

## 短パルス X 線による高時間分割 X 線回折

上坂 充<sup>1</sup>, 木下 健一<sup>2</sup><sup>1</sup>東京大学大学院工学系研究科附属原子力工学研究施設\*<sup>2</sup>放射線医学総合研究所

## Time-resolved X-ray Diffraction by Short X-ray Pulse

Mitsuru UESAKA<sup>1</sup> and Kenichi KINOSHITA<sup>2</sup><sup>1</sup>Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo,<sup>2</sup>National Institute of Radiological Sciences

Several new short X-ray sources such as X-FEL, inverse Compton X-ray source, laser plasma X-ray source etc, are under development recently. Simultaneously, several pump-and-probe analyses using pico- and femtoseconds X-ray pulses have started at SR facilities and multi-TW laser facilities. Time-resolved X-ray diffraction to investigate atomic dynamics is the major trend there. Especially, ultrafast microscopic processes in thermal expansion and coherent acoustic phonon in laser-irradiated GaAs monocrystal has been analyzed in the picosecond time regime. As the next stage, dynamic structural analysis of proteins and time-resolved X-ray imaging are proposed and discussed.

We review updated research activities including short X-ray source development and application, and foresee the related future, involving the activities at Nuclear Engineering Research Laboratory, University of Tokyo.

## 1. はじめに

ESRF (European Synchrotron Radiation Facility), APS (Advanced Photon Source), SPring8 といった第3世代放射光源が順調に稼動し、タンパク質の構造解析など高輝度 X 線 SR の精力的利用研究が実施されている。一方、フェムト秒高強度 X 線源である第4世代放射光源の開発が世界で開始されている。その中心は X 線自由電子レーザー (以降 XFEL)<sup>1)</sup>であり、アメリカではスタンフォード線形加速器センターにて LCLS (Linac Coherent Light Source)<sup>2)</sup>が、ヨーロッパでは DESY (Deutsches Elektronen Synchrotron) にて TTF (TESLA Test Facility)-FEL<sup>3)</sup>が、また我が国でも理研播磨研究所、KEK (高エネルギー加速器研究機構) が中心となった計画が開始されている<sup>4)</sup>。既存の放射光源でもパルス SR 光を使ったポンプ & プロブ分析がすでに開始されている。強度は XFEL に劣るものの、コンパクトなシステムでフェムト秒ピコ秒 X 線パルスの生成が可能であるレーザー・電子

逆コンプトン散乱 X 線源やレーザープラズマ X 線源の開発と利用も盛んになっている。その利用研究の中で、高時間分割 X 線回折は最も多く採用されて、先駆的実験が世界各所で行われている。このように、放射光源開発と利用研究の分野に、短パルス X 線利用がひとつの重要領域に成長しようとしている。このような情勢を踏まえて、本稿では短パルス X 線利用の中心的役割を果たしている高時間分割 X 線回折に焦点を絞り、現在の世界の最新研究動向をレビューし、東京大学大学院工学系研究科附属原子力工学研究施設 (以降、東大原施) での実験と解析を詳細に解説する。さらに、短パルス X 線源開発の動向についても解説する。最後に今後の研究開発の展開に関する私見を付記させていただいた。

## 2. 世界の研究動向

時間分割 X 線回折は従来、シンクロトロン放射光を用いてナノ秒、場合によってはミリ秒の時間分解能にて行わ

\* 東京大学大学院工学系研究科附属原子力工学研究施設 〒319-1188 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-22  
TEL: 029-287-8421 FAX: 029-287-8488 E-mail: uesaka@tokai.t.u-tokyo.ac.jp

Table 1. Recent works on time-resolved X-ray diffraction

Research institute	X-ray source	Temporal resolution	Crystal	Observed phenomena
UC San Diego	Laser plasma	10 ps	GaAs	Thermal expansion, shock wave
LBNL	SR	10 ps	GaAs	Acoustic phonon
Univ. Essen	Laser plasma	10 ps	Ge+Si	Melting, acoustic phonon
Univ. Oxford/ESRF	SR	1 ps	GaAs	Acoustic phonon
LOA	Laser plasma	<1 ps	LB crystal, InSb	Destruction, melting
Tokyo Inst. Tech.	Laser plasma	100 ps	GaAs	Shock wave
NERL, Univ. Tokyo	Laser plasma	10 ps	GaAs	Thermal expansion, shock wave

れてきた<sup>5-8)</sup>。近年になって放射光以外のパルス X 線源の開発や短パルスレーザー技術の進歩によって時間分解能が急速に向上してきている。今日では、欧米を中心に、レーザープラズマ X 線、シンクロトロン放射光などを用いて時間分解 X 線回折の研究が盛んに行われている。それらの主なものについて概観する (Table 1 参照)。

## 2.1 レーザープラズマ X 線

1997年には LOA (Laboratoire d'Optique Appliquée, Ecole Polytechnique, France) において、レーザープラズマ起源の  $\text{AlK}\alpha_1$  を用いた時間分解 X 線回折によって、レーザーパルス照射された有機物薄膜からの X 線回折像の変化をピコ秒以下の時間スケールで観測できることが示された<sup>9)</sup>。ここでは、過渡現象を誘起する光学パルスと X 線プローブパルスとのそれぞれの時間遅延に対する Bragg ピークの強度変化を観測することにより、アラキニ酸カドミウムの Langmuir-Blodgett 多重層薄膜のレーザー加熱に対する反応が研究された。薄膜の熱膨脹が起こるより前に Cd 原子の層に導入される原子の無秩序化から生じる強い強度減少がピコ秒以下時間で観測されている。LOA グループの特色には、レーザープラズマ X 線発生におけるプリパルスの使用が挙げられる。メインパルスの 5%~10% 程度のエネルギーを持つプリパルスを数 ps 先行させて X 線発生用固体ターゲットに入射することで、メインパルス到達時のプラズマ状態を制御し X 線増強と短パルス化を行っている。

また1999年, UCSD (University of California San Diego, USA) において, 30 fs の数テラワットレーザーシステムで発生した  $\text{CuK}\alpha$  線を用いて, バルク半導体におけるフェムト秒レーザー誘起の格子変動が観測された<sup>10)</sup>。ここでは, レーザー照射で生じた半導体結晶中でのコヒーレントフォノンの伝搬による, ピコ秒時間領域での原子の  $\text{m}\text{\AA}$  の空間変位を反映した X 線回折像の時間変化が研究された。ここでは特に, 近接した二本の特性 X 線,  $\text{CuK}\alpha_1$  と  $\text{CuK}\alpha_2$  の回折像の空間的変位として結晶内原子の変動の影響が現れることを示し, それらと数値計算による結果との比較によって原子配列の微小な変化を求めている。

1999年には東京工業大学において, パルス幅 6 ps のレーザープラズマ X 線を用いて,  $\text{Si}(111)$  単結晶のパルスレーザー照射による熱膨張の過程が観測された。ここではパルス幅 300 ps のポンプパルス照射によって生じた変化をブラッグ回折パターンのシフトとして観測している<sup>11)</sup>。

## 2.2 放射光

放射光施設においても1998年には ALS (Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory, USA) において, トムソン散乱 X 線発生によって生じた ~300 fs の X 線パルスを用いた時間分割 X 線回折が行われている<sup>12)</sup>。ここでは, ポンプとプローブの同期の問題によって時間分解能は数ピコ秒に制限されているようであるが, レーザー照射による InSb 結晶からの X 線回折強度の時間変化の様子が調べられている。ALS ではまた, フェムト秒レーザーを用いた電子バンチの切り出しによって ~100 fs のシンクロトロン放射 X 線を生成する手法が研究されており<sup>13)</sup>, 将来の時間分解 X 線回折への適用も議論されている。

ESRF (European Synchrotron Radiation Facility, フランス) では CO が付いたミオグロビン単結晶に 7.5 ナノ秒レーザー光を照射し, CO が光解離, 再結合していく様子をラウエ X 線回折パターンの変化としてとらえ, ミオグロビンの内部構造を明らかにしている。ここではシンクロトロン放射光のパルス幅は 150 ピコ秒で, ナノ秒からミリ秒刻みのダイナミクスが観察されている<sup>14)</sup>。さらに, ESRF において, 放射光と X 線ストリークカメラを用いて回折像の変化を ~1 ps 程度の時間分解能で測定する手法が研究されている。ESRF での放射光のパルス幅は ~100 ps 程度であるが, ストリークカメラの時間分解能が 1 ps ということである。また, レーザーと同期した光スイッチによるストリークカメラの駆動によって, ストリークカメラで積算測定する際に問題となる時間ジッターを軽減する手法の開発も行われている<sup>15)</sup>。

SPring8 ではピコ秒レーザーと ~50 ps SR のピコ秒時間精度の同期システムが構築されており<sup>16)</sup>, レチナルという色素が付着した光受容タンパク質であるバクテリオロドプシンの動的構造解析がすでに実施されている<sup>17)</sup>。

そこでは、ポンプ光として照射されるフェムト秒レーザーはまず色素によって吸収されその構造がピコ秒からナノ秒で変化し、その変化が引き続きタンパク質本体の構造変化をマイクロ秒からミリ秒で誘起し、プロトンポンプとしての機能を発現させていると考えられている。

その他、Au 金属結晶へ時間分解 X 線回折の適用<sup>18)</sup>、あるいは X 線回折とは異なるが、極短 X 線パルスの EX-AFS への応用<sup>19)</sup>など、この分野の研究のすそ野は急速に拡大している。

### 3. 短パルス X 線発生法

ピコ秒、フェムト秒の短パルス X 線発生法について簡単に解説する。まずは物理的プロセスが類似している XFEL、逆コンプトン散乱 X 線、レーザープラズマ高調波 X 線の発生をまとめてみた。XFEL では、パルス幅～150 fs (FWHM)、電荷量～0.5 nC、エミッタンス～1 mm.mrad、エネルギー～15 GeV の電子バンチを～100 m のアンジュレータに通し、SASE (Self-Amplified Spontaneous Emission)<sup>1)</sup>の原理で、電子バンチが Å オーダーにスライス化され、全電子バンチのパルス幅と同等の短パルス XFEL が発生する。次にアンジュレータ場を電子と反対方向に光速で走らせると考えると、それはレーザーパルスと等価になる。電子バンチとレーザーとの相互作用でこれも電子バンチと同等短パルスの X 線が発生される。これを逆コンプトン散乱 X 線と呼ぶ。電子ライナックでは現在サブピコ秒数十 MeV 電子バンチが生成可能で、フェムト秒 (50～100 fs) TW レーザー (波長～800 nm, Ti: Sapphire) と散乱させると、10 keV 程度のサブピコ秒 X 線発生が可能となる<sup>20,21)</sup>。この場合 X 線はインコヒーレントであるが、99%以上の直線偏光が達成される。一部これをトムソン散乱 X 線とも呼んでいるが、同義である。次に、電子の速度を 0 とすると、レーザープラズマ高調波 X 線発生となる。レーザー強度が高くなるにつれ、電子の放射は双極子放射から相対論的放射になり、電子の軌道もレーザー磁場の効果で 8 の字となり、高調波成分が軟 X 線領域に達し得る<sup>22)</sup>。この場合 X 線は条件によってはコヒーレントになるが、放射パターンは電子の動きから見ても、指向性に乏しい。実験的実証は数 nm まできているとしても、その強度はまだかなり低い (nJ 以下) であろう。

また、フェムト秒 TW レーザーを銅やモリブデンなどの金属固体ターゲットに照射して、プラズマ流体/原子プロセスを介してピコ秒 X 線が発生する手法がある。フェムト秒 TW レーザーでは必ずレーザー発振媒質中での ASE (Amplified Spontaneous Emission) のプロセスで、フェムト秒メインパルスの周辺に、プリパルスあるいは pedestal と称するパルスが存在する。これはピーク出力はメインパルスに比べてコントラスト  $10^{-6}$  以下であるが、パルス幅数 ns エネルギー、数 mJ の MW クラスの立派な

短パルス高出力レーザーである。このプリパルスがターゲット表面をアブレーションさせプラズマ発生させ、それにメインパルスが吸収されて電子が加熱され制動放射 X 線が、原子プロセスを経て  $K\alpha$  など特性 X 線が発生する。X 線はインコヒーレントで指向性もないが、強度がかなりある。例えば 4TW100 fs レーザーを銅照射して、 $K\alpha_{1,2}$  で  $10^{10}$  光子/ショットもある<sup>23)</sup>。パルス幅はプリパルスによるプラズマサイズでほぼ決まるが、10 ps 程度である。TW レーザーさえあれば実験は比較的手頃であり、現在最もよく利用されている短パルス X 線源である。

一方、大型の放射光や小型の X 線管ではカバーできない領域の小型で高輝度のコヒーレントな光源の実現を目指して X 線レーザーが研究されている。レーザーの励起に必要なとされるパワーはほぼ波長の 4 乗に反比例して増加するため X 線領域で反転分布を形成するには可視領域に比べ格段に大きな入力が必要とされる。したがって、これまで X 線レーザーの生成には KJ 級の慣性核融合用ドライバレーザーが用いられてきた<sup>24)</sup>。しかし、近年の高強度超短パルスレーザーの技術進展に伴い、新しい方式の X 線レーザーの研究が展開されるとともに装置の小型化も進んでいる。超短パルスレーザーの強力な光電界で直接多価イオンを生成する光電界電離方式では 40 fs、70 mJ の励起レーザーで 41.8 nm (パラジウム様キセノン) で利得長積 11 が得られている<sup>25)</sup>。また、日本原子力研究所関西研光量子科学研究センターでは過渡利得方式と呼ばれる数百 ps のプリプラズマ生成用パルスと数 ps の励起用パルスを組み合わせる方法によって、数 J 規模のレーザーで 13.9 nm (ニッケル様銀イオン) の飽和増幅が達成されている<sup>26)</sup>。この方式による X 線レーザーの典型的なパルス幅は 2-3 ps である。

また、1994年コロラド州立大学の J. J. Rocca らはテーパートップサイズのパルスパワー装置を用いた高速キャピラリー放電で 46.9 nm (アルゴンのネオン様イオン) の飽和増幅を得て人々を驚かせた<sup>27)</sup>。励起エネルギー入力にレーザー光を用いないこの方式は、X 線レーザーのパルス幅は 1 ns 程度と長いもののショットあたりのエネルギーが数百  $\mu$  mJ にも達し、さらに 10 cm を越える媒質中を光ガイドされながら増幅される誘導放射光は高い空間コヒーレンスを持っている<sup>28)</sup>。最近では短波長化の研究も進みつつありニッケル様カドミウムイオンを用いた 13.2 nm での発振が確認されている。

さらに、広島大学、日本大学にて研究が行われている、高エネルギー電子バンチを Si 単結晶照射して発生するコヒーレントなパラメトリック X 線<sup>29)</sup>、立命館大学で開発されている小型シンクロトロンに金属フォイルを挿入して短パルス X 線が発生する装置<sup>30)</sup>などがある。

### 4. フェムト秒高速量子現象研究設備

東大原施ライナック施設においては二つの電子線形加速

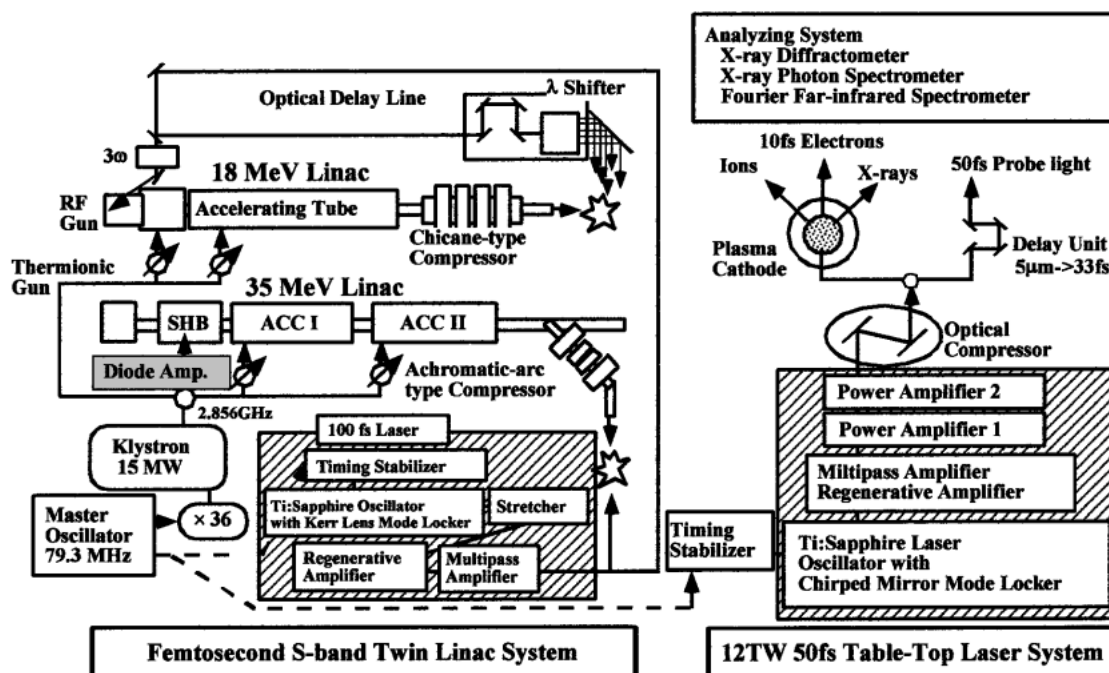
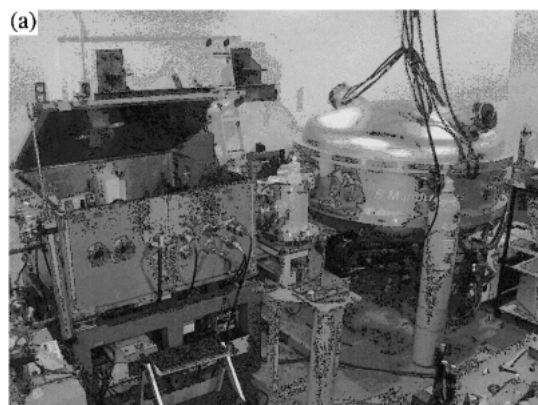
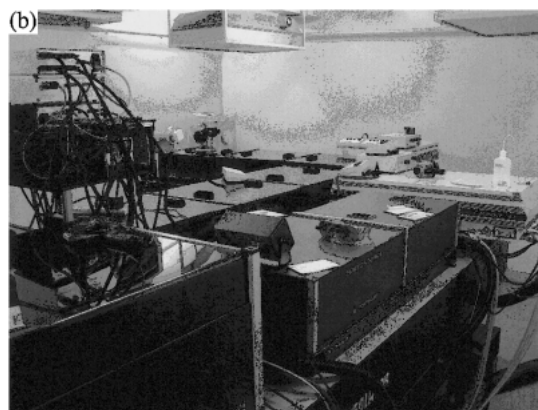


Figure 1. Femtosecond Ultrafast Quantum Phenomena Research Facility.

器によりピコ秒からサブピコ秒の電子パルスが生成可能であり、それら極短電子パルスは放射線化学における初期過程を解明するパルスラジオリシス法などの研究に利用されてきた。それらの加速器はまた、外部のシステムとピコ秒レベルで同期が可能であり、テラワットレーザーとの同期を用いてレーザー航跡場加速やトムソン散乱 X 線発生などの成果が上げられている。短パルスビーム発生・計測・利用研究をさらに推進するべく、東大原施に平成10、11年度にフェムト秒高速量子現象研究設備が構築された (Fig. 1 参照)。フェムト秒ライナック・レーザー同期システム、12TW50fs テーブルトップレーザーシステム (Fig. 2 参照) と分析システムである。フェムト秒ライナック・レーザー同期システムでは、従来のピコ秒精度同期実績を進展させ、330 fs (rms, 数分間) に同期精度を達成した。12TW50fs テーブルトップレーザーシステムでは、レーザーを銅ターゲットにフォーカス照射して10ピコ秒程度の X 線パルスを発生させ、高時間分割 X 線回折実験を実施している。それ以外にレーザープラズマカソード方式によって10 fs レベルの電子ビーム、レーザープラズマ中でのイオン爆発によるフェムト秒イオンビーム、極低温重水素クラスターガスジェットを使ったピコ秒中性子パルスの生成研究を実施している。ビームスプリッターより分析パルスを分岐し、光路調整によって遅延をつければ、10  $\mu\text{m}$  位置設定精度は33 fs 時間精度となる。



(a) Experimental chamber and optical compressor



(b) Laser

Figure 2. 12 TW50 fs laser system.

## 5. レーザープラズマ X 線によるピコ秒時間分割 X 線回折<sup>31,32)</sup>

### 5.1 経緯

東大原施では以前よりフェムト秒ライナックの特性を生かして、相対論的エネルギーを持つ電子ビームと高出力レーザーとの衝突によるコンプトン散乱 X 線発生を追及してきた<sup>21)</sup>。しかし、ここで X 線を発生させるためには電子ビームとレーザーパルスの空間的・時間的位置関係を精度よく制御して 2 つのパルスを衝突させてやる必要がある。ここにさらにポンププローブのためのパルスをもう一つ加えると、同時に 3 つのパルスを取り扱わなければならない、体系の複雑さが増す。発生する X 線のパルス幅が短く、我々のライナック電子ビームのパルス幅と同程度となる、という利点はあるが、X 線量は比較的少なく、同期や制御の困難さを考えると時間分割 X 線回折への適用は容易ではない。我々が次に採用した手法は短パルス電子ビームを固体標的に照射した際に発生する特性 X 線を利用する方法である<sup>33)</sup>。この手法では、標的の形状を工夫することで照射電子ビームと同程度のパルス幅を持つ X 線を発生させることが可能である。この手法を用いて短パルス X 線を発生し、回折像の取得を行ったが、1 枚の像を得るのに 1 時間以上を要し、ポンプパルス照射中に試料が損傷するなど、依然 X 線量の少なさに問題があった。そこで我々は高出力レーザーを固体標的に集光することで得られるレーザープラズマ X 線の利用へと進んだ。レーザープラズマ X 線では、1 つのレーザーパルスでポンプとプローブ光の発生を行えるため、同期の問題がないという利点がある。まず始めに 3 TW レーザーを使用してレーザープラズマ X 線の発生を確認し、その後、12 TW レーザーの導入によって本格的な時間分割 X 線回折への適用を開始した。

### 5.2 実験

**Figure 3** に、本実験の実験体系図を示す。真空容器内に導入された 12 TW 50 fs レーザーは、ビームスプリッターによって、メインパルスとポンプパルスに分けられる。メインパルスはパラボリックミラーによって銅板ターゲットに集光され、プローブ光となるレーザープラズマ X 線を発生させる。一方、ポンプパルスは可動ミラーに反射した後、レンズによって結晶上に集光され、過渡変化を誘起するポンプ光となる。可動ミラーを動かすことによってポンプパルスの光路長を変え、ポンプとプローブの時間差を変えることができる。ポンプされた結晶にプローブ光が当たると、プローブ光と結晶表面のなす角度がブラッグ角となる方向のみ X 線が回折してくる。この X 線は過渡変化の格子構造情報を含んでおり、イメージングプレートを用いてその X 線回折像を取得する。ポンプ・プローブ時間差を -50 ps から 300 ps まで 50 ps 刻みで変えて、GaAs 単結晶 (111) からの X 線回折像を取得した。**Figure 4** は時

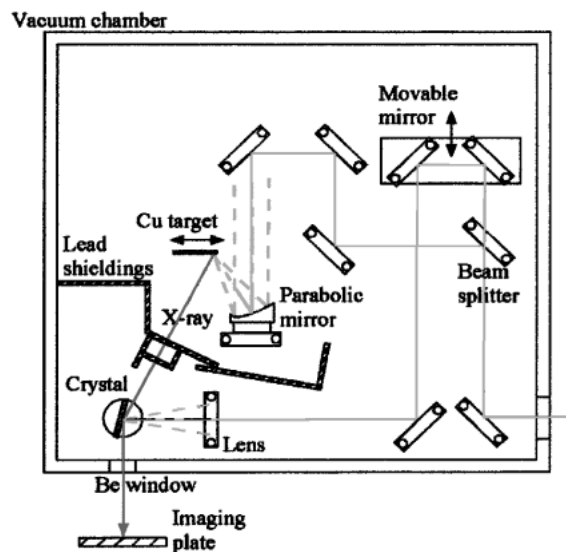


Figure 3. Experimental setup in the experimental chamber.

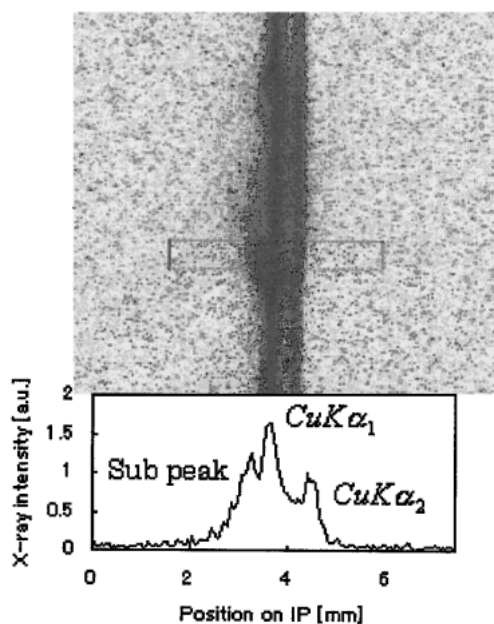


Figure 4. Change of X-ray diffraction pattern of GaAs ( $\text{CuK}\alpha_{1,2}$ ) at 150 ps after laser irradiation.

間差 150 ps における X 線回折像とプロファイルである。回折ピーク  $\text{CuK}\alpha_1$  線、および  $\text{CuK}\alpha_2$  線以外に、ポンプされていない結晶からの回折像には現れないサブピークが見られる。これは、ポンプによって結晶に起きた格子構造の変化を表していると考えられる。これが、どのような格子構造の変化を反映したものであるのかは、次節で説明する。

### 5.3 数値解析

結晶からの X 線回折は、原子内電子による X 線のトムソン散乱に起因するものである。X 線源として一点から

の等方的な放射を考えると、ある位置  $\mathbf{r}_0$  での電場の強度が  $E_0$  となる X 線源 (位置  $\mathbf{r}_s$ ) から放射された X 線が、結晶内の  $i$  番目の原子 (位置  $\mathbf{r}_{a_i}$ ) で散乱されたとき、観測点 (位置  $\mathbf{r}_0$ ) での電場  $E_{0_i}$  は、

$$E_{0_i} = -r_e (\mathbf{e}_{a_i} \cdot \mathbf{e}_s) f_i r_0 \mathbf{e}_s E_0 \times \frac{\exp(ik(|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_{a_i}| + |\mathbf{r}_{a_i} - \mathbf{r}_s|))}{|\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_{a_i}| \cdot |\mathbf{r}_{a_i} - \mathbf{r}_s|} \quad (1)$$

となる。ただし、 $\mathbf{e}_{a_i}$ ,  $\mathbf{e}_s$  はそれぞれ入射波、散乱波の偏光ベクトルである。結晶内の全ての原子についてこれを足し合わせれば、結晶からの散乱波の電場強度  $E_0 = \sum_i E_{0_i}$  が求まる。これより、観測点での回折強度  $I_0$  は、位置  $\mathbf{r}_0$  での強度  $I_0$  を用いて、

$$I_0 = \frac{E_0^2}{E_0^2} I_0 \quad (2)$$

と表される。以上を用いて、GaAs 単結晶(111)の原子配列モデル (表面から深さ方向に 1 列に原子が並ぶ) からの X 線回折シミュレーションを行った。Figure 5 にポンプ・プローブ時間差を 150 ps にしたときの計算結果のプロファイルを実験結果とともに示す。両者はおおむね一致している。若干の相違の理由としてはレーザー出力変動、相転移、結晶損傷が考えられる。

このシミュレーションにおける原子配列の変位  $u$  は、結晶の深さ方向座標  $z$  と時間差  $t$  の関数として、

$$u(z, t) = C \left[ -\zeta e^{-z/\zeta} \left( 1 - \frac{1}{2} e^{-vt/\zeta} \right) + \frac{\zeta}{2} e^{-|z-vt|/\zeta} \right] \quad (3)$$

で与えられる。ここで  $C$  は結晶表面での歪み、 $\zeta$  はレーザーの吸収長、 $v$  は音速である。Figure 6 に変位の推移を示す。表面付近の負の変位は熱膨張を示しており、深さ方向へ進む変位は音響フォノンを示している (これらの現象については次節で説明する)。X 線回折強度の実験結果と計算結果の類似から、実際の結晶にもこれと同じようなことが起きていると考えられる。

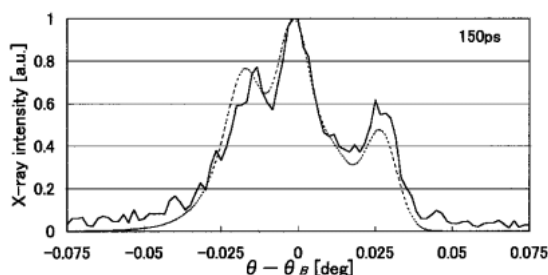


Figure 5. Comparison between experimental (solid line) and numerical (broken line) results of X-ray diffraction pattern.

#### 5.4 原子動画像化

GaAs 表面に照射されたレーザーは、結晶内に正孔・電子対を生成することで吸収される。これらのキャリア (正孔および電子) が結晶格子と相互作用することでフォノンが生成される (格子散乱)。これらフォノンの内ある物は表面付近に留まり、ある物は結晶内部に伝わり、それらが熱膨張や音響フォノンの伝播といった過渡現象として現れる。レーザー照射された GaAs 結晶表面は生成されたキャリアによって電子エネルギーバンド構造の歪に伴う半導体-金属相転移<sup>34)</sup>や構造の無秩序化を起し、電子・格子散乱やコヒーレントフォノンの生成および位相緩和等が進行する。以上のような描像がフェムト秒レーザー分光による光学的特性の測定等<sup>35)</sup>から求められており、これらの初期過程に対するスナップショットを作成した。Figure 7 はコヒーレント光学フォノンの振動である。周波数はほぼ 8.5 THz のほぼ定在波である。Figure 8 は表面近傍の熱化のスナップショットを表現している。これら 60 ps 以内の時間領域における X 線回折像の取得とフェムト秒レーザー分光から得られる知見との比較、検証は次回実験の重要な課題である。

また、前節で得られた GaAs の原子配列を視覚的に表現することで、60 ps 以降の時間変化のアニメーション化を

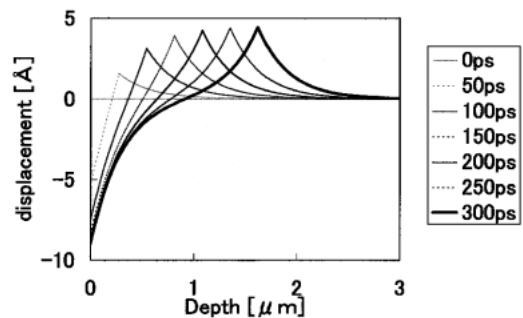


Figure 6. Numerical results of shock wave propagation.

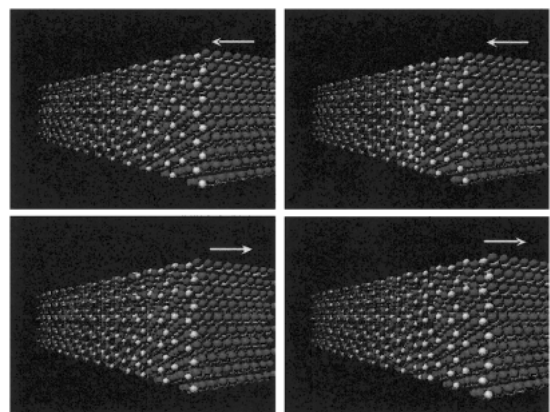


Figure 7. Visualization of Coherent longitudinal optical phonons (standing wave,  $\sim 8.5$  THz).

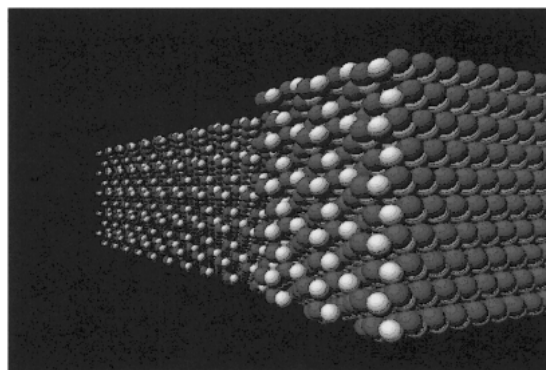


Figure 8. Phase relaxation, thermalization and expansion (1~60 ps).

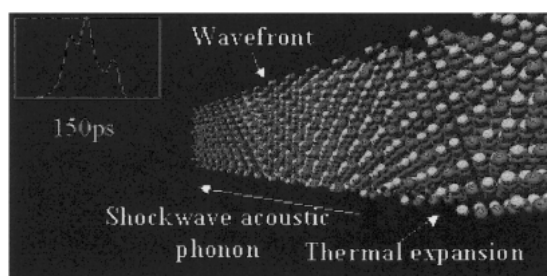


Figure 9. Visualization of shock wave acoustic phonons (coherent) and thermal expansion (incoherent optical phonons).

行った。**Figure 9**はそのスナップショットであり、表面に発生する熱膨張と結晶の奥へ進行する音響フォノンが表現されている。

これらの結果と解釈は他研究機関のそれらとほぼ一致している<sup>10)</sup>。

## 6. 今後の展開

### 6.1 半導体マイクロダイナミクス

GaAs 単結晶(111)の他に、Si 単結晶(111)と Ge 単結晶(111)についても同様のシミュレーションを行った。**Figure 10**に Si, Ge からの時間差150 ps における X 線回折強度を GaAs とともに示す。ただし横軸の値は GaAs のみに対応している。Si では GaAs と同様サブピークが見られるが、Ge では見られない。この理由としては、キャリアダイナミクスとレーザー吸収深さの相違に起因すると考えている。近々検証実験を予定している。

### 6.2 その他の X 線利用

色素が付着した光受容タンパク質の本体の構造変化の分析には、スペクトル的にも強度的にも SR が適しているであろう。その反面、色素の構造変化にはパルス幅10 ps 程度のレーザープラズマ X 線が適用可能でないかと考えている。具体的には色素の粉末試料をレーザープラズマ X

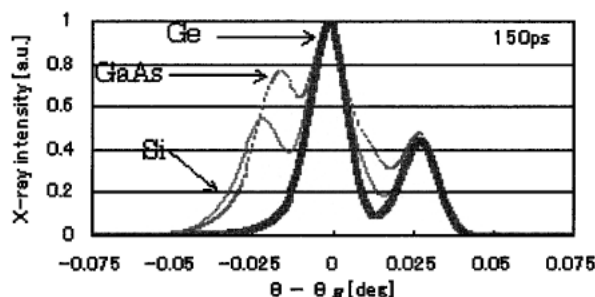


Figure 10. Difference of X-ray diffraction patterns for Si, GaAs, and Ge monocystals by numerical analyses.

線による時間分割粉末 X 線回折にて実施する。円形回折パターンのパピコ秒刻みのスナップショットをとり、色素の構造変化をとらえる。レーザープラズマ X 線利用で判明するピコ秒からナノ秒での色素構造変化と、SR 利用で判明するマイクロ秒からミリ秒でのタンパク質構造変化がうまく繋げられないかと期待している。

また、レーザープラズマ X 線源を使った小型の時間分割 X 線イメージングシステムの可能性もみてみたい。すでに SR と Si 干渉計を使った X 線イメージングにより、マウスやラットの血管構造の観察が実施されている<sup>36)</sup>。単結晶で回折させてモノクロ化し、その後 Si 単結晶干渉計を使ったらどの程度の空間分解能で X 線イメージングが可能か、調べる予定である。

## 7. 結言

短パルス X 線利用・光源開発情勢をレビューし、利用研究の代表例として、高時間分割 X 線回折を、筆者らの研究を中心に詳細に解説した。実験結果から導かれた原子ダイナミクスはまだ既知の半導体格子ダイナミクスの検証の域を出ていない。さりながら、その新手法の研究を継続していけば、未知のマイクロダイナミクスの発見と新しいナノダイナミクスと言える産業応用も見い出せよう。一方、XFEL、逆コンプトン散乱 X 線源、レーザープラズマ X 線源、X 線レーザーなど、新しい短パルス X 線源の開発も着々と進行している。光源開発と先駆的利用を並行して行っていけば実用化の日も早まろう。短パルス X 線利用が、新しい放射光利用の重要な一翼を担っていることを期待している。

## 謝辞

本稿執筆のあたり、東大原研研究機関研究員細貝知直博士、大学院生大久保猛君、鐘ヶ江幸男君の協力を得た。ここに感謝申し上げる。

## 参考文献

- 1) 磯山悟朗, 加藤龍好: 放射光 第14巻第3号, 163 (2001).
- 2) <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/icls>

- 3) <http://tesla.desy.de/new-pages/4000TF-project.html>
- 4) 新竹積他 : Proc. of The 26<sup>th</sup> linac Accelerator Meeting In Japan 4 (2001).
- 5) B. C. Larson, J. Z. Tischler and D. Mills: J. Mater. Res. **1**, 144 (1986).
- 6) A. Zigler, et al.: Appl. Phys. Lett. **51**, 1873 (1987).
- 7) S. Kojima, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **27**, L1377 (1988).
- 8) M. Kriechbaum, P. Laggner and G. Rapp: Nucl. Instrum. and Meth. **A 291**, 41 (1990).
- 9) C. Rischel, et al.: Nature **390** (1997) 490.
- 10) C. Rose-Petruck, et al.: Nature **398**, 310 (1999).
- 11) Y. Hironaka, et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 4950 (1999).
- 12) A. H. Chin, et al.: Conf. Proc. Int. LEOS Annu. Meet. **11**, 134 (1998).
- 13) R. W. Schoenlein, et al.: Science **287**, 2237 (2000).
- 14) V. Srajer, et al.: Science **274**, 1726 (1996).
- 15) K. Scheidt and G. Naylor: DIPAC-99, Chester UK,
- 16) Y. Tanaka, T. Hara, H. Kitamura and T. Ishikawa: **71**, 1268 (2000).
- 17) 岡 俊彦, 上久保裕生, 片岡幹雄 : 放射光 第12卷第3号, 184 (1999), pp.184-193.
- 18) P. Chen, I. V. Thomov and P. M. Rentzepis: J. Chem. Phys. **104**, 10001 (1996).
- 19) F. L. H. Brown, K. R. Wilson and J. S. Cao: J. Chem. Phys. **111**, 6238 (1999).
- 20) I. V. Pogorelsky, et al.: Phys. Rev. **3**, 090702 (2000).
- 21) M. Uesaka, et al.: Nud. Instrum. Meth. A, **455**, 90 (200).
- 22) Z. Chang, et al.: Phys. Rev. Lett. **79**(16), 2967 (1997).
- 23) M. Yoshida, Y. Fujimoto, Y. Hironaka, et al.: Appl. Phys. Lett. **73**, 2393 (1998).
- 24) B. J. MacGowan, et al.: J. Opt. Soc. Am. B **5** **74**, 1858 (1988).
- 25) B. E. Lemoff, et al.: Phys. Rev. Lett. **74**, 1574 (1995).
- 26) T. Kawachi, et al.: CLEO Pacific Rim. 2001, Technical digest I, PP 62 (2001).
- 27) J. J. Rocca, et al.: Phys. Rev. Lett. **73**, 2192 (1994).
- 28) M. C. Marconi, et al.: Phys. Rev. Lett. **79**, 2799 (1997).
- 29) 例えば, 早川恭史他 : Proc. of The 26<sup>th</sup> linac Accelerator Meeting In Japan 110 (2001).
- 30) H. Yamada: J. Synchrotron Radiation, (1998) 1326 (Invited paper for SRI97)
- 31) K. Kinoshita, et al.: Laser and Particle Beams, **19**, 125 (2001).
- 32) 木下健一 : 博士論文, 東京大学, 2001年
- 33) H. Harano, et al.: J. Nucl. Mater. **280**, 255 (2000).
- 34) L. Huang, et al.: Phys. Rev. Lett. **80**, 185 (1998).
- 35) A. Yamamoto, et al.: Phys. Rev. Lett. **73**, 740 (1994).
- 36) 百生 敦, 武田 徹, 板井悠二 : 放射光 第14卷第2号, 107 (2001).