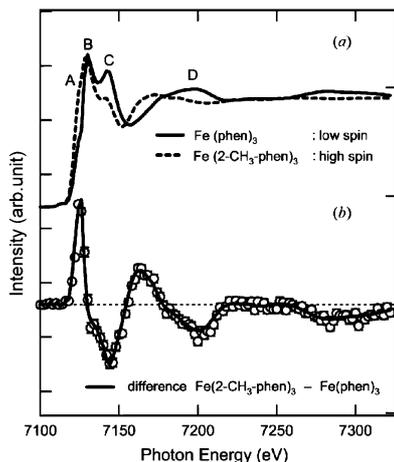


Fig. 14 時間分解 XAFS スペクトル。白丸で示した XAFS 差分スペクトルはレーザーパルス励起後 (+50 ps) と、励起前 (-1.3 μs) の蛍光 X 線信号強度の差分スペクトル。

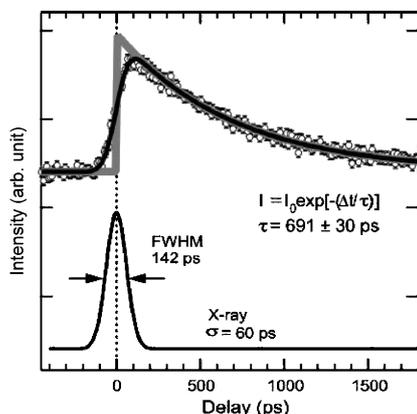


Fig. 15 XAFS スペクトル差分強度の時間変化。装置関数との畳み込み関数でフィットした結果を示した。

チ外に置いており、MSM フォトディテクタからオシロスコープまでの間を20 m 程度の BNC 同軸ケーブルで接続しています。このため立ち下りが長くテールを引く非対称な波形になっています。しかしパルスの立ち上がり時間は500 ps 程度で測定できていますので、2つのパルスの同期を50 ps 程度の精度で合わせこむという用途にはそれほど支障がありません。レーザータイミング遅延回路を用いて、レーザーパルスの試料位置への到着時刻を2 ns おきにずらして測定しています。この測定からレーザーパルスの立ち上がり時刻と X 線パルスの立ち上がり時刻が一致する遅延時間を決めることにより、時間ゼロ点を決定することができます。

時間分解 XAFS スペクトルを Fig. 14 に示します。Fig. 14 の白丸で示した XAFS 差分スペクトルはレーザーパルス励起後 (+50 ps) と、励起前 (-1.3 μs) の蛍光 X 線信号強度の差分から得られたスペクトルです。この時間分解差分スペクトルは、鉄 2 価錯体の低スピン型及び高ス

ピン型参照物質の差分スペクトルとほぼ一致することから、光誘起により生じている化学種が [Fe(phen)<sub>3</sub>]<sup>2+</sup> の高スピン型反応中間体であることがわかります。入射 X 線エネルギーを7125 eV に固定し、遅延時間を変化させながら蛍光 X 線信号の差分強度を遅延時間に対してプロットしたものを Fig. 15 に示します。Fig. 15 の白丸が実測値です。この蛍光 X 線差分強度の時間変化は指数関数減衰 (τ = 691 ps) と装置関数 (τ = 60 ps) との畳み込みによりフィットすることができます。このことから、レーザーパルスによる [Fe(phen)<sub>3</sub>]<sup>2+</sup> の低スピン状態から高スピン状態への光励起スピン転移は X 線パルス幅 (τ = 60 ps) より十分短い時間内に完了していることがわかります。

#### 4. おわりに

タイミングをモニターできる検出器として、X 線ストリークカメラと高速フォトディテクタを紹介しました。ストリークカメラでは、電子の加速方向を、時間変化する電場で変化させるという真空中での現象を利用して測定しています。一方、フォトディテクタでは、受光素子の電子の振る舞いを反映した時間応答を利用して観測していて、検出器の素子そのものが、高速物性の研究対象となる可能性があります。たとえば、フェムト秒レーザーで半導体単結晶表面を励起したときに、サブピコ秒の速さで融解する現象を X 線パルスの回折強度変化で観測した例がありますが、逆にこの現象を利用して、回折強度変化の現れ始めた時刻を同時照射とみなすというタイミング計測法もあります。このように、高速現象をとらえる検出器あるいは検出法開発と、高速現象の研究はお互いに強い関係をもって進展していくものと思われます。

一方、可視光レーザーの分野では、同時にレーザーパルスを経質に入射したときに非線形光学効果により発生する和周波を観測する方法などが使われています。将来 X 線領域でも非線形光学過程を増強する手法等が見つかれば、新しいタイミング計測法として簡便にフェムト秒精度でタイミング測定ができるようになるでしょう。現在、X 線自由電子レーザーなど、フェムト秒大強度 X 線光源が建設されています。このような光源の時間特性やタイミングの計測を行うための、より高速で簡便な検出器開発が望まれます。

#### 利用情報

1. ストリークカメラ  
 浜松ホトニクス㈱  
[http://jp.hamamatsu.com/products/opto-meas/pd357/index\\_ja.html](http://jp.hamamatsu.com/products/opto-meas/pd357/index_ja.html)  
 AXIS photonique Inc.  
<http://www.axis-photon.com/en/products.shtml#cameras>

- 
2. 高速フォトディテクタ (MSM フォトディテクタ)  
浜松ホトニクス㈱  
([http://jp.hamamatsu.com/products/light-source/  
1008/pd383/index\\_ja.html](http://jp.hamamatsu.com/products/light-source/1008/pd383/index_ja.html))

#### 参考文献

---

- 1) “Femtosecond Beam Science”, M. Uesaka ed., (Imperial College Press, 2005), K. Suzuki, “Streak camera”, p. 239.
- 2) 実際には, 二次電子の初速度の分布があり, 光電面の材質, 厚みなど幾何学的構造にも依存します.
- 3) T. Hara et al.: *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 3624 (2000).
- 4) 持箸晃氏 (JASRI) より情報提供.
- 5) J. Liu and J. Wang: *Appl. Phys. Lett.* **82**, 3553 (2003); C. Belzile et al.: *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 1617 (2002).
- 6) 分周器単体としては, デジテックス(株)のカウンターがあります. 2系統の高周波分周器, タイミング遅延とそれらの制御回路を内蔵した一体型のキャンドックス製高精度高周波遅延器も有効です.
- 7) Y. Tanaka et al.: *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 1268 (2000).
- 8) S. Nozawa et al.: *J. Synchrotron Rad.* **14**, 313 (2007).
- 9) T. Sato et al.: *J. Synchrotron Rad.* **16**, 110 (2009).