

## ■ 会議報告

# X-ray Diffraction Limit Workshop Series Workshop 3—Ultra-fast Science with “Tickle and Probe” 報告

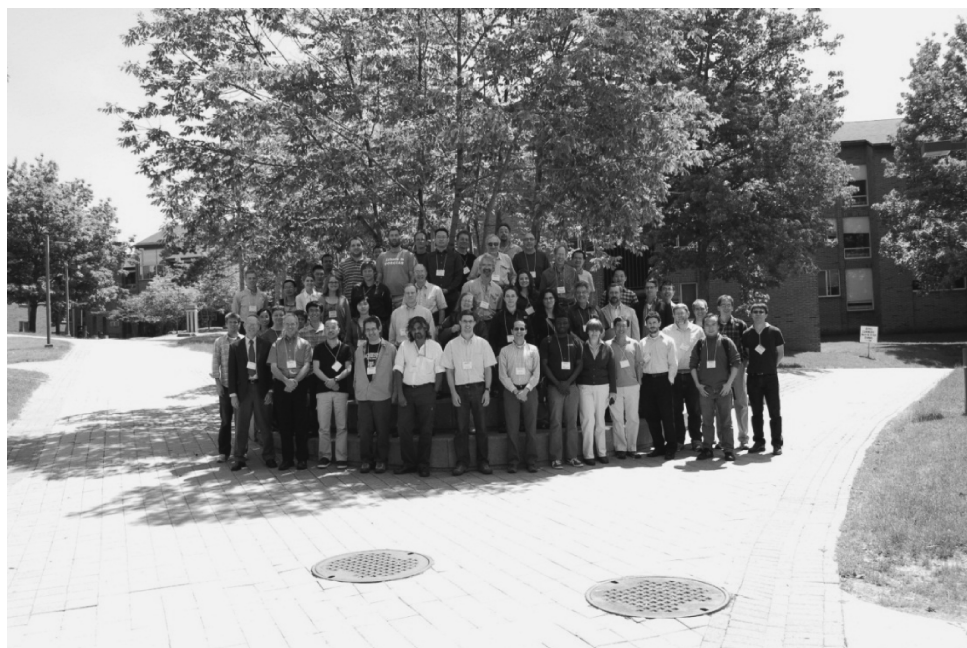
足立伸一 (KEK-PF)

2011年6月に、米国コーネル大学（ニューヨーク州イサカ）において開催されたXDL2011の6回のワークショップシリーズのうち、筆者は2011年6月20、21日に開催されたWS3 Ultra-fast Science with “Tickle and Probe”に参加したので報告する。参加者は約50名で、全13件の講演があり、米国内から10件、ヨーロッパから2件、日本から1件であった。

WS3のタイトルには“Tickle and Probe”という耳慣れない用語が入っている。まず主催者がこの用語を用いた意図について、ワークショップの趣旨に絡めて説明する。近年、放射光のパルス性を利用した時間分解測定は、ピコ秒からフェムト秒領域に拡大しつつある。従来の第3世代放射光源においても、バンチスライス法により、フェムト秒放射光を発生し利用する実験が行われてきたが、パルスあたりのフォトン数が極めて限定的であるために、主には典型的な試料のデモンストレーション実験に限られていた。しかし、SASE-XFEL光源が稼働を開始し、ERL建設が視野に入ってきた現在、リニアックベースの光源が実現する10–100フェムト秒の超短パルスX線を利用した超高速パルス測定手法は、様々なサイエンスに適用されつつ

ある。

パルス光源として見たときのSASE-XFEL光源とERL光源の現状での大きな違いは、パルスの繰り返し周波数と1パルスあたりのフォトン数である。常伝導加速を用いるSASE-XFEL（LCLSやSACLAなど）の場合、その繰り返し周波数は60–120 Hzであるのに対し、超伝導加速を用いるERLでは1.3 GHzの繰り返し周波数が想定されている。一方、SASE-XFELではSASE方式のレーザー増幅機構により1パルスあたり $10^{12}$ フォトン程度の光子数が放射されるのに対し、ERLでは従来の放射光と同様な自発光であるため、1パルスあたり $10^6$ フォトン程度である。ちなみに、これに繰り返し周波数を掛けた単位時間当たりの平均フォトン数は、どちらも $10^{15}$ フォトン/秒程度である。このような仕様の違いから、SASE-XFELでは単一もしくは少数のパルスで測定が完了するような実験例が想定されているのに対して、ERLでは試料に小さな摂動を加え、その微小な変化を繰り返し積算して測定精度を向上させるような実験例が想定されている。後者の実験手法は従来、“Pump and Probe”と呼ばれているが、このWS3では小さな摂動というニュアンスをより強調するた



WS3 集合写真

めに、“Tickle and Probe” (Tickleはくすぐるの意) というタイトルになっている。WS3では、試料非破壊の条件で、高繰り返し光源利用が本質的に重要な時間分解測定手法と測定試料例について議論することを趣旨としている。主催者からは、現在までに行われた測定について紹介するだけでなく、現在は極めて実行困難であっても、将来的に実行可能になれば画期的な測定について話題提供することを強く要望されていた。このリクエストは他のワークショップでも同様であったようである。

当然ながら、超短パルス測定では一義的にはパルス幅が短いことが最も重要であり、フェムト秒パルス光源が得られれば、実際には60–120 Hzと繰り返し周波数の低いSASE-XFELであってもフェムト秒オーダーのポンプ・プローブ実験が進行しつつある。一方で、従来の蓄積リング光源はMHzオーダーの高繰り返し光源であり、MHzパルスレーザーと蓄積リングを同期させた時間分解測定についても報告され注目を集めていた。

最初に、Chi-Chang Kao (SLAC) と Don Bilderback (Cornell Univ.) がWS3のイントロダクション的な講演を行った。続いて、Aaron Lindenberg (SLAC) が、これまでにLCLSを利用して行った強誘電体のフェムト秒時間分解X線回折測定、SSRLのlow- $\alpha$ モードを利用したイオン性液体のピコ秒時間分解溶液散乱測定について報告し、LCLSの最終ビームダンプ部から得られるコヒーレントテラヘルツ光を利用したフェムト秒時間分解測定の将来的な可能性について言及した。続いて、物理化学研究の立場から、Edward Castner (Rutgers Univ.) が、イオン性液体のダイナミクス研究に対して、時間分解XAFS、溶液散乱、非弾性散乱を適用する提案を行った。またRoseanne Sension (Univ. of Michigan) は、超短パルスレーザーを用いた溶液中の分子の超高速分光とコヒーレント制御の現状について報告し、将来的にX線をプローブ光として利用した場合の可能性について言及した。

初日の昼食をはさんで午後のセッションでは、Bob Schoenlein (LBNL) が、ALSにおけるフェムト秒バンチスライシングビームラインの利用研究の現状について報告するとともに、現在LBNLで概念設計を進めているNext Generation Light Source (NGLS) 計画について紹介し、超伝導加速による高繰り返し軟X線FELが拓くサイエンスについて話題提供した。NGLSは、SeedingもしくはEEHG (Echo-Enabled Harmonic Generation) によりフリー限界のフェムト秒～アト秒軟X線パルスを発生させるという、これまでにない斬新なコンセプトで設計が進められており、その実現が大いに注目されている。David Reis (SLAC) は、LCLSの前身であるSub-Picosecond Pulse Source (SSPS) のフェムト秒X線を利用し、超短パルスレーザー励起によるビスマスのコヒーレントフォノンの発生と励起強度に依存した振動モードのソフトニングを測定した例について紹介した。この測定の発展形として、

$k=0$ のコヒーレントフォノンだけでなく、より広い $k$ 空間において原子の平衡位置からのずれの時間発展を測定するために、フェムト秒オーダーの時間分解散漫散乱測定を提案した。散漫散乱信号の強度は極めて微小であるため、高繰り返し積算による測定精度の向上が必須であることをコメントし、午後のセッションを終了した。その後、コーネル大学内の放射光施設であるCHESSおよびERL開発プロジェクトの状況を見学したのちに、CHESS協のスペースで、バーベキューディナーとなり、初日の全プログラムを終了した。

2日目は、まず初日の議論のポイントを全員で確認したのちに、講演が始まった。Lin Chen (Northeastern Univ.) は、APSを利用して、溶液条件での時間分解XAFS測定を行っており、これまでに行ったCu, Ru等の金属錯体の測定例を紹介した。また今後、太陽電池材料や光触媒の高効率化に向けた光誘起ダイナミクスの検討を系統的に行うために、高繰り返しフェムト秒X線光源が必須であることをコメントした。Anne Marie March (APS) は、APSの原子分子ビームラインのスタッフであり、MHzオーダーの繰り返しのパルスレーザーを用いた蓄積リングベースの測定例について紹介した。Carol Thompson (North Illinois Univ.) は、電場誘起の強誘電体材料の構造ダイナミクス研究例について紹介し、将来の高繰り返し電場誘起X線測定の可能性について言及した。Simone Techert (MPI Goettingen) は、FLASH, ESRF, LCLS等を用いて、時間分解分光測定および時間分解結晶構造解析を試みており、SASE-XFEL光源で微小な過渡的信号を抽出する上での現状の問題点を指摘した。

2日目午後は、最初にChristian Bressler (European XFEL GmbH) が講演を行った。彼は溶液条件の金属錯体の光反応の時間分解X線分光を主な対象としており、Swiss Light SourceのバンチスライスビームラインとLCLSを用いたフェムト秒時間分解XAFSの測定例、およびESRFとAPSのMHz繰り返し放射光とMHzレーザーを組み合わせたピコ秒時間分解XAFSの測定例について幅広く紹介した。従来のkHzレーザーを用いた蓄積リングベースの測定では、もともとMHzオーダーの放射光パルスを1/1000程度に間引くために、単位時間当たりのX線フォトン数を1/1000程度に落としており、統計精度の高いデータを得るために非常に長時間の積算を必要とし、また1%以下の微小な差分信号を検出することが困難になる。そのため、例えばkHz繰り返しの時間分解X線分光測定法としては、これまで蛍光XAFSが唯一の成功例であった。しかし彼は、蓄積リングに同期可能なピコ秒MHzレーザーをESRFおよびAPSに導入することにより、時間分解蛍光XAFSだけでなく、時間分解発光分光や時間分解RIXSまでが可能になるという実験例を示した。放射光を間引かないので至極当然ではあるが、第3世代光源のアンジュレータビームラインで実行可能な実験

手法は、原理的にはほぼ同じ測定精度でピコ秒時間分解実験に適用できることを明瞭に示しており、正直目から鱗が落ち、大変ショックを受けた。高繰り返し“Tickle and Probe”測定の実力を如実に示しており、近日中に Rev. Sci. Instrum 誌に掲載されるとのことなので、ご興味のある方は、ぜひご覧いただきたい。ちなみに、MHz レーザーの1パルスあたりのエネルギー出力は kHz レーザーの約1/1000なので、レーザー、X線とも  $\mu\text{m}$  オーダーに絞って正確に同じ位置に合わせこむことがこの測定において本質的に重要である。

最後に筆者が、現在 PF-AR を利用して行っている kHz 繰り返しのピコ秒時間分解 X 線測定例について報告するとともに、将来の放射光測定の方角性として、フーリエ限界 X 線の実現と、フーリエ限界フェムト秒~アト秒 X 線パルスが可能とする放射光サイエンスの可能性について紹介した。線形加速器ベースの超低エミッタンス電子ビームに対して、X 線共振器や外部レーザーとの相互作用を適用することによりフーリエ限界 X 線の発生させる方法が近年いくつか提案されており、電子ビームへの摂動 (tickle) を高時間・空間精度で行うためには、高繰り返し周波数が本質的に重要であることをコメントした。セッションのまとめの質疑応答では、現状の“Tickle and Probe”測定装置をトータルに評価すると、その最適な繰り返し周波数は MHz オーダーであり、kHz は低すぎ GHz は高すぎるというコメントが出され、ほぼ参加者全体の共通認識になったと思われる。勿論最適な繰り返し周波数は試料の緩和時間に依存し、それを無視した測定系だけの議論は無意味であるが、種々の測定系の境界条件を考慮した現状での最適値と考えている。

全講演が終了したのちに、WS3 のサマリーレポートをまとめる作業に入り、全講演者にレポートの提出が求められた。晴れてレポートを提出したのち、バスで Treman Gorge Park に移動して、氷河に削られた見事な渓谷を散策し、2 日目のバーベキューディナーとなった。

ワークショップ全体を通じて、主催者であるコーネル大学のスタッフが、参加者との議論の時間を重視し、献身的にサイエンスの取りまとめに参加しているのが非常に印象的であった。(さすがに、1か月に6回ものワークショップが開催されると大変だと、ぼやいているスタッフもいたが。) プログラムを見ると、30分の講演時間の後に10分間の質疑応答時間があり、さらにセッションの最後に20分の Q&A の時間が取られている。講演を何度も中断して質

問が入り、受け答えしながら講演が進んでゆくというインフォーマルなスタイルでプログラムが構成されており、Gordon 会議に似た雰囲気を感じた。また、セッションの合間や食事、バーベキュー、渓谷散策など、全員が集っていて、しかもどこにも逃げることのできない自由時間がたっぷりととられており、講演では聞くことのできないインフォーマルで親密な議論が個人ベースでできるところも GRC に似ている。そこからは、ユーザーコミュニティを巻き込んで新しい光源でのサイエンスを取りまとめ、さらにブラッシュアップして、予算獲得につなげてゆこうとする主催者側の強い意志を感じることができた。

翻って日本国内の次世代リング型放射光源の実現に向けても、ユーザーコミュニティを巻き込んで、次の放射光サイエンスの議論を様々な関連研究分野で進めながら、斬新なアイデアに結実させてゆく作業の重要性を強く感じる良い機会となった。

ちなみに翌日の6月22日は、長年にわたって CHESS の所長を務められ、昨年12月に他界された Boris Batterman 先生の追悼講演会が開催された。Batterman 研の卒業生で、現在世界各地の放射光施設の Director クラスになられている錚々たる先生方が追悼講演会のために集合されていたが、筆者は残念ながら都合により参加することができなかった。追悼講演会前日に、コーネル大学の Sol Gruner や Don Bilderback, Ernie Fontes が Batterman 先生ゆかりの品々を楽しそうに展示されていたので、撮影させていただいた写真の一枚を最後にお出しして、拙文を終えさせていただく。



テーブルの上に並べられた Batterman 先生ゆかりの品々の一部