

## 小特集「SACLA, X線時間分解測定によるフェムト秒ダイナミクス研究への進展」企画説明

富樫 格 (高輝度光科学研究センター)

X線自由電子レーザー (XFEL) SACLA<sup>1)</sup>は、2012年3月に供用を開始して丸3年を迎えようとしています。XFELは、“100%に近い空間コヒーレンス”, “大出力光学レーザーに匹敵するピーク強度”, “フェムト秒領域の超短パルス”という他のX線光源にはない特徴を持っており、この特徴を最大限に活かして、これまで数多くの成果を挙げてきました。この中で“フェムト秒領域の超短パルス”を利用した研究テーマである超高速ダイナミクス研究についてご紹介すべく、本号の小特集記事を組むことになりました。

ダイナミクス研究は、文字通り変化しているもの、あるいは、動いているもの全てが対象となり得ますが、XFELが得意とするのは、ピコ秒からフェムト秒の時間領域です。この時間領域では、今まで見えていなかった原子や電子、格子の変化を捉えることができるため、化学反応や相転移現象のメカニズム解明に期待されています。今回は、鈴木俊法氏 (京大教授), 大浦正樹氏 (理研ユニットリーダー), 足立伸一氏 (KEK 教授) らを中心とする3グループに執筆をお願いしました。鈴木俊法氏のグループでは、光励起化学反応における金属錯体の価数変化を、X線吸収分光法を用いて観測しています。足立伸一氏のグループでは、光照射による分子の構造変化をX線散乱により解析しています。大浦正樹氏のグループでは、光及びX線照射により発生する光電子の動的解析から、光電子分光による電子状態のダイナミクス研究へと応用しています。

この3グループをはじめ、超短パルスレーザーを用いたダイナミクス研究では、SACLAからのX線パルスと、これに同期した光学レーザーパルスを試料に照射し、2つのパルスの遅延時間を変化させることで時間変化を捉えるポンプ・プローブ法が用いられています。この手法は、1980年代に超短パルス光学レーザーにより確立された手法で、Ahmed H. Zewail氏が1999年にノーベル化学賞を受賞しました。最近では、高出力の基本波や低次高調波などをポンプ光に、基本波から発生した赤外光や軟X線領域の高次高調波などをプローブ光として多く使用されていますが、研究対象に応じ出て様々な組み合わせが考えられています。超短パルス光学レーザーを基本とするポンプ・プローブ法では、ポンプ光、プローブ光とも、同一の光源から発生するパルスを起源とするため、ポンプ光とプローブ光の遅延時間は光路長のみで決まります。また、遅延時

間を固定し、ある瞬間の状態を検出器側で長時間積算測定することが可能であるため、微弱な変化の取得やフォトンカウンティング測定などにも応用されています。

近年では、足立伸一氏のグループでも実施しているように、放射光と光学レーザーを用いたポンプ・プローブ測定も実現しており、数十ピコ秒〜ナノ秒領域の格子変化や構造変化のメカニズム解明に役立ってきました<sup>2,3)</sup>。ポンプ光とプローブ光の双方で超短パルス光学レーザーを利用する実験と異なり、放射光と光学レーザーを用いたポンプ・プローブ測定では、光学レーザーは放射光パルスに同期する必要があるので、蓄積リングのRF信号を用いたフィードバック制御が導入されています。ALS (Advanced Light Source)<sup>4,5)</sup>やBESSY (Berlin Electron Storage Ring Society for Synchrotron Radiation)<sup>6)</sup>, SLS (Swiss Lightsource)<sup>7)</sup>などの放射光施設では、蓄積リングに高強度フェムト秒レーザーを挿入し、電子ビームに軌道変調を印加することでフェムト秒パルスを切り出すレーザーサイミングに成功しており、フェムト秒領域の時間分解測定が可能になっています。ただし、レーザーサイミングで得られる放射光パルスのフォトン数は1パルス当たり1000個程度と非常に少ないため、微弱な変化を捉えるのが困難です。

SACLAでは、光学レーザーより更に短い数fs程度のパルス幅を有するだけでなく、放射光のフェムト秒パルスに比べ遥かに高い輝度があり、10 keVにおいて $\sim 0.5$  mJ/pulse ( $\sim 10^{11}$  photons/pulse)程度の出力が得られています。現在、30 Hzの繰り返し周波数で運転しており、加速器安定化により、強度、ビーム位置はそれぞれ数%程度に抑えられています。しかしながら、X線散乱を用いた構造解析やXAFSなどの実験では、強度やビーム位置の揺らぎが精度を悪化させる原因となりますので、照射ビーム強度、位置をショットごとに測定し、取得したデータに対して補正を行うことで、放射光での測定と遜色ない高精度のデータを取得しています。SACLAの運転パラメータについては、放射光 Vol. 25, No. 2に掲載されている特集「動き始めたXFEL施設SACLA」やRef. [1, 8]をご参照下さい。現在の運転状況については、各記事に記載されていますので、ここでは省略します。

SACLAをはじめ、SASE (Self Amplified Spontaneous Emission) 方式のXFELは、その性質上、スパイク状の

スペクトル形状がショットごとに変化する特性を持っています<sup>9)</sup>。SACLAの場合、約50 eV (FWHM) のスペクトル幅を持ち、スパイク状のスペクトル形状はショットごとに変化していますが、中心波長(重心)の値は数%程度に抑えられています。鈴木俊法氏を中心とする京大、農工大、理研、JASRIの共同研究チームでは、この分散的なスペクトルを利用し XAFS の測定に成功しました<sup>10)</sup>。上流に設置された透過型回折格子で3本に分離した XFEL ビームの1本を X 線吸収測定用に、もう一本を参照スペクトル測定に使用しています。

数 fs のパルス幅を持つ XFEL を使ったポンプ・プローブ測定では、XFEL パルス到達時刻に対する光学レーザーのジッターが顕著に影響します。光学レーザーは XFEL 加速器 RF 信号に同期するフィードバック制御を導入していますが、信号伝送や制御回路の揺らぎから、XFEL パルスの到達時刻に対し、0.3 ps (rms) 程度のジッターが生じます。放射光との同期でも同様の制御システムが導入されていますが、放射光のパルス幅が数十 ps 程度であるため、ジッターは問題になりませんでした。そこで、片山哲夫 (JASRI)、著者、矢橋牧名 (JASRI 室長、理研グループディレクタ) を中心とする理研、JASRI の SACLA ビームライン開発チームでは、ショットごとに相対的なジッターを測定するタイミングモニタの開発を行いました<sup>11,12)</sup>。透過型回折格子で分離したもう一本の XFEL ビームと光学レーザーパルスの相対的な到達時間差を、透過率の過渡的な変化を用いて、数 fs の分解能で測定しています。このタイミングモニタで得られる XFEL 及び光学レーザーパルスの相対的な到達時間差を、ポンプ・プローブ実験で測定されたデータに加味することで、パルス幅程度の時間分解能が達成できます。

この研究開発について片山哲夫氏は2016年放射光学会奨励賞を受賞しました。タイミングモニタの詳細については、学会誌掲載予定の奨励賞受賞記念記事、または、Ref [12] をご参照下さい。本特集記事は、このタイミングモニタが提供される以前の実験であったため、時間分解能は1 ps 程度に制限されています。現在、このタイミングモニタを活用したポンプ・プローブ実験が盛んに行われており、近々、論文として公開されるとともに、学会誌記事として紹介できるようになると思います。

以上、SACLA における時間分解測定の概要を簡単にご紹介しました。従来の光学レーザーや放射光を使用した時間分解測定とは異なり、SACLA を含め XFEL での実験はシングルショットイベントの測定・解析が必要になるため、ユーザーには峻厳な印象を持たれるかもしれません。SACLA では、XFEL ビーム診断系モニタ機器やデータ取得システムの高度化を継続して進めており、高精度・高分

解能の測定がより簡単に行えるような環境構築を目指しています。この特集記事を通じて、読者の皆様に最先端な XFEL 研究の一端に触れていただき、新たなアイディアの発端になれば幸いです。このアイディアが XFEL などを中心とする光科学研究の原動力となることを念じてやみません。

## 参考文献

- 1) T. Ishikawa *et al.*: Nature Photonics **6**, 540 (2012).
- 2) K. H. Kim, J. H. Lee, J. Kim, S. Nozawa, T. Sato, A. Tomita, K. Ichyanagi, H. Ki, J. Kim, S. Adachi and H. Ihee: Phys. Rev. Lett. **110**, 165505 (2013).
- 3) K. H. Kim, H. Ki, K. Y. Oang, S. Nozawa, T. Sato, J. Kim, T. K. Kim, J. Kim, S. Adachi and H. Ihee: ChemPhysChem **14**, 3687 (2013).
- 4) A. A. Zholents and M. S. Zolotarev: Phys. Rev. Lett. **76**, 912 (1996).
- 5) D. Robin, F. Sannibale, R. Schoenlein, W. Wan, W. Wittmer and A. Zholents: Particle Accelerator Conference, 2005. Proceedings of PAC 2005, 4096, (2005).
- 6) S. Khan, K. Holdack, T. Kachel, R. Mitzner and T. Quast: Phys. Rev. Lett. **97**, 074801 (2006).
- 7) G. Ingold, P. Beaud, S. L. Johnson, D. Grolimund, V. Schlott, T. Schmidt and A. Streun: Synchrotron Radiation News **20**, 35 (2007).
- 8) K. Tono, T. Togashi, Y. Inubushi, T. Sato, T. Katayama, K. Ogawa, H. Ohashi, H. Kimura, S. Takahashi, K. Takeshita, H. Tomizawa, S. Goto, T. Ishikawa and M. Yabashi: New J. Phys. **12**, 0833035 (2013).
- 9) Y. Inubushi, K. Tono, T. Togashi, T. Sato, T. Hatsui, T. Kameshima, K. Togawa, T. Hara, T. Tanaka, H. Tanaka, T. Ishikawa and M. Yabashi: Phys. Rev. Lett. **109**, 144801 (2012).
- 10) T. Katayama, Y. Inubushi, Y. Obara, T. Sato, T. Togashi, K. Tono, T. Hatsui, T. Kameshima, A. Bhattacharya, Y. Ogi, N. Kurahashi, K. Misawa, T. Suzuki and M. Yabashi: Appl. Phys. Lett. **103**, 131105 (2013).
- 11) T. Sato, T. Togashi, K. Ogawa, T. Katayama, Y. Inubushi, K. Tono and M. Yabashi: Appl. Phys. Exp. **8**, 012702 (2015).
- 12) T. Katayama, S. Owada, T. Togashi, K. Ogawa, P. Karvinen, I. Vartiainen, A. Partanen, C. David, T. Sato, K. Nakajima, Y. Joti, H. Yumoto, H. Ohashi and M. Yabashi: Structural Dynamics (to be published).

## 著者紹介

### 富樫 格

(公財)高輝度光科学研究センター XFEL 利用研究推進室先端光源利用研究グループ光学チーム 研究員

E-mail: tadashit@spring8.or.jp

専門: 非線形光学, 量子エレクトロニクス, 光物性

### [略歴]

2001年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了, 博士(工学), 同年理化学研究所, 2009年高輝度光科学研究センター, 2011年4月より現職。