

次世代フェムト秒放射光を利用した時間分解測定技術

田中 義人

(独)理化学研究所・播磨研究所 放射光科学総合研究センター

Time-resolved measurement technique with next generation femtosecond pulsed synchrotron radiation sources

Yoshihito Tanaka

RIKEN SPring-8 Center

The next generation synchrotron radiation (SR) sources generating femtosecond pulsed beams are expected to open new research field on ultrafast structural dynamics in material science. An energy recovery linac (ERL) and an X-ray free electron laser oscillator (XFEL-O) produce femtosecond X-ray pulses with high repetition rates of MHz to GHz. The timing control of an additional pulsed laser with respect to such SR pulses and the repetition control of SR pulses are important techniques to make pump-probe experiments. Precise SR-laser timing control, repetition rate control and high-repetition acquisition method using ERLs and XFEL-O are discussed.

次世代放射光源の魅力の一つに超短パルス性があり、高い時間分解能でのダイナミクス研究や、励起状態の研究への展開が期待できる。光をナノメートル領域にサブピコ秒パルスを照射すれば、相当の空間分解能、時間分解能で現象がみられると思いがちである。しかしながら、これを実行するためには技術的課題を克服したうえで適切な手法を選定する必要がある。既に次世代光源として SASE 型 XFEL 開発が進められている昨今、フェムト秒放射光源の利用に関する技術的課題は議論されている。一方、ERL や共振器型 XFEL(XFELO)では、高繰り返しのビームが得られ、有利な点も多くなる反面、SASE 型 XFEL とは、また異なる技術的課題が存在する。ここでは、対象とする現象に対応した、ERL や XFEL-O を利用した時間分解測定における技術的課題について議論する。

ERL 光は、典型的には 100 fs のパルス幅をもち、繰り返しは GHz オーダーとされる。ERL を利用した時間分解計測としては、100 fs のパルス幅を利用したポンプ・プローブ法に加え、全く同じ測定配置で疑似 CW 光として検出器の応答速度できまる ns オーダーの時間変化の様子も簡便に観測できる。物性研究では一つの試料における一連の現象を、様々な時間スケールで観測することも重要であるため、これは大きな強みである。以下では、ERL を用

いたポンプ・プローブ法において、必要と思われる技術について記述する。

レーザーポンプ、ERL 光プローブ測定に必要な技術としては主に、励起用パルスレーザー光の高精度タイミング制御技術、および、繰り返し計測技術が挙げられる。

まず、外部信号の時間同期については ERL 光のパルス幅と同程度かそれ以上の高い精度が要求される。同期精度を向上させる方法として、より高い周波数の基準信号を用いたり、基準信号そのものをレーザー光で置き換える方法を採用したりすることが挙げられる。ただし、試料上での同期精度となると、光、電気にかかわらず、伝送系でのジッターやドリフトについても考慮する必要がある。また、その時間間隔の遅延制御も重要であり、ビームの照射位置を変えずに制御する方法として、レーザーへのトリガー信号の遅延[1]も有効である。

次に、繰り返し測定については、ERL により、微小領域に高繰り返し照射が可能になるため、是非とも有効活用したい。ERL 低エミッタンスビームからの放射光を、安定に絞り込むことができると、刺激を与えるための励起用レーザー光のビーム径も絞り込むことができ、面積比で五桁程度小さくできれば、パルスのエネルギーも 5 桁小さくて済み、レーザー増幅器を用いずに、高繰り返しのレーザー発振器からの出力を利用できることとなる。これまで励起用レーザーのパワーの限界による繰り返し制限を解消することができ、高い積算回数による高精度測定が期待できる。

ただし、非定常状態を観測する研究に対しては、現象の回復時間との関係を考慮する必要がある。一般に繰り返し測定では、対象とする現象の回復時間よりも、測定繰り返し周期が長い必要がある。ERL の場合は、高繰り返しが逆に妨げになることさえ考えられる。さらに不可逆過程については、単純な繰り返し測定は適用できない。これらを解決できる可能性のある方法として、均一な試料を作製しておき、高速で、固体や溶液試料を移動させる方法がある。既に第三世代放射光でもいくつか採用されている[2]ので、それらを参考にして議論できる。一方、XFEL-O を励起源として用いる場合には、X 線メカニカルシャッター等による、適度な繰り返しが設定できる光の切り出し法も開発すべきであろう。

時間制御がうまく達成できれば、時間分解計測法による現象のダイナミクス研究のみならず、特に強い光と相互作用している最中の励起状態を調べることができる。さらには XFEL-O で高時間コヒーレンスをもつ光を利用できると、X線とコヒーレント相互作用している原子や多価イオンを、可視のレーザーパルス光で観測する実験も可能であろう。是非とも高精度時間制御を可能にして、フェムト秒構造ダイナミクス、強光励起系の科学の展開を期待したい。

[1] Y. Fukuyama *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 045107 (2008).

[2] 例えば Y. Tanaka *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., **48**, 03A001 (2009).