



加速器を使った X 線分子動 画撮影について

高エネルギー加速器研究機構 野澤俊介

光化学反応における高速な構造変化を可視化するため、現在、様々な実験的アプローチによる試みが行われています。その中で今回は、近年急速に発達してきた、放射光 X 線や X 線自由電子レーザー (XFEL) を用いた、X 線分子動画撮影技術について、加速器的な視点から解説していきたいと思います。

高エネ研の Photon Factory や理研・播磨の SPring-8 等で利用できる放射光は、電子蓄積リング中の電子の軌道が、磁場によって曲げられることで、円運動の接線方向に放出される電磁場です。蓄積リング内の電子は放射光発生によって失うエネルギーを加速空洞の高周波数電場から補っています。そのため、この加速空洞を特定の位相周りで通過する長さ数 cm 程度の電子の集団（電子バンチ）のみが蓄積リング内を安定に回り続けることができます。上述のように電子バンチが磁場によって加速運動すると、その空間的広がりに対応した時間幅を持つ電磁波（放射光パルス）が発生します。放射光パルスの時間的性質は高周波加速の周波数、蓄積リング中の電子ビームサイズ、電子バンチあたりに蓄積された電子数などの条件によって異なりますが、パルス時間幅は半値幅で概ね 50 から 100ps 程度です。この放射光の時間的性質を利用することにより、ピコ秒オーダーの動的構造研究が可能となります[1]。

一方で現在、播磨 (SACLA)、スタンフォード (LCLS)、ハンブルグ (EURO XFEL)、韓国 (PAL-XFEL) で稼働中の XFEL は、線形加速器と自己増幅自発放射 (SASE) の原理を用いています。まず、光電放出や電界電子放出を用いて電子銃から良質なパルス電子ビームを取り出し、その後、線形加速器によってほぼ光速に加速させ、長距離ア

ンジュレーターに入射させます。すると、アンジュレーターの中を蛇行する電子の動きはお互いに強い相関を持ち、各電子の出す光が干渉することで X 線領域の自由電子レーザーが SASE として発光します。放射光のリング型加速器とは異なり、XFEL では電子を蓄積させる必要が無いため、加速器内における進行方向の電子バンチ圧縮が容易となります。進行方向位置に相関したエネルギー変調を高周波電場によって付けることで線形加速器内においてバンチ圧縮が実現され、最終的には数ミクロン程度まで電子バンチは圧縮されます。したがって XFEL では 100fs 以下の動的物性研究を行うことが可能となります[2]。

観測する光励起状態が長寿命であれば連続 X 線と高速検出器を利用した時間分解 X 線測定は十分に実施可能ですが、その寿命が短くなるほど過渡的なシグナル量は減少するので、現実的にはマイクロ秒以下の時間スケールにおける構造変化の情報を得るためには、パルス X 線を用いたポンプ・プローブ法が必要となります。ご存知のように、ポンプ・プローブ法では、ポンプ光によって作り出した励起状態をプローブ光によって観測する手法であるため、ポンプ・レーザーとプローブ・X 線の遅延時間を変えながら測定を行うことで、励起状態の構造変化をストロボ撮影し、X 線分子動画として追跡することが可能となります。

近年、100fs 以下の時間領域においては赤外～紫外域で様々な試みが行われている一方、X 線領域においては未だ大きな未開の地が広がっています。先日、我々の研究グループでは、放射光と XFEL を相補的に利用することで共有結合の複雑な形成過程を X 線分子動画として可視化することに成功しました[3]。今後も、様々な光化学反応における分子構造変化の可視化が、X 線分子動画撮影法によって行われていくことが期待されます。

[1] *J. Am. Chem. Soc.*, **132**, 61 (2010).

[2] *Nature Photon.*, **6**, 540 (2012).

[3] *Nature*, **518**, 385 (2015).