

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・基盤研究部
物質系放射光利用システム開発ユニット

1. はじめに
 - 1-1. 次世代フェムト秒放射光源
 - 1-2. フェムト秒光源が拓く物質科学

 2. ERL光、XFEL-Oを用いた時間分解測定技術とその開発要素
 - 2-1. ERLを用いた高速時間分解測定法
 - 2-2. ポンプ・プローブ法のための時間同期技術
 - 2-3. 繰り返し測定法

 3. まとめと展望
-

1. はじめに

1-1. 次世代フェムト秒放射光源

1-2. フェムト秒光源が拓く物質科学

1-1. 次世代フェムト秒放射光源

次世代光源と現有光源 ERL, XFEL-O, SASE, Storage ring

	Average brilliance	Peak brilliance	Repetition rate (Hz)	Coherent fraction	Bunch width (ps)	# of BLs	Remark
ERL	$\sim 10^{23}$	$\sim 10^{26}$	1.3 G	$\sim 20\%$	0.1-1	30	Non-perturbed measurement
XFEL -O	$\sim 10^{27}$	$\sim 10^{33}$	~ 1 M	$\sim 100\%$	1	few	Single mode FEL
SASE- FEL	$\sim 10^{22-24}$	$\sim 10^{33}$	100-10 K	$\sim 100\%$	0.1	~ 1	One-shot measurement
3 rd - SR	$\sim 10^{20-21}$	$\sim 10^{22}$	~ 500 M	$\sim 0.1\%$	10-100	30	Non-perturbed measurement

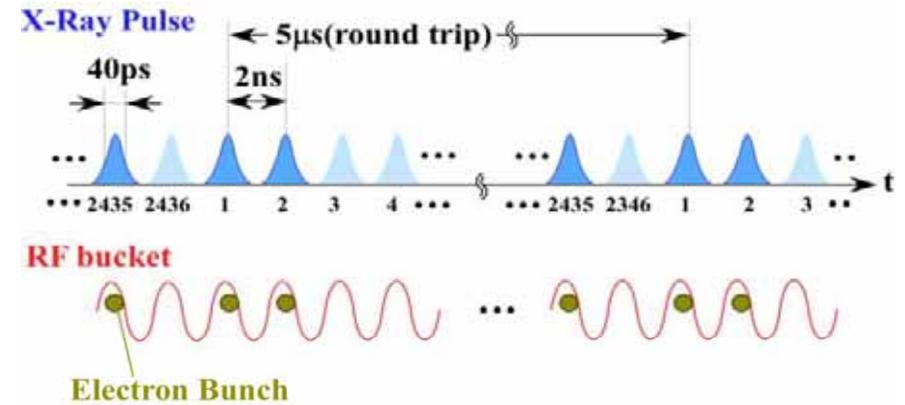
時間構造

1. Storage ring SR sources



**SPring-8,
ESRF, APS, PF,
PF-AR.....**

**Pulse width:
40 ps in FWHM
Rep. rate:
200 kHz-509MHz
(SPring-8)**

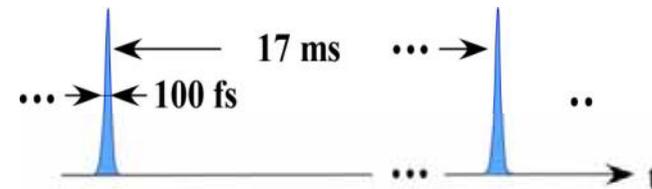


2. FEL

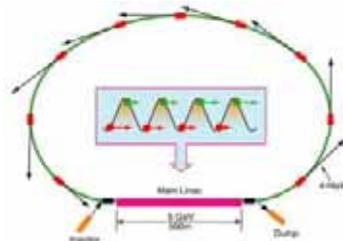


LCLS, EuroFEL, SPring-8 (XFEL/SPring-8)

**1-230 fs
120 Hz (LCLS)
<100 fs
10-60 Hz**

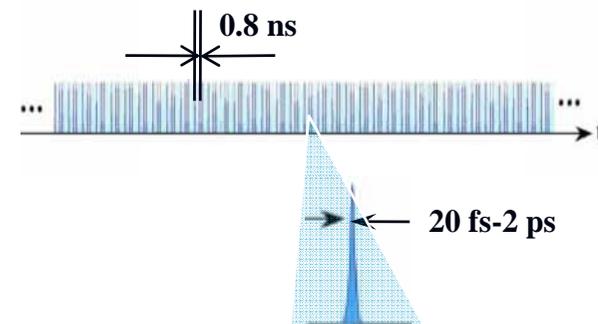


3. ERL



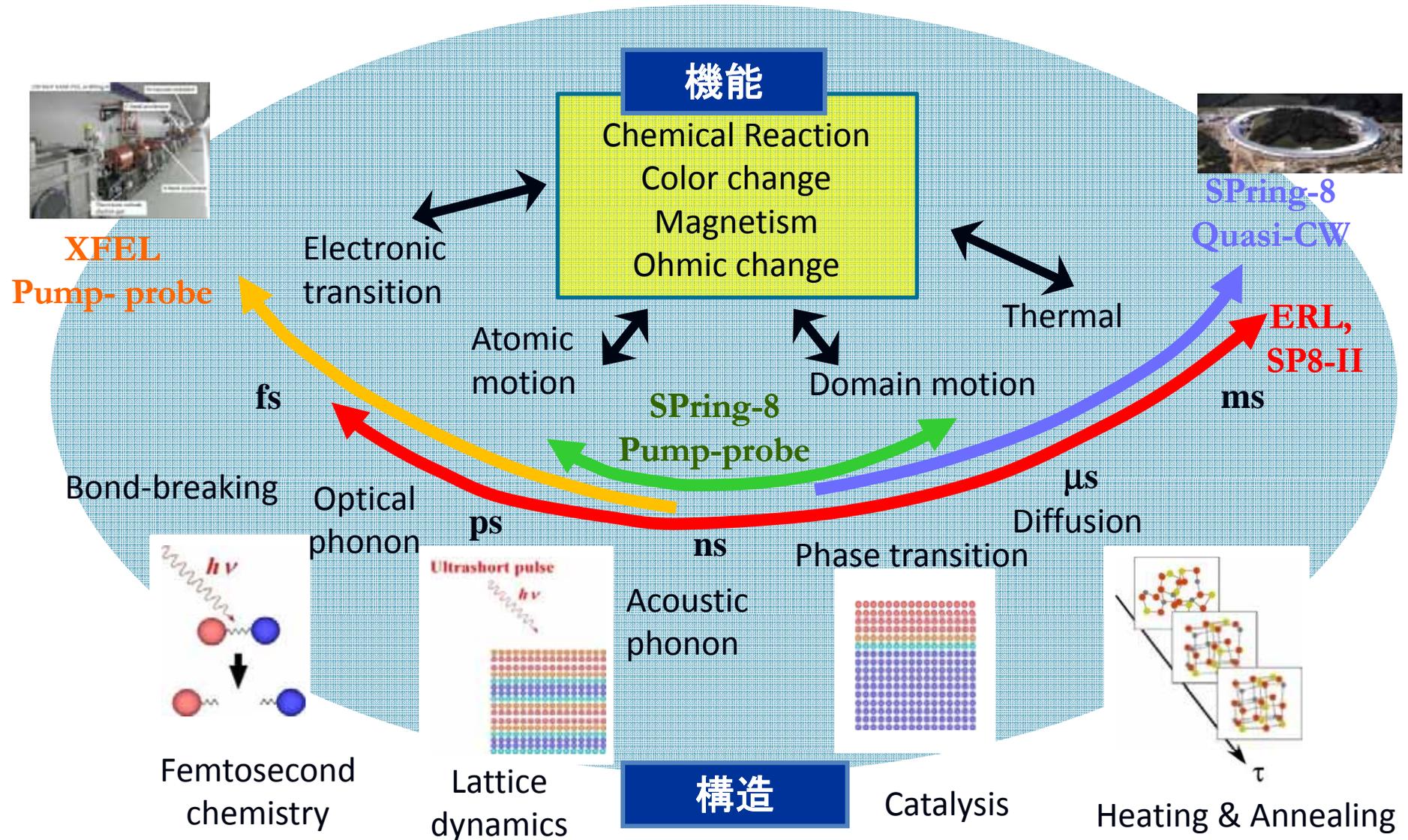
KEK, Cornell ...

**~100 fs to 1 ps
(KEK)
~20 fs to 2 ps
(Cornell)
1.3 GHz**



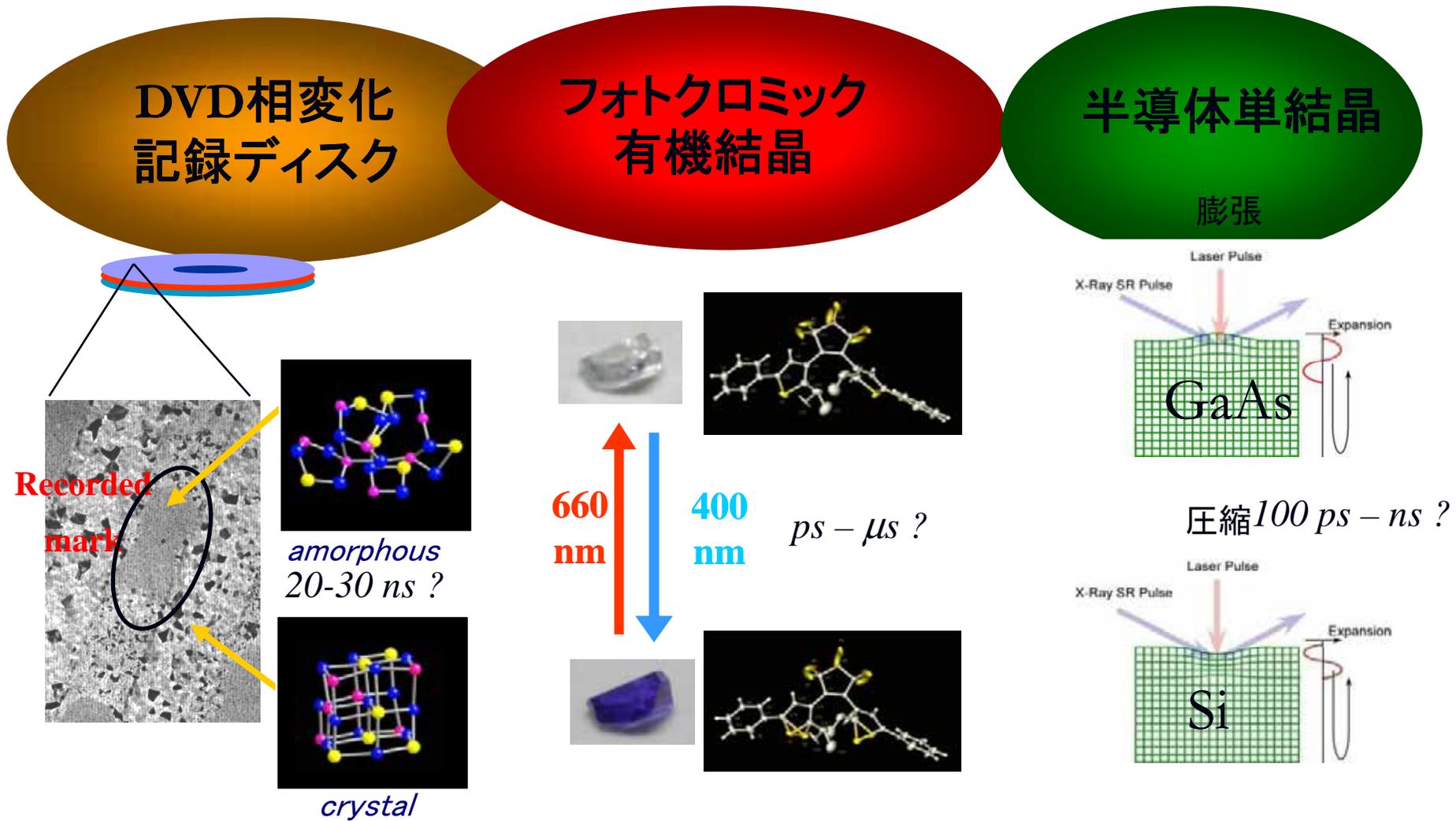
1-2. フェムト秒次世代X線光源が拓く物質科学

機能と構造変化の関係をしらべる



光照射時の物質の構造変化を見る(SPring-8での例)

--超短パルス光照射時の相変化・結晶格子ダイナミクス--



より微小領域の高速現象(素過程)の観測へ

2. ERL光を用いた時間分解計測技術とその開発要素

2-1. ERLを用いた高速時間分解測定法

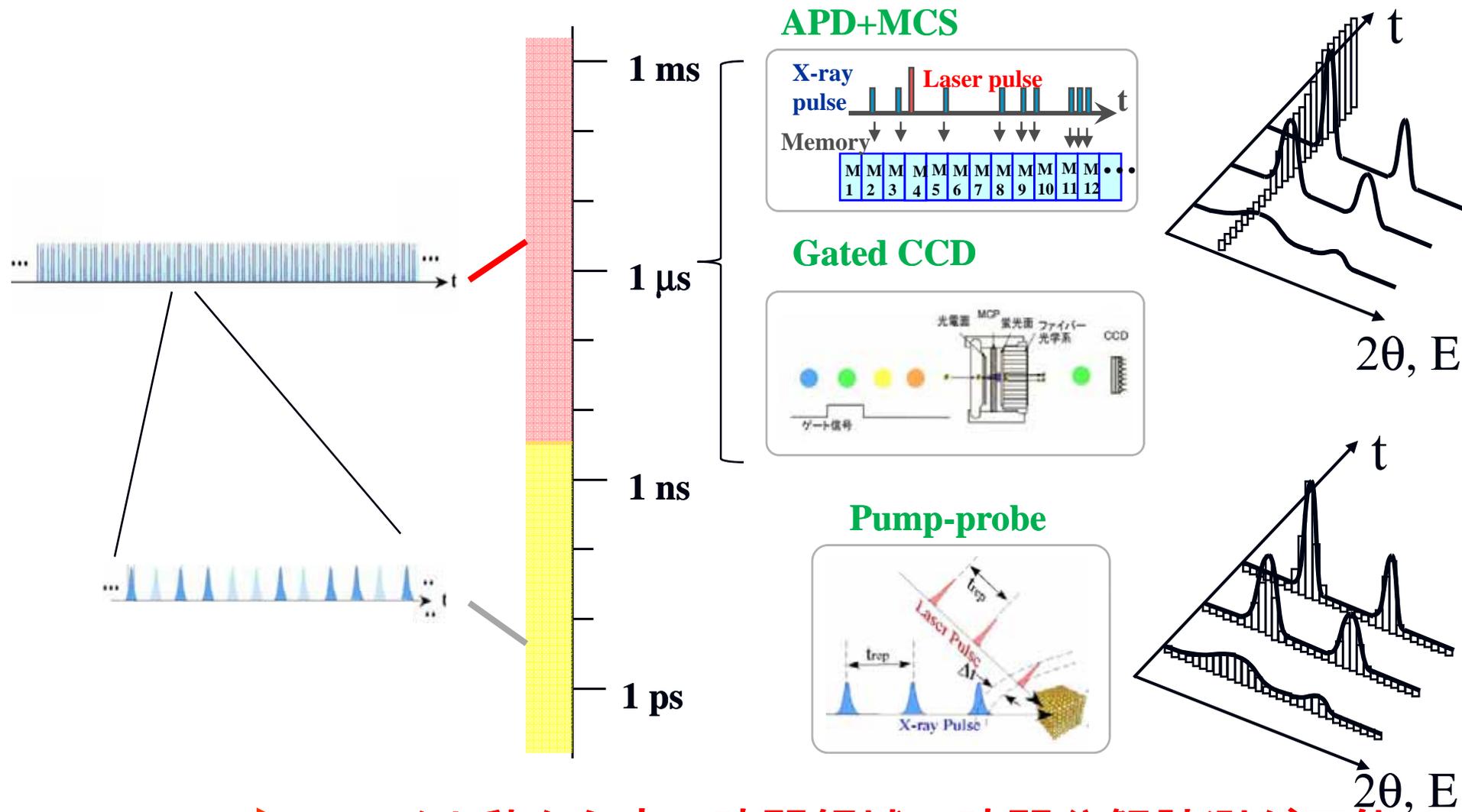
2-2. ポンプ・プローブ法のための時間同期技術

2-3. 繰り返し測定法

2-1. ERLを用いた高速時間分解測定法

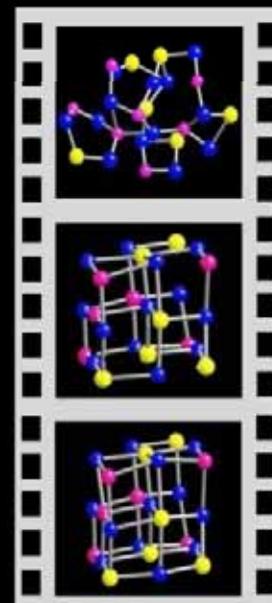
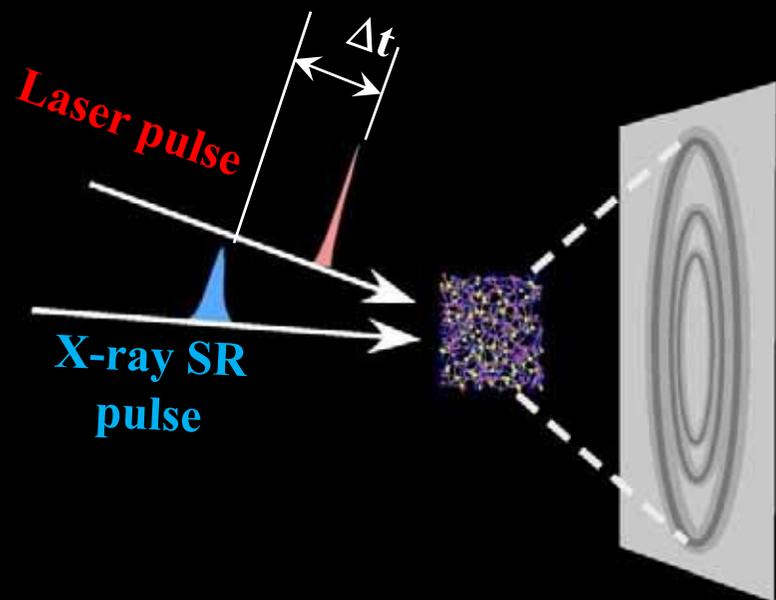
ERL time structure

Time resolution & Method



➡ フェムト秒から広い時間領域の時間分解計測が可能

2-2. ポンプ・プローブ法のための時間同期技術



$\Delta t = t_1$

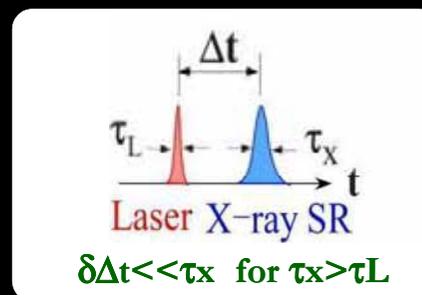
$\Delta t = t_2$

$\Delta t = t_3$

反応中の原子の動きをみる

同期システムが必要

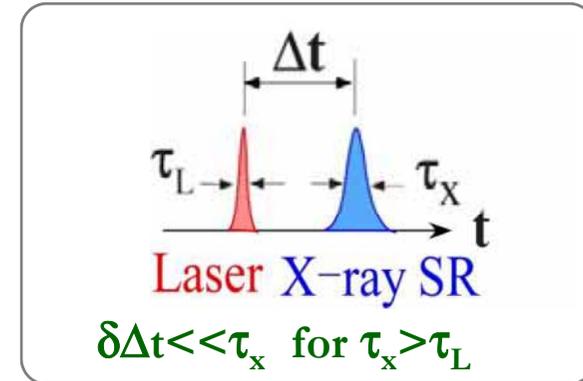
- ・Synchronization of laser and SR
- ・Time delay control
- ・Repetition control



時間同期の重要項目

(A) 高精度同期制御

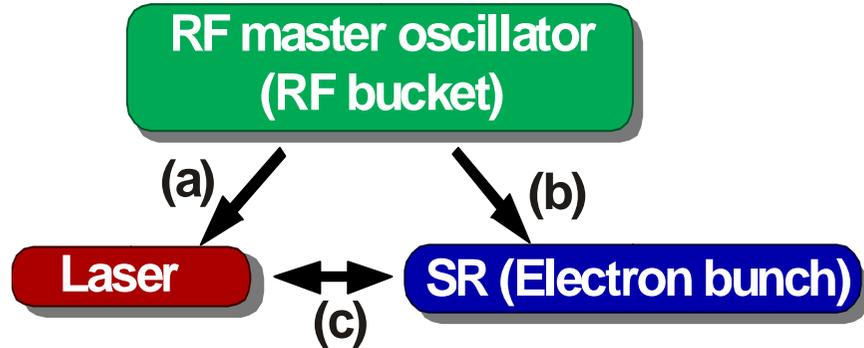
- ・要求精度 \ll パルス幅



(B) 位相(時間遅延)制御



(A) 高精度同期制御(蓄積リングの場合)



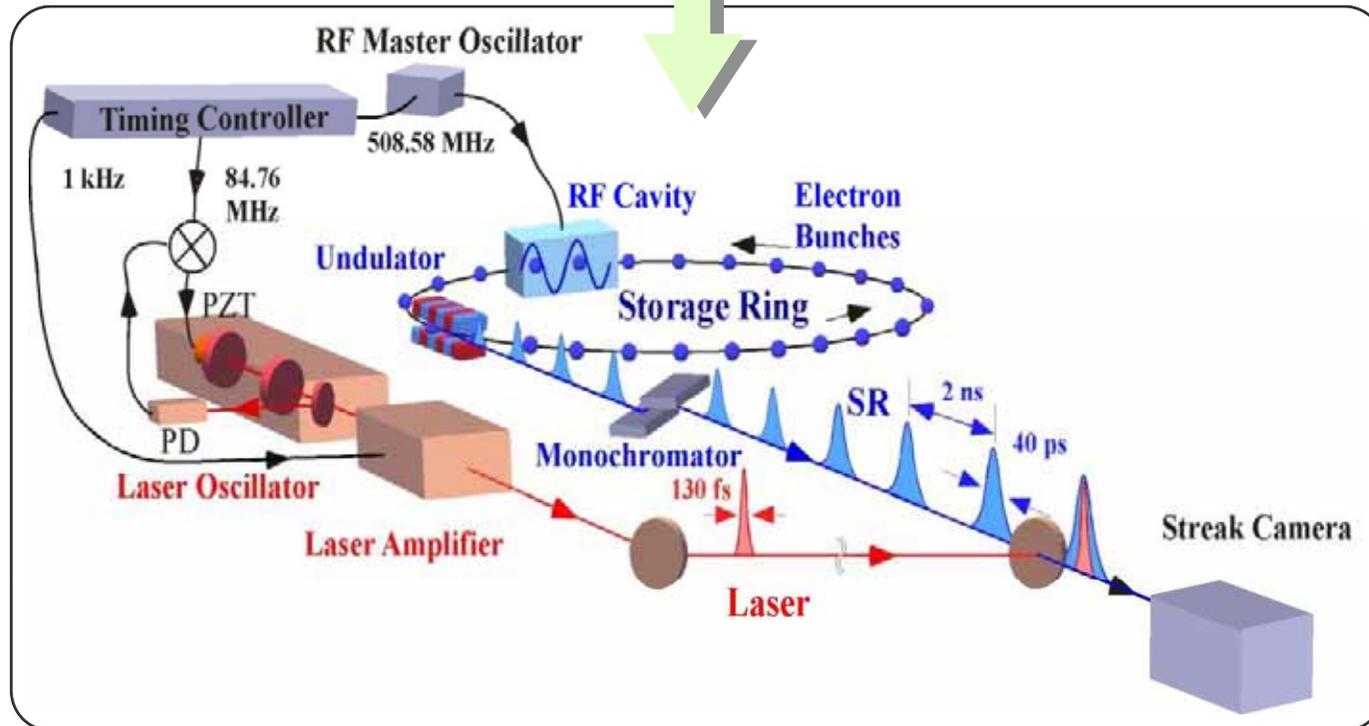
Synchronization scheme

- Mode-locked Ti:sapphire laser with external trigger from a RF master oscillator of the ring

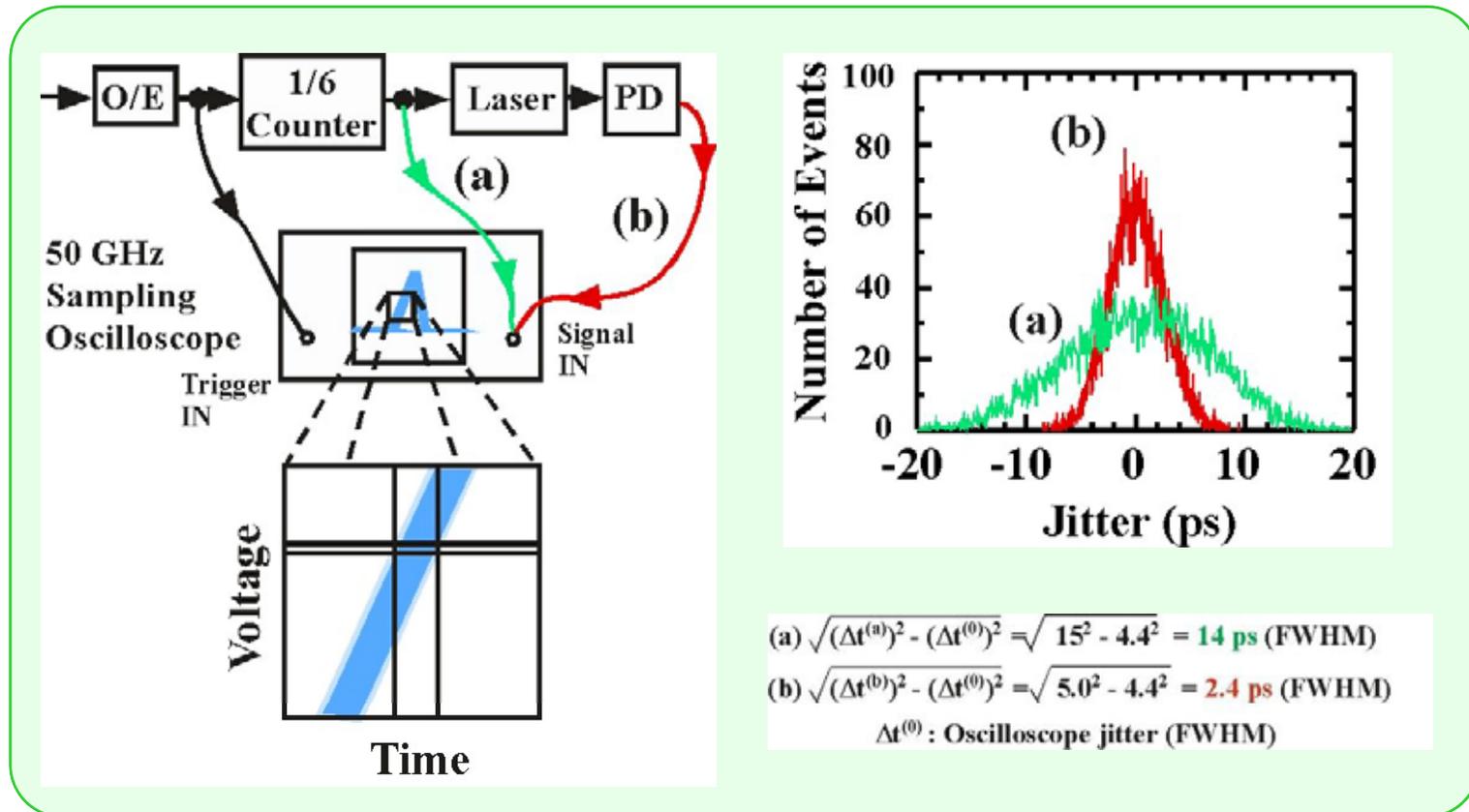
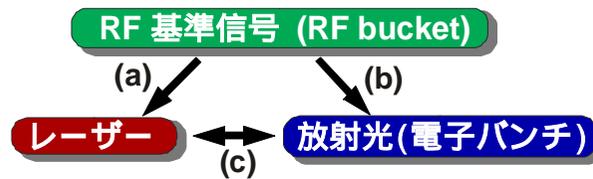
$$\text{Cavity length} = \frac{1}{2} \cdot \frac{c}{(f_0/6)}, \quad f_0: \text{Frequency of RF master oscillator}$$

- Output timing of amplified laser pulses is controlled with a counter and a delay pulse generator

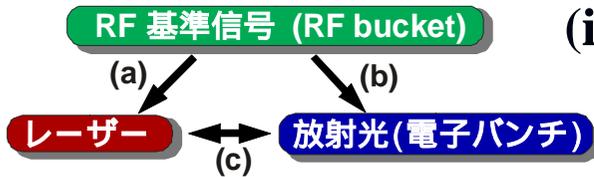
$$(\text{Repetition rate} = \frac{1}{2436 \times 209} f_0 \sim 1 \text{ kHz})$$



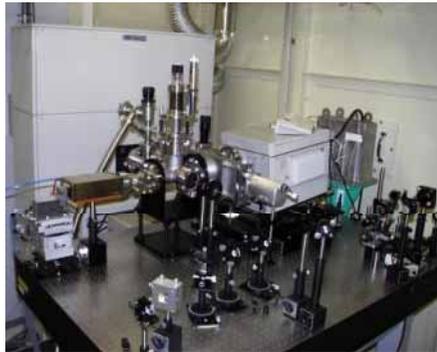
(a) RF基準信号発生器(508.58 MHz)と Laserの同期特性



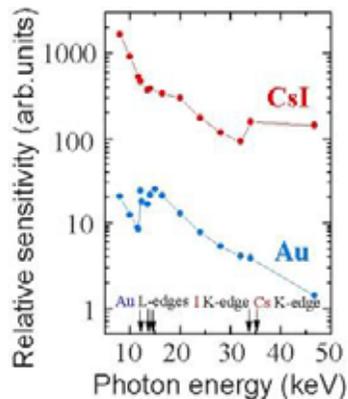
(b) X線ストリークカメラによるX線SRパルスの時間特性評価(蓄積リングの場合)



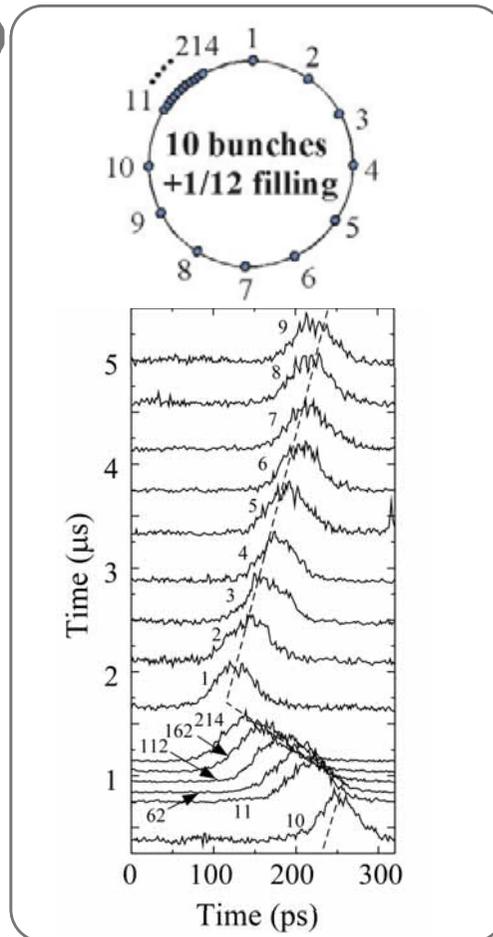
X-ray streak camera



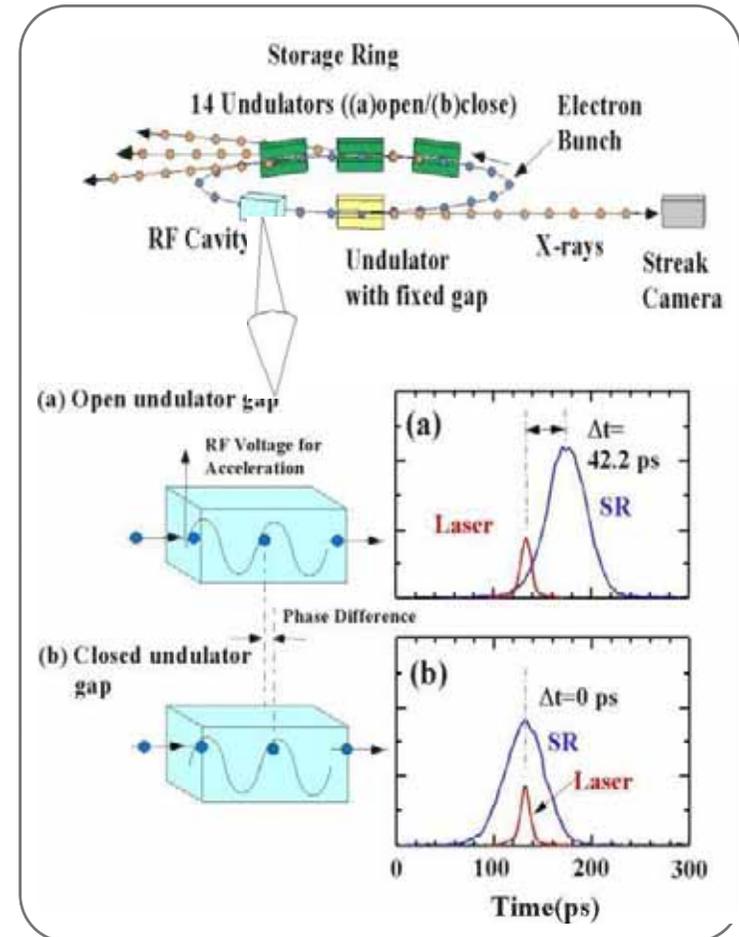
光電面感度特性



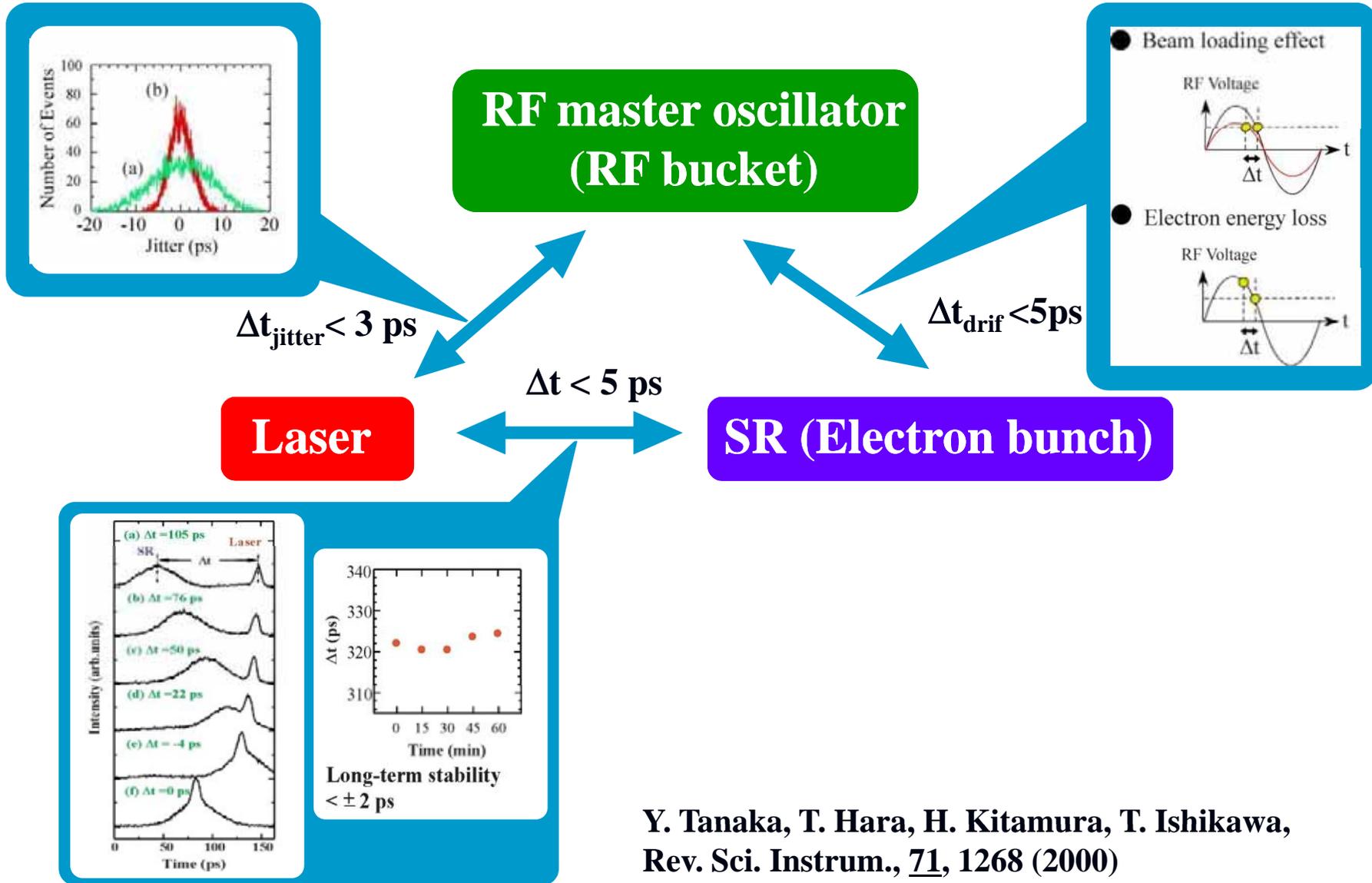
(i) Beam loading effect



(ii) Radiation power dependence



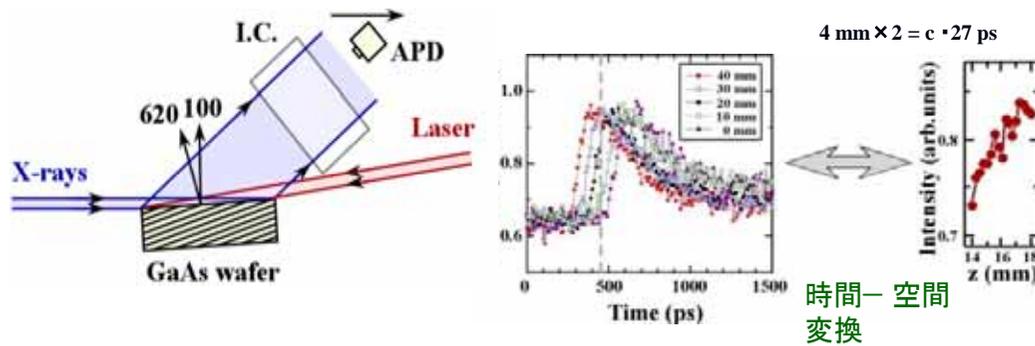
レーザー・放射光同期評価 (蓄積リングの場合)



Y. Tanaka, T. Hara, H. Kitamura, T. Ishikawa,
Rev. Sci. Instrum., 71, 1268 (2000)

Post-processing (XFEL向き)

ショット毎のタイミング記録法



Y.Tanaka *et al.* .AIP proceedings **705**, 1383 (2004)

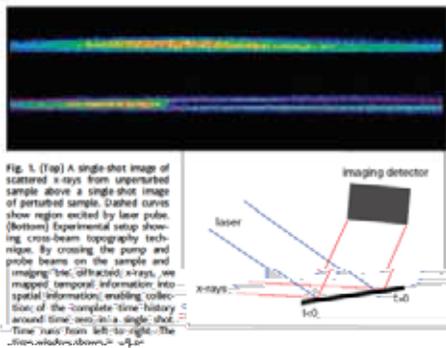
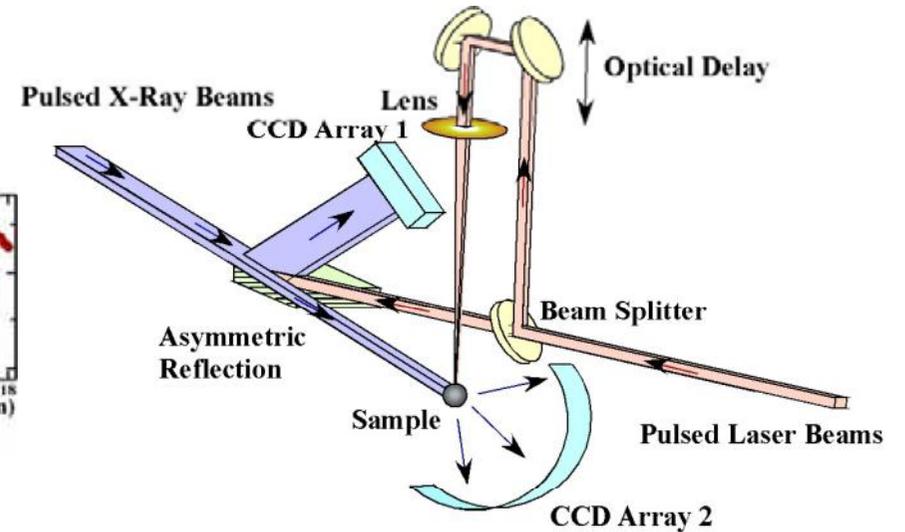
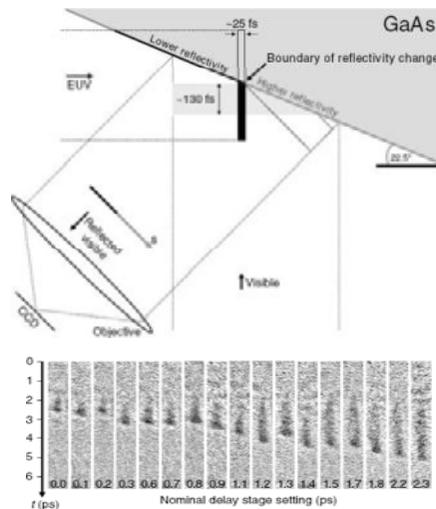
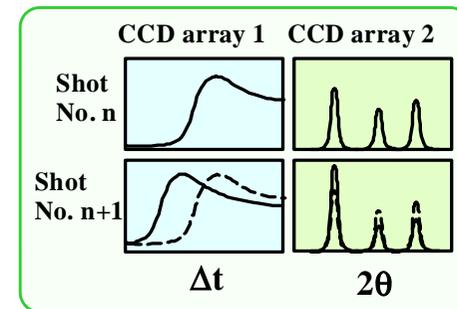


Fig. 3. (Top) A single shot image of scattered x-rays from unperturbed sample above a single shot image of perturbed sample. Dashed curves show region excited by laser pulse. (Bottom) Experimental setup showing cross-beam topography technique. By crossing the pump and probe beams on the sample and imaging line, diffracted x-rays are mapped temporal information into spatial information, enabling collection of the complete time-history around time zero in a single shot. Time runs from left to right. The time axis shows $c \cdot \Delta t$.

A. M. Lindenberg *et al.* Science **308**, 392 (2005)



T. Maltezopoulos *et al.* New J. Phys., 033026 (2008)



X線領域における超高速時間分解測定法の開発
田中義人、林雄二郎、石川哲也
レーザー研究 34(8)560 (2006)

ではERLの場合は……

なにがなんでもサブピコ同期をとろう！

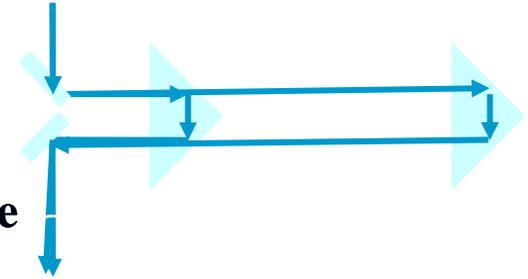
レーザーオシレーターで < 200 fs

- ・高周波信号の低ジッター性能の利用
- ・遅いドリフトはフィードバックにより補償

(B) RF位相(時間遅延)制御

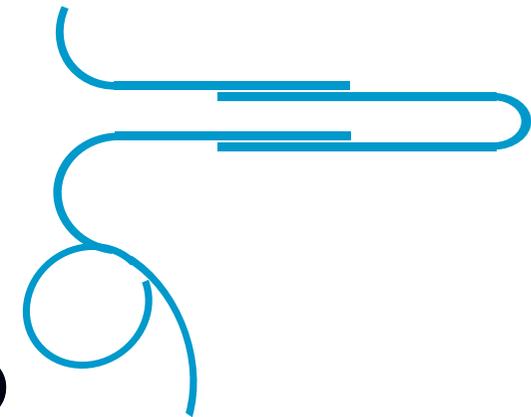
1. Optical Delay

- High precision delay
- Pump & probe pulses are supplied by single light source
- Large delay may cause the misalignment at a sample



2. RF trigger delay (Cable delay)

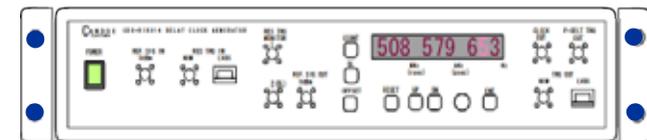
- Delay cable like a trombone
- RF noise at a contact



3. RF trigger delay (Continuous phase shifter)

- Compact **Quick feedback**

$$E(t) = \sin \omega t$$



$$A_1 \cos \omega t + A_2 \sin \omega t = \sin(\omega t - \alpha) = \sin(\omega(t - \tau)) = E(t - \tau)$$

$$A_1 = -\sin \alpha, \quad A_2 = \cos \alpha$$

phase

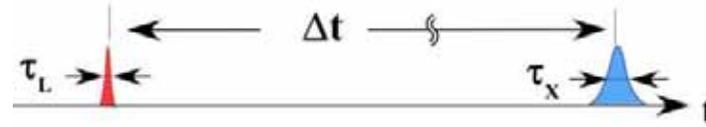
Time delay

高精度パルス遅延器(精度5psで無限遅延可能)

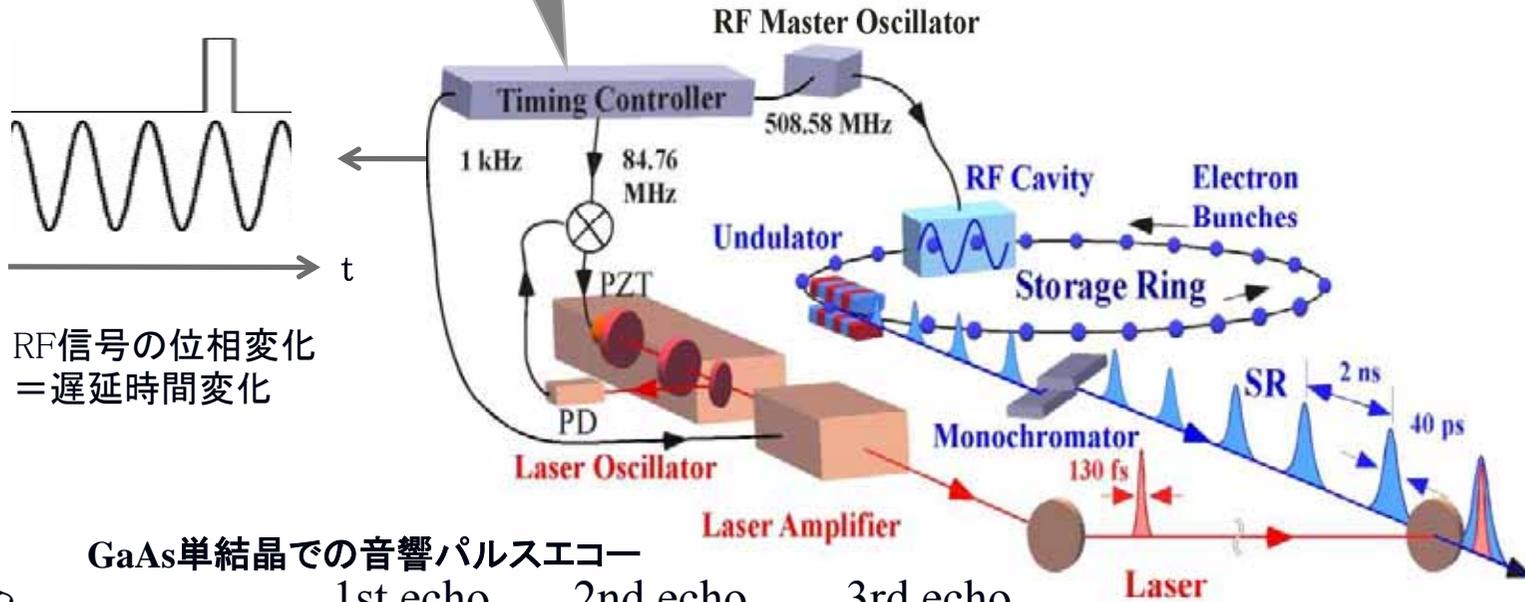
レーザーパルスと放射光パルスの
時間間隔の任意制御



開発、Candox(株)と製品化

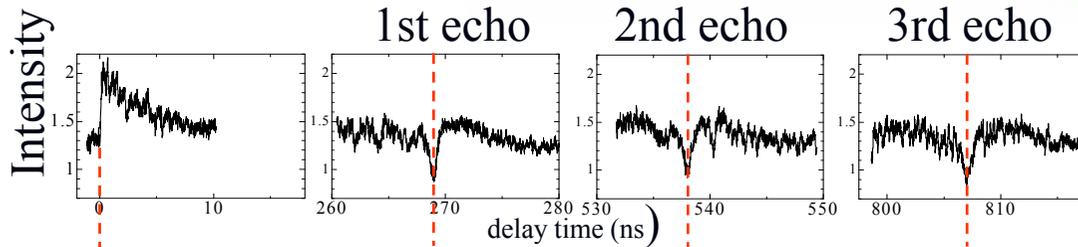


特許: 高精度クロック・トリガ連続遅延装置
特願2006-067346, 2006年, 大島、田中



RF信号の位相変化
= 遅延時間変化

GaAs単結晶での音響パルスエコー



t = 0

268.99 ± 0.01 ns

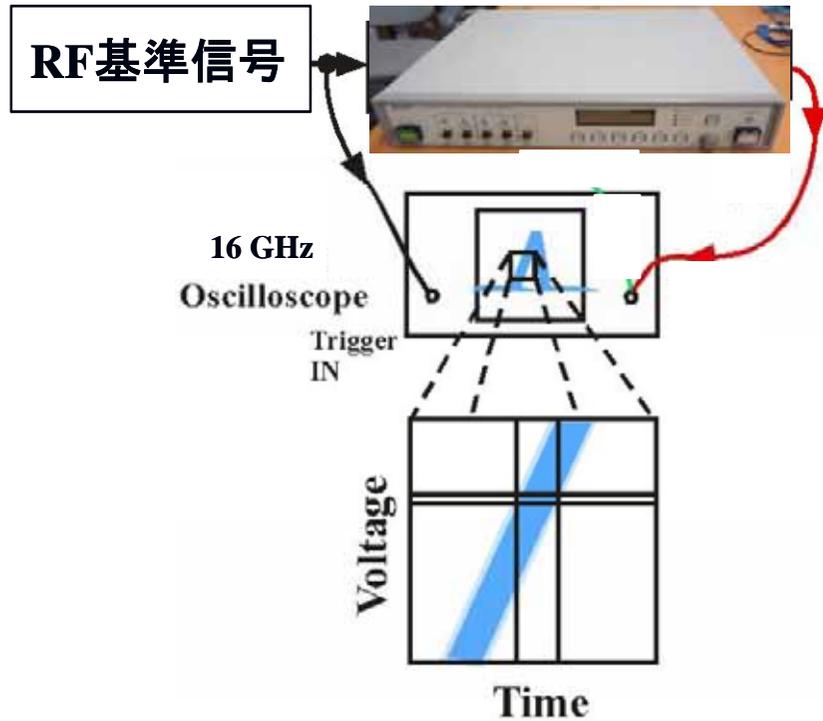
537.99 ± 0.01 ns

806.97 ± 0.01 ns

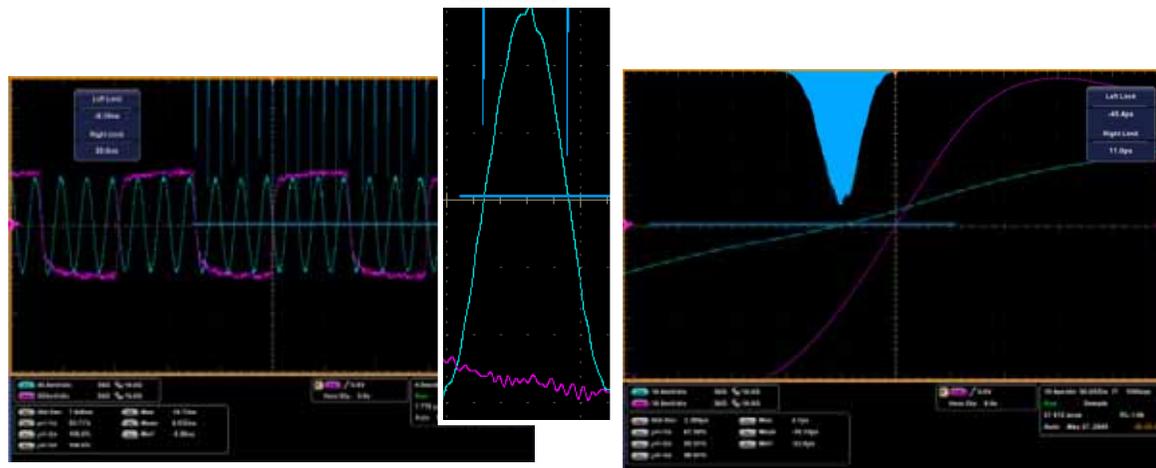
➡ 高精度音速測定の実験

Y. Fukuyama *et al.* : Rev. Sci. Instrum.
79, 045107 (2008)

RF信号遅延器の精度評価と動作の実際



遅延器の動作の様子



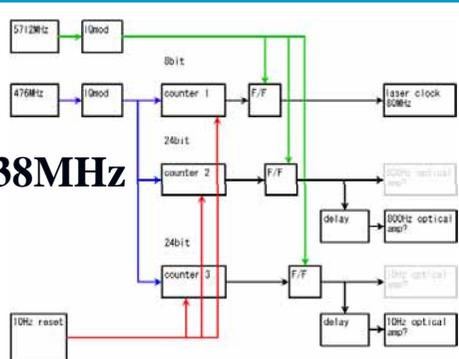
精度 約 3 ps

より高精度に...

サブピコ秒RF信号遅延器

- ・高周波信号の低ジッター性能の利用
- ・遅いドリフトはフィードバックにより補償

5712MHz



238MHz

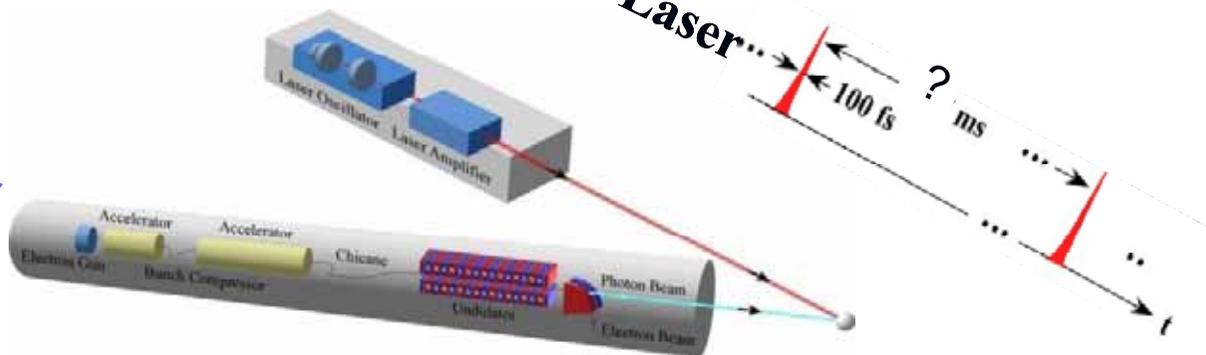


高精度サブピコ秒 RF信号遅延器

特許：高精度トリガ遅延装置、その使用方法
 特願2006-183736, 2008年, 大島、田中

サブピコ秒 時間同期

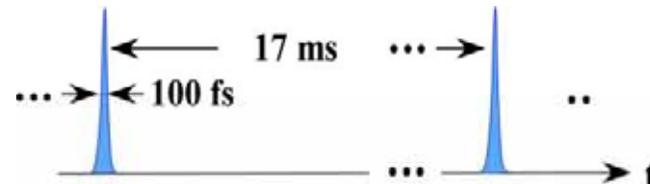
Mode-Locked Femtosecond Laser



SASE FEL

100 fs

60 Hz (FEL)



2.3 繰り返し測定法

高繰り返し → データ精度向上(精密測定の世界へ)

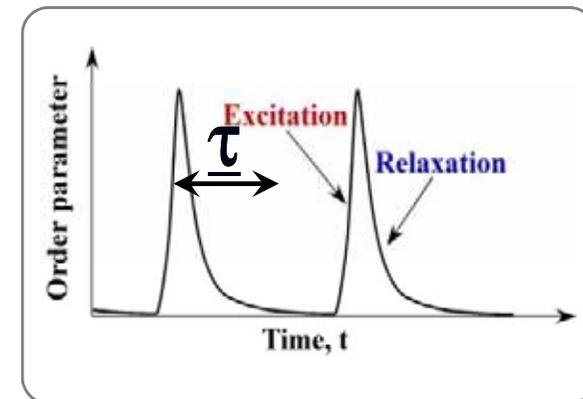
(A) 放射光光源、パルスレーザーの繰り返し能力

	Average brilliance	Peak brilliance	Repetition rate (Hz)
ERL	$\sim 10^{23}$	$\sim 10^{26}$	1.3 G
XFEL -O	$\sim 10^{27}$	$\sim 10^{33}$	1 M

!

(B) 対象の物質の回復時間に依存

$$1/f_{\text{rep}} > \tau$$



(A) X線マイクロビームを用いた高繰り返し測定 —高繰り返し光源性能を最大限に活用する—

低エミッタンス光源を生かしたX線マイクロビーム。

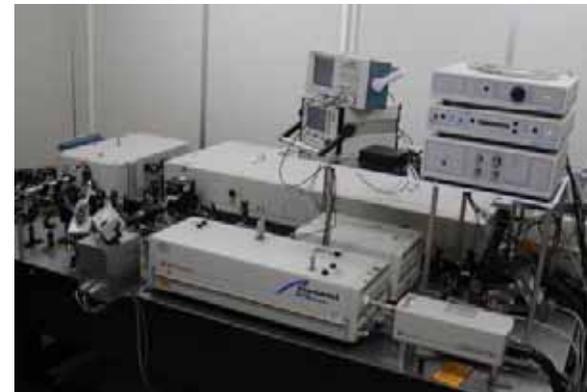


レーザー集光による、パワー密度の5桁向上。

波長800 nm、NA-1の場合、数 μm

オシレーターで励起

MHz- GHzの繰り返しが可能

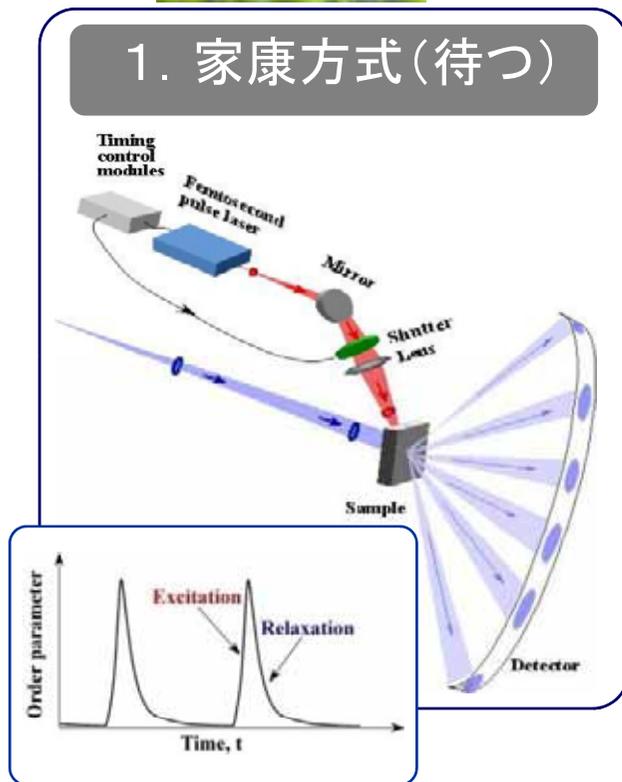


(B)対象の物質の回復時間に依存



方法1： 鳴かぬなら、鳴くまで待とうホトギス。(家康)
 方法2： 鳴かぬなら、殺してしまえホトギス。(信長)
 方法3： 鳴かぬなら、鳴かせて見せようホトギス。(秀吉)

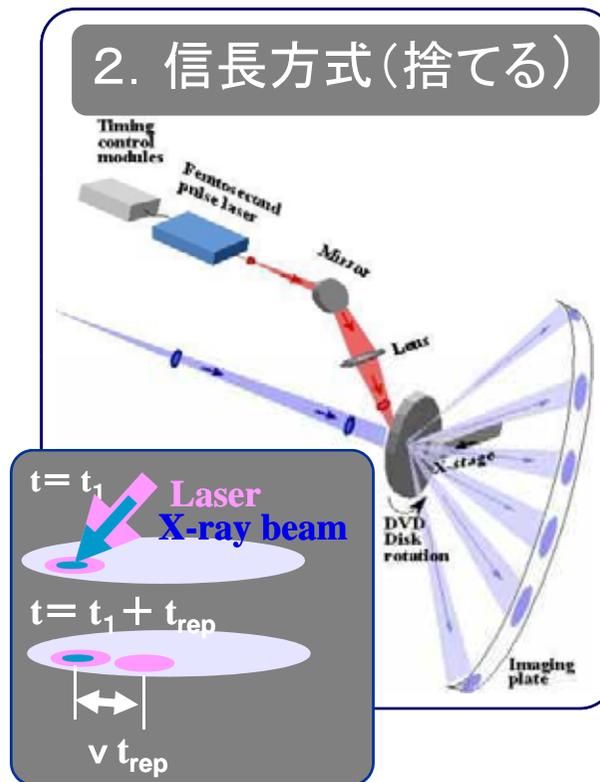
1. 家康方式(待つ)



遅い緩和---繰り返し回数を稼げない
 (不可逆過程では無効)

半導体単結晶

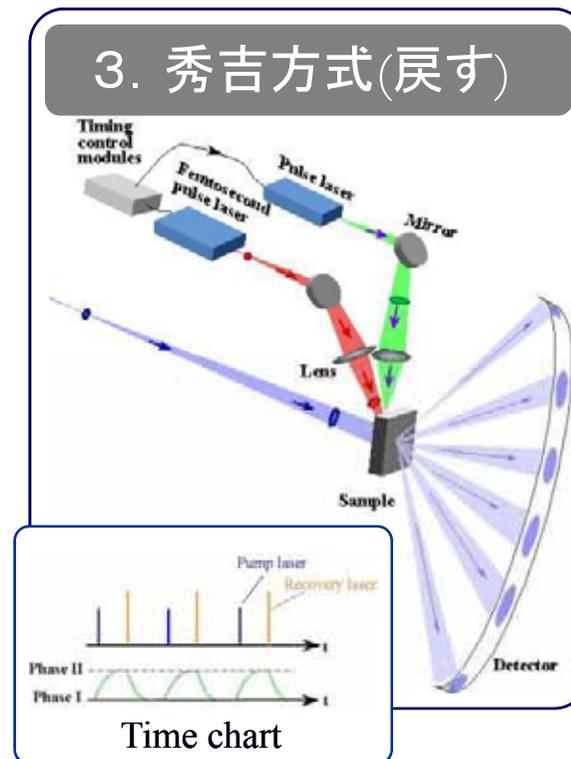
2. 信長方式(捨てる)



均一な性質の試料が大量に必要

DVD相変化記録ディスク

3. 秀吉方式(戻す)



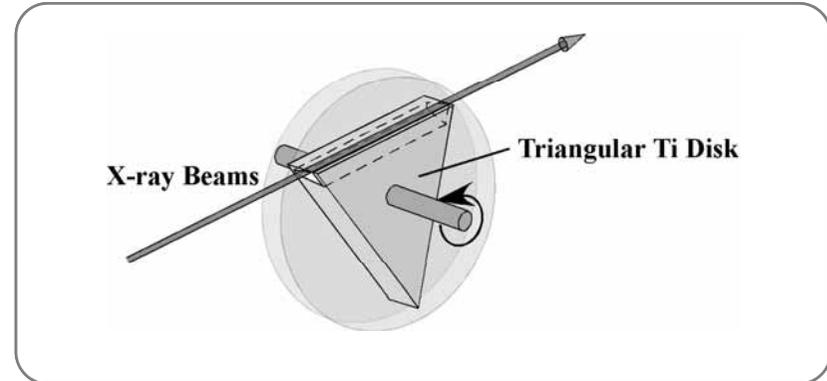
強制的に外場で初期状態にもどす
 (反応経路の異なる可逆反応)

フォトクロミック有機結晶

待つ。。。。。

(i) Pulse selection by mechanical chopper

Gate > 400 ns



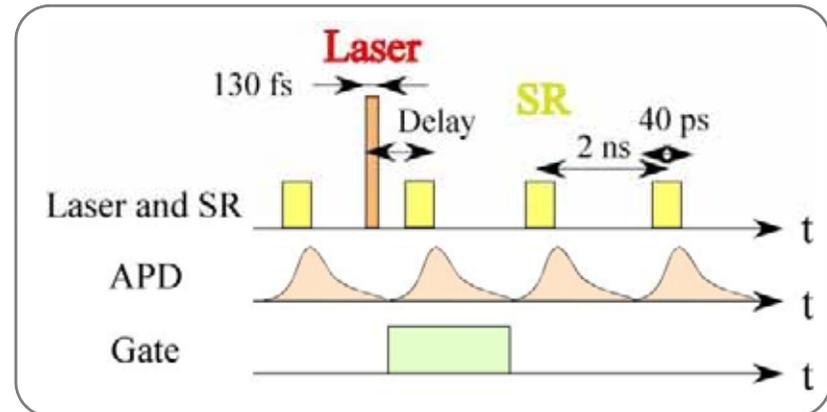
(ii) By electronic gate

- Avalanche photodiode

Gate > 5 ns

- Gated CCD camera

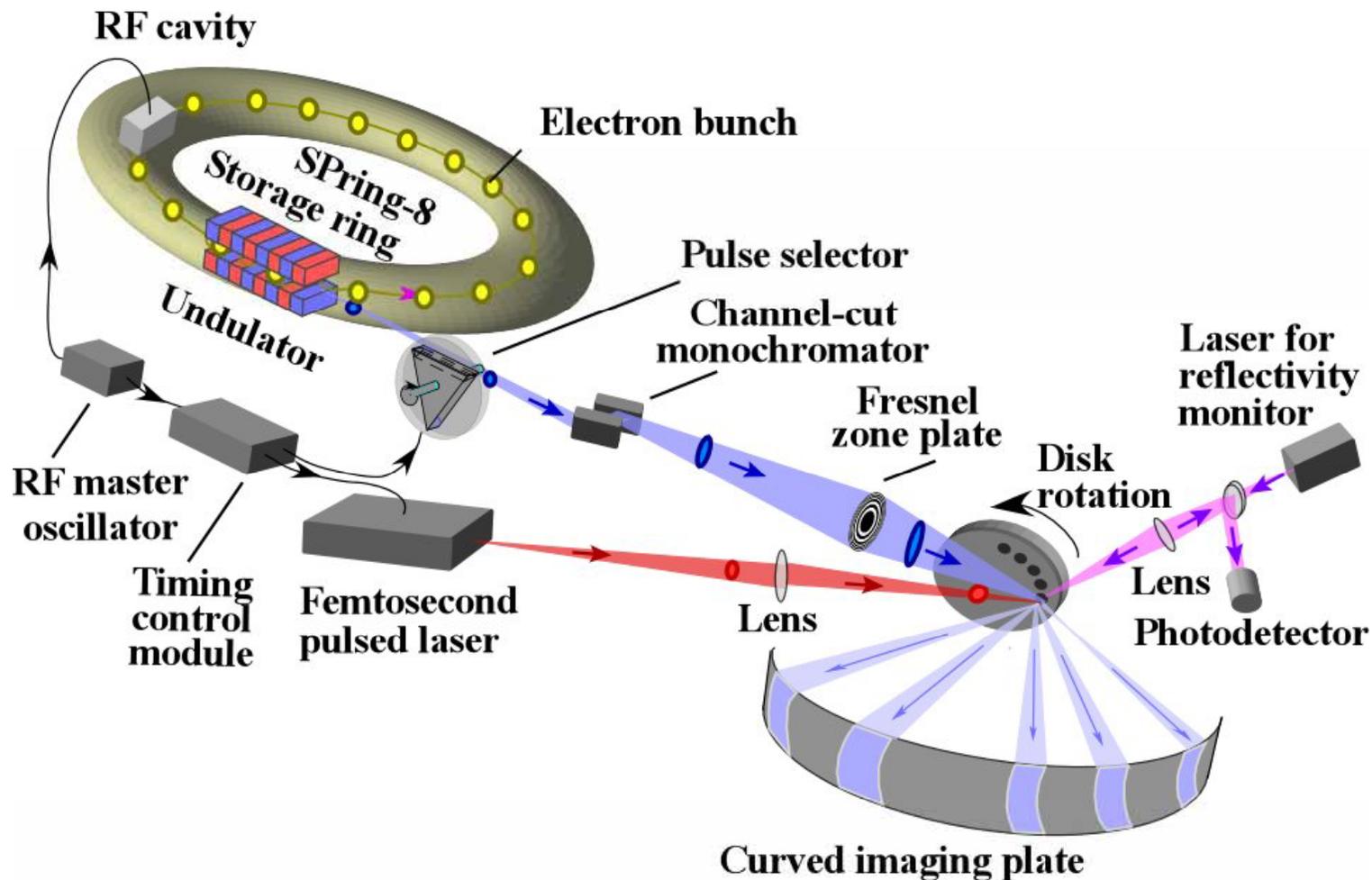
Gate > 20 ns



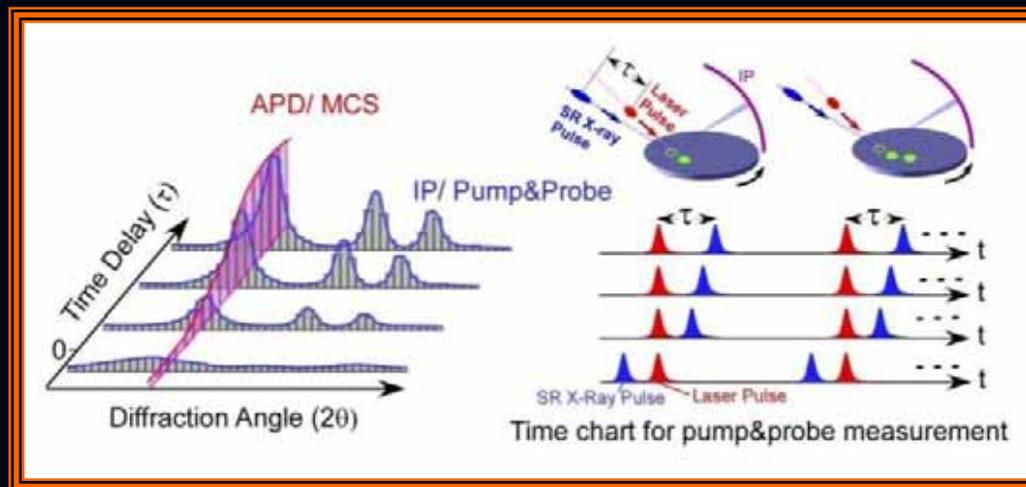
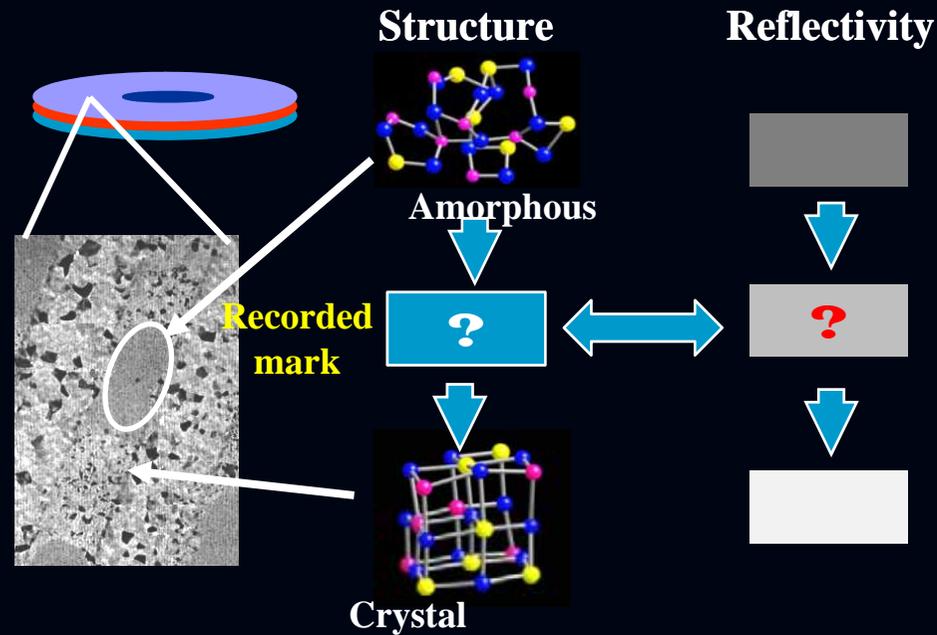
**1.3 GHz の場合は、700 psのゲートが必要
(もったいないが、やや間引く?)**

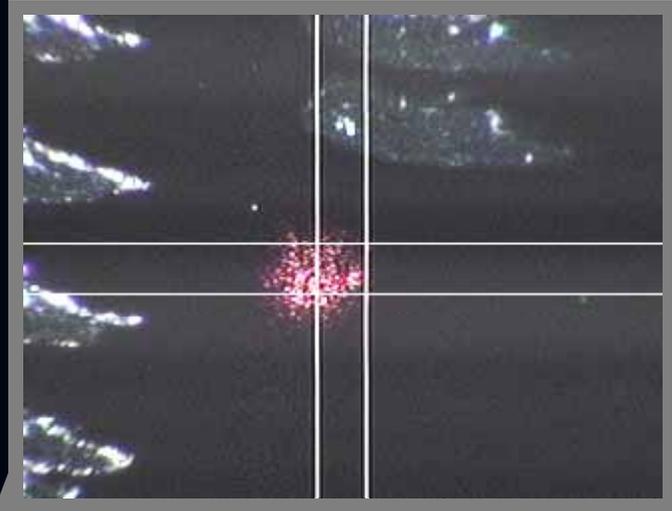
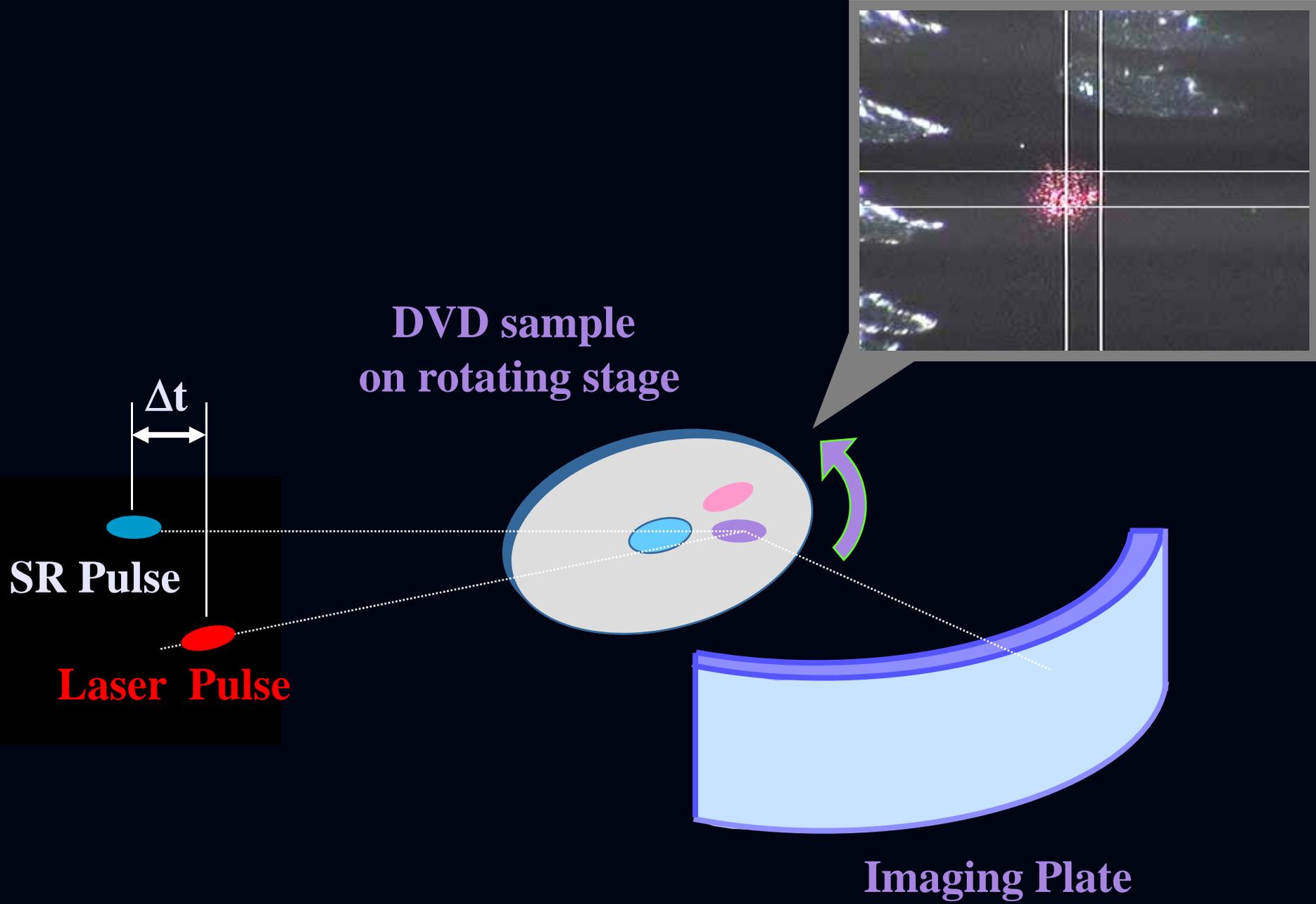
捨てる。。。。。。 高繰り返し測定(マイクロビーム+時分割測定)

CREST「反応現象のX線ピンポイント構造計測」(H16-H21)

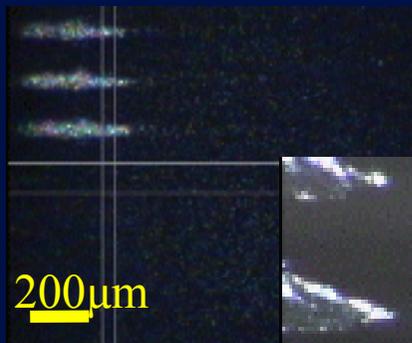
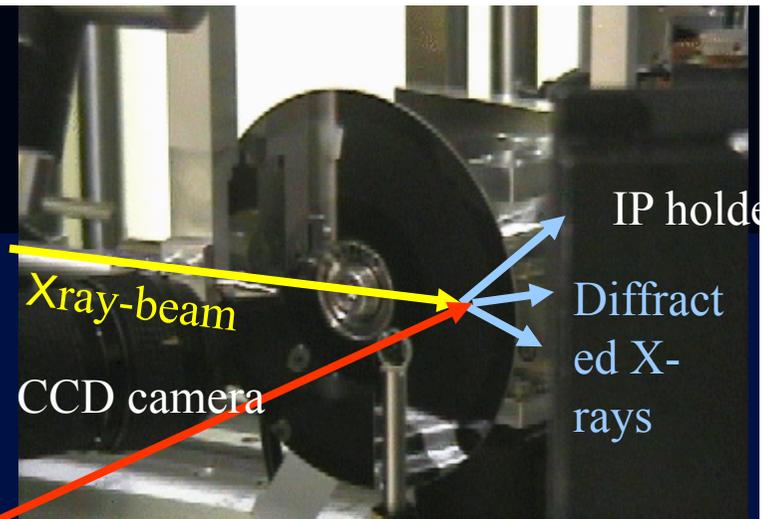


DVD材料におけるアモルファス-結晶相変化の測定例





高繰り返しへ



Nov. 2006
Repetition rate 1Hz



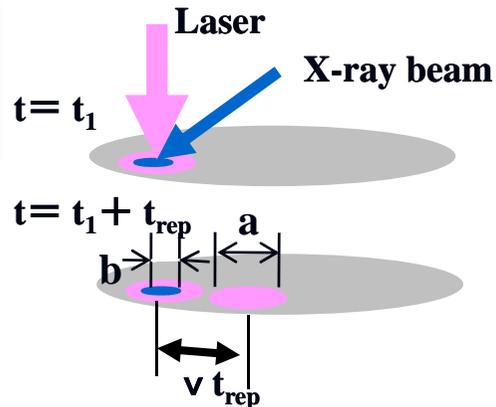
April 2007
Repetition rate 5Hz

April 2008
Repetition rate 1 kHz
Using X-ray microbeam



高繰り返し測定(マイクロビーム+時分割測定)

回転試料台の移動速度



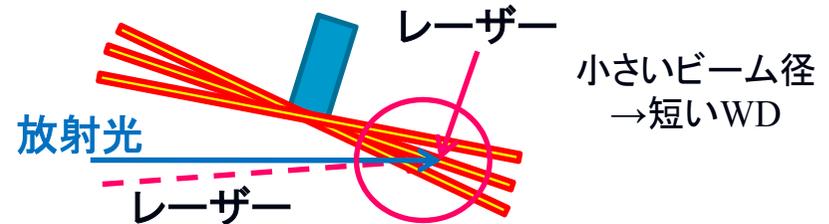
$$a/v < t_{rep}$$

$$a > b$$

繰り返し周期 $t_{rep}(s)$
 移動速度 $v(m/s)$
 レーザースポット径 $a(m)$
 X線スポット径 $b(m)$

5桁

回転試料台の面ブレ



非平行配置の場合
 空間アライメント精度 ΔR が律則

$$\Delta R > \Delta x / \tan \theta$$

Δx : 試料台変位、 θ : 入射角

繰り返し周期 t_{rep}	移動速度 v	レーザー スポット径 a	X線 スポット径 b	ショット数 (DVD一枚あたり)	測定時間 (DVD一枚あたり)
1 Hz	1 mm/s	300 μm	100 μm	30000	10時間
5 Hz	5 mm/s	300 μm	100 μm	30000	1時間30分
1 kHz	50 mm/s	30 μm	3 μm	1800000	30分

➡ MHzへ

3. まとめと展望

- ・ERLを用いたフェムト秒から広い時間領域のダイナミクス研究に期待。
- ・フェムト秒光源を用いた時間分解要素技術開発項目
 - (1) レーザー・放射光の高精度同期
 - (2) 遅延時間の高精度制御
 - (3) 高繰り返し測定法
- ・高繰り返しSRは、レーザー「励起状態」の精密構造測定に有利
- ・「XFEL-O励起」ーフェムト秒レーザープローブ実験にも期待
(X線励起状態の光物性研究)

なにがなんでも同期をとろう！