

フェムト秒時間分解 MeV 電子顕微鏡の開発

大阪大学産業科学研究所

楊 金峰*, 成瀬 延康, 室岡 義栄†, 菅 晃一, 近藤 孝文,
谷村 克己, 吉田 陽一

The direct visualization of fundamental dynamic processes in matter occurring on femtosecond time scales over sub-nanometer (even atomic) spatial dimensions has long been a goal in science. In this paper, the development of a femtosecond time-resolved relativistic transmission electron microscopy (FsTEM) based on a photocathode radio-frequency (RF) gun is reported. The requirements and limitations of the beam parameters used in FsTEM are discussed. Finally, some demonstrations of relativistic ultrafast electron diffraction measurement using the RF gun are presented.

Keywords: time-resolved electron microscopy, ultrafast electron diffraction, femtosecond electron beam, photocathode RF gun, ultrafast dynamics

1 はじめに

物質における多くの高速物理・化学現象(例えば, 固体における構造相転移現象, 分子系における化学反応, 生体系における諸エネルギー変換・情報伝達などの高速現象)は, フェムト秒時間とナノメートル空間のスケールで進行している。これらの構造相転移現象, 化学反応, エネルギー変換・情報伝達機構を解明するに

は, その物質を構成する個々の原子・分子の運動, 変化途中の種々の中間状態に関する詳細な知見が必要である。

物質の高速物理化学変化の諸過程に関する情報は, 主として, フェムト秒超短パルスレーザーを利用した。可視・紫外・赤外領域における光学スペクトルの解析を通じて得られてきた。構造変化の知見を獲得する手法には, SPring-8を始めとする大型放射光施設から発生するピコ秒短パルス X 線を利用した時間分解 X 線回折法と, 加速器から生成されるフェムト秒短パルス電子ビームを利用した高速電子線回折法(Ultrafast Electron Diffraction, UED)¹⁻⁵⁾がある。しかし, フェムト秒レーザー光スペクトル解析法は, エネルギー状態の変化を観測する手法であり, 直接的に構造変化の知見を獲得することができない。高速の X 線や電子線回折法からは周期的格子情報(運動量空間情報)が獲得できるが, その情報は電子ビームを通過する試料の全領域で平均化されたものであり, 実時間・実空間における個々の原子の変位に関する直接的な知見を得ることが難しい。

これらの超高速で進行する構造変化を伴う諸過程を直接的かつ時間分解的に捕える事を可能にする実験手法は, 本稿の主題とする, フェムト秒時間分解電子顕微鏡法である。ここでは, まず, 従来の時間分解電子顕微鏡の開発の現状とその問題点を述べた後, 最近我々がフォトカソード高周波(Radio-Frequency, RF)電子銃を用いて開発しているフェムト秒時間分解 MeV 電子顕微鏡装置の概要と特徴を説明する。最後に研究が先行している, RF 電子銃を用いた MeV 電子線回折の研究例を紹介する。

Femtosecond time-resolved MeV electron microscopy
Jinfeng YANG*, Nobuyasu NARUSE, Yoshie MUROOKA†, Koichi KAN, Takafumi KONDOH, Katsumi TANIMURA and Yoichi YOSHIDA
(The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University),

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 8-1 大阪大学 産業科学研究所,

TEL: 06-6879-4285, FAX: 06-6879-4287,

E-mail: yang@sanken.osaka-u.ac.jp

† 現在 (独) 理化学研究所単量子操作研究グループ

2 時間分解電子顕微鏡開発の現状

物質の構造に対する直接的な知見を獲得する代表的な手法は、言うまでもなく電子顕微鏡である。電子顕微鏡は、原子レベルでの構造決定を可能にし、沢山の重要な発見を成し遂げ、科学の新しい領域を切り拓いてきた。これに時間分解機能を付加した時間分解電子顕微鏡は、高速で進行するナノスケールでの構造変化を時間分解で直接的に追跡できることから、広い学問分野で大きな注目を集めている。従来の時間分解電子顕微鏡測定法は、定常の電子顕微鏡と高速カメラを組み合わせる構造変化ダイナミクスの知見を獲得する測定手法である。今まで核生成や結晶成長などのダイナミクス研究に利用されている。しかし、カメラのシャッター速度と、シャッターが開いている間に CCD 素子に捕捉される電子数が非常に少ないため、時間分解能は 1 ms 程度まで至っていない状況である。

原子レベルでの構造解析とマクロ秒以下の高時間分解能を両立させたのは、米国 Lawrence Livermore National Laboratory で開発された新しい時間分解電子顕微鏡 (Dynamic transmission electron microscopy, DTEM)^{6,7)} である。DTEM では、従来の電子顕微鏡の熱電子銃やフィールドエミッション (FE) 電子銃の代わりに、フォトカソード直流加速電子銃 (DC 電子銃) を用いた。これらの研究に用いられている電子ビーム源は、ナノ秒紫外レーザーパルス照射によってカソードから発生する光電子パルスを、直流電場を用いて 30 keV–100 keV に加速するナノ秒パルス電子ビームである。パルス当たりの電子数は 10^7 – 10^8 であった。これらの電子線パルスを用いた単一パルス (single-shot) 測定法により、時空間分解能はそれぞれ 10 ns および 10 nm に到達しており、ナノ秒時間領域での構造変化やダイナミクスの解明が可能となっている。しかし、実験室規模の DC 電子銃では、加速電場は 10 MV/m までに制限され、得られる電子のエネルギーは数十から 100 keV 程度である。この制限は、次の二つの問題を原理的に生み出してしまふ。

第一は、空間電荷効果による電子線パルス幅とエネルギー分散の増大である。このエネルギー領域では、電子線パルス内での空間電荷効果が極めて大きくなり、単一パルス内に含まれる電子数を 10^4 以下にしない限り、ピコ秒またはフェムト秒の電子線パルスの発生が難しい。この電子数では single-shot の測定ができず、非可逆的相転移現象にも適用できない。パルス当たりの電子数を増やすとピコ秒以下の高時間分解能の

実現が困難になる。高時間分解を得るために、米国の California 工科大学のグループ⁸⁾ は、フェムト秒レーザーパルス励起による MHz 高繰返しシングル電子パルス (パルス当たり 1 個または数個の電子) を発生し、ストロボスコープ法を利用した時間分解電子顕微鏡を提案してきた。この測定法では、ピコ秒またはサブピコ秒の時間分解能を実現したが、レーザー位置やサイズなどの安定性の制限で空間分解能は μm まで至っていない状況である。第二は、測定モードの限界である。電子のエネルギーは低いため、物質内への侵入が表面から数十 nm に限定される。通常の試料に対しては、反射型の回折測定配置を採用せざるを得なくなり、将来的に展開されるべき物質内部の透過原子像イメージング達成への大きな障害になる。

最近、これらの問題を克服するために、RF 電子銃を利用した UED の測定法^{9–15)} が開発されてきた。我々の UED 研究では、RF 電子銃から発生する 1 MeV–3 MeV の相対論的なエネルギー領域でのフェムト秒短パルス電子ビームを利用して、single-shot の測定や透過モードで 100 fs という超高時間分解能を実現し、フェムト秒時間領域での光誘起相転移の追跡が可能となった^{12–15)}。

ここで、我々はフォトカソード RF 電子銃技術とフェムト秒電子線パルス発生を経験を活かして、未だ世界的に実現されていない、フェムト秒時間分解能を有する MeV 超高压透過型電子顕微鏡 (FsTEM) の建設に装置開発目標を置いた。本研究では、時間的には 1 ps 以下、空間的には 10 nm 以下とする時空間分解能を両立させ、超高压電子顕微鏡を小型化することが、最大の達成目標である。

3 フェムト秒時間分解 MeV 電子顕微鏡装置

図 1 に、我々が開発したフェムト秒時間分解・MeV 電子顕微鏡実証機の写真を示す。本装置は、

1. 相対論的エネルギー領域での低エミッタンス (平行度が高い)・フェムト秒短パルス電子ビームを発生する高精度レーザーフォトカソード RF 電子銃、
2. フェムト秒電子ビームの入射および制御を行う電子レンズ系と、電子顕微鏡イメージ像を高精度で結像可能にする電子レンズを含む結像部 (MeV 電子ビームイメージ光学系)
3. 微弱な MeV 電子ビーム透過像を高感度で測定する検出部
4. フェムト秒電子線パルス発生と試料励起のため

のフェムト秒レーザー

から構成されている。各装置は、企業の市販品ではなく、関連研究者の経験と知恵・努力を結集して独自に開発を続け、完成させたものである。以下、各装置の特徴と性能について紹介する。

3.1 フェムト秒 RF 電子銃

3.1.1 フォトカソード RF 電子銃の特徴と現状

フォトカソード RF 電子銃は、究極の短波長・高干渉性を持つ光を目指す X 線自由電子レーザーや高エネルギー物理における新発見を目指す次世代リニアコライダーなどの大型加速器を実現させるための電子源である。RF 電子銃の特徴として、第一は、空間電荷効果の低減である。高周波空洞内にフォトカソードを取り付け、レーザー励起により光電子を発生する。発生した光電子が広がらないうちに空洞内の 100 MV/m



図 1 フェムト秒時間分解・MeV 電子顕微鏡実証機の写真。

またはそれ以上の高電場で瞬時に相対論的運動エネルギーまで加速する。こうして、空間電荷効果によるエミッタンスとよばれる空間広がりの増大が抑えられ、パルス当たりの電荷量が高く、エミッタンスが小さい電子ビームを発生することが実現できる。第二は、短パルス電子ビームの発生である。RF 電子銃から発生する電子ビームの時間構造はレーザーの時間構造を反映するため、短パルスレーザーを利用すれば簡単に短パルスの電子ビームを得ることができるという利点もある。

本格的なフォトカソード RF 電子銃の研究開発は、1980 年代にスタートした。現在、フォトカソード RF 電子銃は、リニアコライダーや X 線自由電子レーザーなどの先端加速器分野だけではなく、レーザーコンプトン散乱や高速パルスラジオリシスなどのビーム応用分野にも幅広く利用されている^{1-3,16)}。今まで達成された性能を挙げると、以下ようになる。

1. 無酸素銅のカソードにピコ秒レーザーを照射する場合、そのレーザーの時間波形を整形することによりパルス内の空間電荷効果を極限に低減し、パルス当たりの電荷量が 1 nC の時、1.2 mm-mrad の低エミッタンスの電子ビームが実現されている¹⁷⁾。
2. レーザースポット径の制御によりカソードの熱エミッタンス(電荷量が 0 の時のエミッタンス)を改善する方法が確立された。カソードに照射するレーザーのスポット径を 0.2 mm 以下に集光することにより 0.1 mm-mrad の低熱エミッタンスを実現し、電子線回折や電子顕微鏡に適應する極低エミッタンスの電子ビームが発生することが明らかになってきた¹⁸⁻²⁰⁾。
3. さらに、最近では、カソードにフェムト秒のレーザー光パルス照射し、RF によるエネルギー広がりを抑え、電荷量が 1 pC、パルス幅が 100 fs、エネルギー分散が 5×10^{-4} の短パルス高品質電子ビームが発生可能であることがわかった¹³⁾。

3.1.2 必要な電子ビームパラメーター

時間分解電子顕微鏡に適應するフェムト秒短パルス RF 電子銃は、さらに高精度化する必要がある。まず、10 nm の空間分解能を得るために、 1000×1000 pixel の CCD カメラを利用する場合 (10 nm/pixel)、試料表面上の電子ビームの収束サイズは $10 \mu\text{m}$ となる。この

とき, 電子銃から発生する電子ビームの広がり²¹⁾は,

$$\Delta\theta \leq \frac{N_p \cdot \Delta X_{\text{MeV}}}{f_1} \quad (1)$$

となる. ここで, $N_p = 1000$ は水平または垂直方向の CCD のピクセル数, $\Delta x = 10 \text{ nm/pixel}$, f_1 は試料直前のコンデンサーレンズの焦点距離である. $f_1 = 100 \text{ mm}$ とすると, 10 nm の空間分解能を得るために, 電子銃から発生する電子ビームの広がり ($\Delta\theta$) は, 0.1 mrad 以下に抑える必要がある.

次に, 十分な S/N 比を得るために, イメージ測定スクリーン上での回折スポットのサイズとスポット間の距離の比を $1/5$ より小さくしなければならない. すなわち,

$$\Delta x \leq 5f_1 \left(\frac{M\lambda_e}{a} \right) \frac{\Delta a}{a} \quad (2)$$

ここで, Δx は電子銃から発生する電子ビームのサイズ, M は diffraction order, λ_e は電子の波長, a は Bragg plane spacing である. 一般的には, $a = 0.1 \text{ nm} - 0.2 \text{ nm}$, $\Delta a/a = 10\%$. 例えば, 電子ビームエネルギーが 1 MeV の場合 ($\lambda_e \sim 1 \text{ pm}$), $M = 1$, $\Delta x = 500 \mu\text{m}$ 以下となる. 実際には, 下記で述べるように, 熱エミッタンスを低減するためにカソードに照射するレーザーのビーム径が $\Delta x = 200 \mu\text{m}$ 以下に集光する必要がある. 式 (1) と合わせると, エネルギーが 2 MeV の電子ビームを利用して 10 nm の空間分解能を得るために, 電子銃から発生する電子ビームの規格化エミッタンスは,

$$\varepsilon_N = \gamma\beta \cdot \Delta x \Delta\theta \leq 0.1 \text{ mm-mrad} \quad (3)$$

以下に抑える必要がある.

電子ビームエネルギーの分散については, 試料に依存するが, 通常は 10^{-4} であれば, 測定可能と考えられる. また, 電子顕微鏡の必要なビーム強度 (パルス当たりの電子数) は, Rose の法則から計算できる. すなわち, イメージ計測には, 十分な解像度を得るために 1 ピクセル当たり約 100 個の電子の入射が必要である. $1000 \times 1000 \text{ pixel}$ の CCD カメラを利用する場合, single-shot の測定に必要なパルス当たりの電子数は $10^7 - 10^8$ ($1 \text{ pC} - 10 \text{ pC}$) である. この電子数は, 電子線回折の測定に必要な電子数の 100 倍となる.

3.1.3 高精度フェムト秒 RF 電子銃の開発

我々は, 上記で述べた諸電子ビームパラメーターを満たすため, 100 fs またはそれを切る極短パルス RF 電子銃の設計・開発を行った¹³⁾. 図 2 に, 高エネルギー加速器研究開発機構と共同研究で開発した最新型フェ

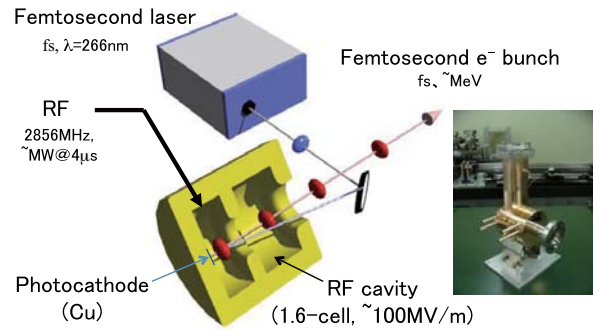


図 2 フェムト秒 RF 電子銃.

ムト秒短パルス RF 電子銃^{18,19)}を示す. 暗電流 (dark current) や, 加速する RF によるエミッタンスとエネルギー分散の増大を極限まで低減するために, 加速空洞の高性能化を目指して, 以下の 5 つの改良を行った.

1. 加速空洞の形状として, 従来の Brookhaven National Laboratory 型形状ではなく, 丸型空洞を採用した. これにより, 最も対称性が良い理想に近い RF 加速電場が実現でき, 加速空洞の Q 値は従来の BNL 型加速空洞の 1.6 倍まで向上した.
2. ハーフセルとフルセルにセル壁面を变形させる新型チューナーを取り付けた. これにより, フ

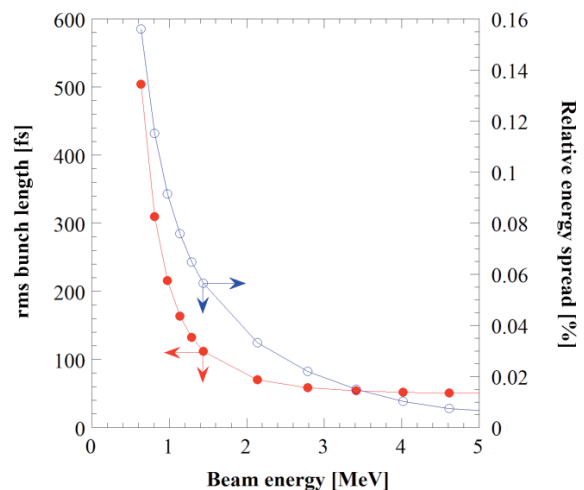


図 3 RF 電子銃から発生する電子ビームのパルス幅, エネルギー分散の電子エネルギー依存性のシミュレーション結果. レーザーのパルス幅は 100 fs であった.

ルセルとハーフセルの RF カップリングの調整を容易にして、加速電場分布のバランスがより高精度で得られるようにした。

3. 従来のハーフセルに設置されたレーザー入射ポートを取り外した。2. と合わせた 2 つの改良によりハーフセルとフルセル内の電場の軸対称性が改善され、電子ビーム品質の向上に期待できる。
4. ハーフセルとカソードプレートに金口ウ付けする構造を採用した。従来の RF 電子銃では、カソードプレートをハーフセルにヘリコフレックスで取り付けため、カソードプレートとハーフセルの間に隙間ができ、放電や暗電流発生の原因となった。金口ウ付けにより、この隙間がなくなり、RF 電子銃からの暗電流を測定限界 (0.1 pC 以下) まで低減することができた。
5. カソードプレートにカソードプラグの挿入機構を設け、フォトカソードの交換が可能になった。これにより、透過型カソードなどの新しいフォトカソードの研究開発にもつなげ、0.1 mm-mrad 以下の低エミッタンス電子ビームの発生に期待できる。

この加速空洞をピークパワー 1 MW–5 MW の RF で駆動した場合、電子ビームの加速エネルギーは 1 MeV–3 MeV であった。図 3 に、RF 電子銃から発生する電子ビームのパルス幅、エネルギー分散の電子エネルギー依存性のシミュレーション結果を示す。電子ビームの加速エネルギーが 1.5 MeV 以上であれば、空間電荷効果によるパルス幅とエネルギー分散の増大が解消でき、レーザーパルス幅とほぼ等しい短パルス電子ビームが発生できることが分かった。一方、電子ビームエネルギーが高すぎると、電子顕微鏡の電子レンズが大きくなり、装置が大型化になってしまう。最適な電子ビームエネルギー範囲は 2 MeV–3 MeV となる。表 1 に、RF 電子銃から発生する電子ビームパラメータの目標値を示す。

表 1 RF 電子銃から発生する電子ビームパラメータの目標値。

Electron energy	1 MeV–3 MeV
Bunch length	100 fs
Norm. emittance	0.1 mm-mrad
Energy spread	10^{-4} (10^{-5} for challenge)
Electron charge	10^6 – 10^8 e ⁻ /bunch (0.1 pC–10 pC)

本研究では、無酸素銅のカソードを利用し、光源として、フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーの 3 倍波 (266 nm, 時間幅 90 fs) を用いるが、電子ビーム特性の測定ではカソードにダメージを与えない為に、パルス幅を 200 fs まで伸ばした Ti:Sapphire レーザーの UV 光パルスを利用した。パルス当たりの電荷量を変えながら、発生した電子ビームのパルス幅や Transverse (横) と Longitudinal (縦) 方向のエミッタンスを測定し、空間電荷効果によるパルス幅およびエミッタンスの増大を定量的に評価した^{18–20)}。

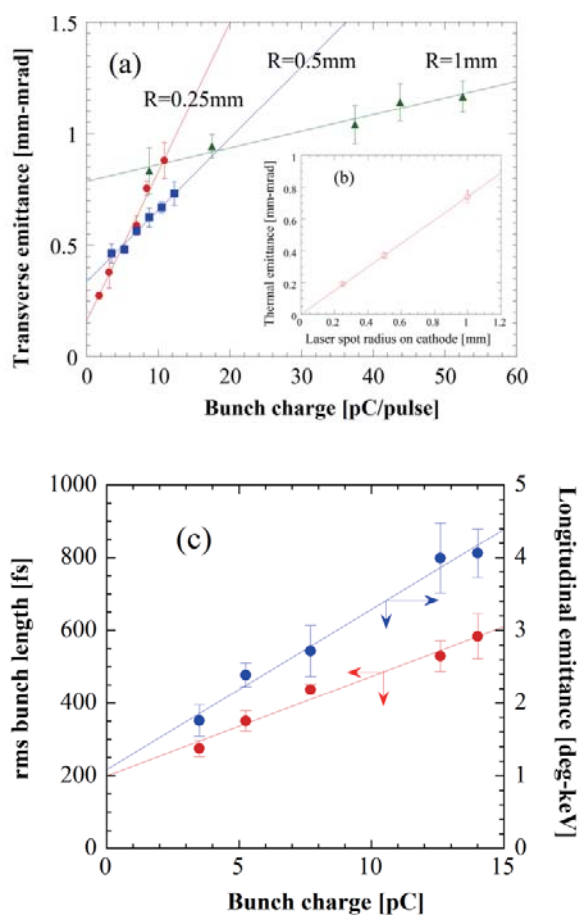


図 4 RF 電子銃から発生した電子ビームの横と縦方向エミッタンス、パルス幅の電荷量に対する依存性の測定結果。ここで、R は入射するレーザーのスポット半径を示す。

図 4 に、パルス幅、エミッタンスと電荷量の依存性を示す。空間電荷効果による電子ビーム横方向エミッタンスの増大は、パルス電荷量が 15 pC 以下では、1 pC 当たり 0.07 mm-mrad であった。低電荷量の時、カソードの熱エミッタンスに支配されている。ま

た, 熱エミッタンスは, カソードに照射するレーザースポット半径 (R) とカソードから発生した光電子の初期運動エネルギー (E_{kin}) の平方根に比例し,

$$\varepsilon_{th} = R \sqrt{\frac{E_{kin}}{m_0 c^2}} \quad (4)$$

となる. ここで, $m_0 c^2 = 0.511$ MeV は電子の静止質量エネルギーである. 図 4(b) に示す線形関係から, 無酸素銅カソードから発生した光電子の初期運動エネルギー $E_{kin} = 0.26$ eV となった. 従って, カソードでのレーザーのスポット半径が 0.1 mm 以下であれば, 設計目標の 0.1 mm-mrad の極低エミッタンスが得られることが分かった.

電子ビームのパルス幅と縦方向エミッタンスにおける空間電荷効果による増大は, 1 pC 当たりそれぞれ 27.4 fs と 0.22 deg-keV であった. RF 電子銃から発生した電子ビームのパルス幅と縦方向のエミッタンスはカソードに照射するレーザーのパルス幅により決められる. この測定では 200 fs のレーザー光パルスを用いたが, 実際の時間分解電子顕微鏡の測定では, カソードにパルス幅 90 fs の UV レーザーを使用する. また, 必要とされる電荷量は高々数 pC である. これらの現実的な条件のもとでは, より短パルス・低エミッタンスの電子ビーム (パルス幅 ~ 100 fs, 横方向エミッタンス 0.1 mm-rad) が得られている.

3.2 MeV 電子ビームイメージ光学系

電子ビーム光学系 (図 5 に示す) は, フェムト秒電子ビームの入射および制御を行う入射電子レンズ系と, 電子顕微鏡透過イメージ像を高精度で結像可能にする結像電子レンズ系から構成されている. 入射電子レンズ系は, 電子ビーム輸送中空間電荷効果によるエミッタンスの増大を補正するソレノイド磁気レンズ, 入射電子ビームを精密で制御するコンデンサ磁気レンズ (CL) 2 台とコンデンサ絞りから構成されている. 電子銃から発生したフェムト秒短パルス電子ビームは, ソレノイドレンズによりエミッタンスの増大を補正され, コンデンサ絞りによるコリメートされた後, CL によって厳密に制御されて試料に小さい収束角 $\Delta\theta$ で入射する. この収束角 $\Delta\theta$ は, 観測されるイメージ像のシャープさを決定する最大要因の一つであり, 典型的な透過型電子顕微鏡では $\Delta\theta = 0.3$ mrad-1 mrad になっている. この特性は, 発生した電子線パルスビームのエミッタンスと CL の特性の両者によって決定される. 我々のフォトカソード RF 電子銃を用いた MeV

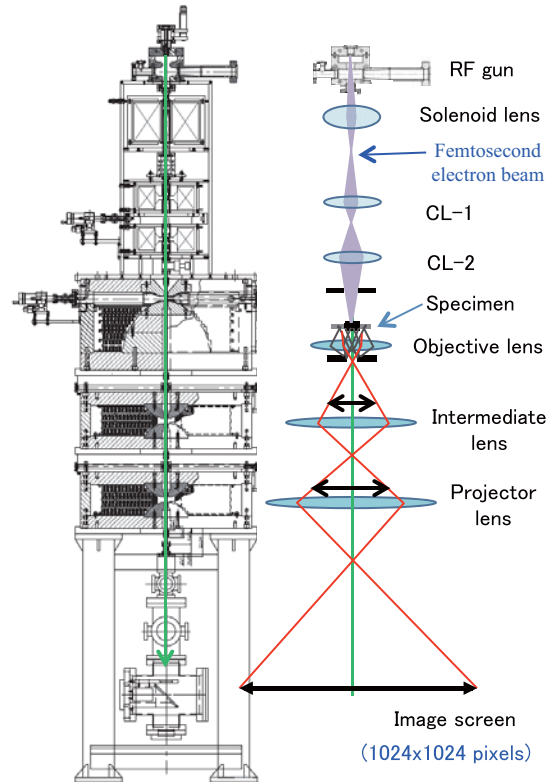


図 5 電子結像部と電子レンズ構成.

電子線回折の実験^{14,15)}では, $\Delta\theta = 0.05$ mrad に実現しており, 本開発目標である $\Delta\theta < 0.1$ mrad を達成する見込みである. 試料での目指すビームサイズは $10 \mu\text{m}$ である.

結像部には, 対物レンズ, 中間レンズと投影レンズの 3 つの強磁場磁気レンズを用いた. 球面収差, 色収差と非点収差を最小化するために, 磁極やヨークの形状を最適化しており, 電子レンズ系として十分な特性が実現されている. 図 6 に対物レンズの設計図, 特性と磁場分布のシミュレーション結果を示す. 対物磁気レンズでは, 上極と下極に非対称の構造を採用し, 最大起磁力が 44,000 A・ターンである. 磁極は, 鉄とコバルトを 1 対 1 の割合で混合した飽和磁束密度が高いパーメンジュール軟磁性材料を使用しており, 最大磁場強度 2.4 T の発生が可能である. 対物レンズの焦点距離は, 電子ビームエネルギーが 2 MeV の時, $f_o \leq 12$ mm である. 中間磁気レンズと投影磁気レンズの磁極では, それぞれに純鉄とパーメンジュール軟磁性材料を使用した. 表 2 に対物レンズ, 中間レンズと投影レンズの性能を示す. これにより, 本電子顕微鏡のイメージ像拡大倍率は 5,000 倍-75,000 倍となり,

本開発目標である 10 nm 分解能を十分に達成する見込みである。

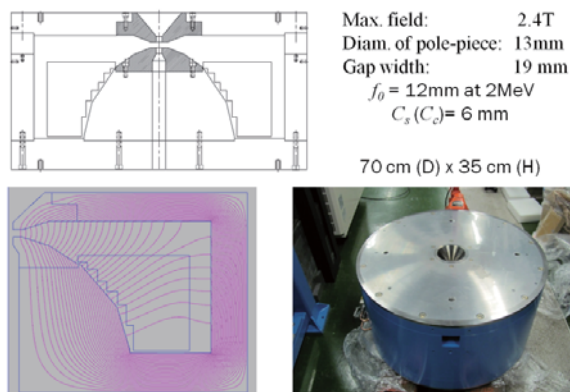


図 6 対物レンズと磁場分布のシミュレーション結果.

表 2 対物レンズ, 中間レンズと投影レンズの特性.

対物レンズ	
磁極材質	パーメンジュール
最大磁場強度	2.4 T
最大起磁力	44 kA・ターン
焦点距離	12 mm 以下
球面収差係数	6 mm 以下
色収差係数	6 mm 以下
中間レンズ	
磁極材質	純鉄
最大磁場強度	1.6 T
最大起磁力	30 kA・ターン
投影レンズ	
磁極材質	パーメンジュール
最大磁場強度	2.2 T
最大起磁力	40 kA・ターン

3.3 MeV 電子ビーム透過像検出器

超高速のイメージ測定には, 検出器そのものの時間分解能に依存しないが, 電子波の高感度検出は極めて重要である. 特に, 非可逆過程への測定を実現するためには, single shot でのイメージを測定する必要がある. それ以外にも, RF 電子銃開発の項で述べたように, 相対論的電子ビームに対しても空間電荷効果は,

パルス幅, エミッタンスおよびエネルギー分散に対して増大効果をもたらすため, 可能な限り少ない電子数での測定が望まれる. そこで, 我々が MeV 電子線回折測定に成功したパルスあたり少数の電子数でも測定可能な TI をドーブした CsI の柱状結晶化素子と浜松フォトニクス社製の Fiber Optic Plate を採用した^{14,15)}. 素子から発生した光は, 厚さが 5 μm のポリマー上でアルミニウム蒸着した 45 度の反射ミラーにより伝搬され, 最後に浜松フォトニクス社製の高解像度 CCD カメラ (ORCA-R2) を用いて測定される. これにより, 電子ビームを通過させ, 反射ミラーにおいて電子ビーム照射による X 線の発生を低減することができた. MeV 電子線回折の測定では, 検出系全体の検出感度として, 3×10^{-3} counts/electron を達成している. 最近, 高感度カメラ (EM-CCD) に置き換えることによって, 検出感度を 10 倍以上に増強し, 電子数 5×10^4 のパルスを用いて単結晶金における MeV 電子線回折の single-shot 測定に成功した.



図 7 フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーの構成.

3.4 フェムト秒励起レーザーシステム

フェムト秒電子線パルスの発生と試料の励起には, スペクトラフィジックス社製のフェムト秒 Ti:Sapphire レーザーを利用した. 図 7 に示すように, このレーザーはパルス幅 80 fs の Ti:Sapphire レーザー発振器 (Tsunami, 中心波長: 800 nm), パルスコンプレッサー内蔵型再生増幅器と波長変換器から構成されている. フェムト秒レーザー発振器は, スペクトラフィジックス社の time-to-lock 方式でピエゾ素子を用いて共振長を調整し, 常に電子ビーム加速用 2856 MHz の RF を

1/36 の周期に分周した周波数 79.3 MHz の RF と時間同期して 79.3 MHz の繰り返しでモードロック発振を行っている。これにより、レーザー発振器からの光パルスと電子ビーム加速用の RF との時間同期ジッターは、時間分解能の目標値である 100 fs が実現可能な 61 fs までに抑えることができた¹²⁾。レーザー発振器からの光パルスは、再生増幅器に導入され、パルス当たり 1 mJ まで増幅される。安定な出力を得るために、再生増幅器は高安定な繰り返し 1 kHz のグリーンレーザー (Empower, 波長: 532 nm, 出力: 10 W) により駆動されている。再生増幅器から出力された光パルス幅は 90 fs である。

RF 電子銃において光電子を発生するには、カソードの仕事関数より高いエネルギーを持つ光が必要である。そこで、再生増幅器から増幅されたフェムト秒光パルスは、非線形結晶 (SHG と THG) 2 個と時間ディレイ調整用のタイムプレートから構成された光波長変換器を用いて Ti:Sapphire レーザーの 3 倍高調波 (UV, 波長: 266 nm) に波長変換され、カソードに照射される。パルス幅の増大を抑えるために、厚さが 1 mm 以下の SHG と THG 非線形結晶を使用した。RF 電子銃は繰り返し 10 Hz のクライストロンから発生した RF により運転されるため、この 10 Hz と完全に同期した光チョッパーを導入し、1 kHz のフェムト秒 UV レーザーパルスに対応する 10 Hz のパルスのみがフォトカソードに照射した。これにより、フェムト秒時間精度を有するレーザー光と RF の同期が実現されている。カソード表面でのレーザービーム径は絞りによりコントロールされている。

以上、フェムト秒 RF 電子銃を用いた時間分解 MeV 電子顕微鏡装置を紹介した。本装置は、今年 7 月に建設されたものである。これから、イメージの測定や時間・空間分解能の評価を行い、結果次第、報告させて頂きたい。

4 フェムト秒時間分解 MeV 電子線回折の研究

以下、装置が完成しすでに実用段階に入っている、同じフェムト秒 RF 電子銃を用いた時間分解 MeV 電子線回折の測定例を紹介したい。データの詳細については引用文献 14 と 15 に参考して頂きたい。

第 3 節に述べたように、RF 電子銃は、空間電荷効果を克服し、100 fs もしくはその以下の超短パルス電子ビームを発生する。最近の UED 研究では RF 電子銃から発生するエネルギーが 1 MeV-3 MeV のフェムト秒短パルス電子ビームを利用して、single-shot の測

定や透過モードで 100 fs という超高時間分解能を実現し、フェムト秒時間領域での光誘起相転移の追跡が可能となった。

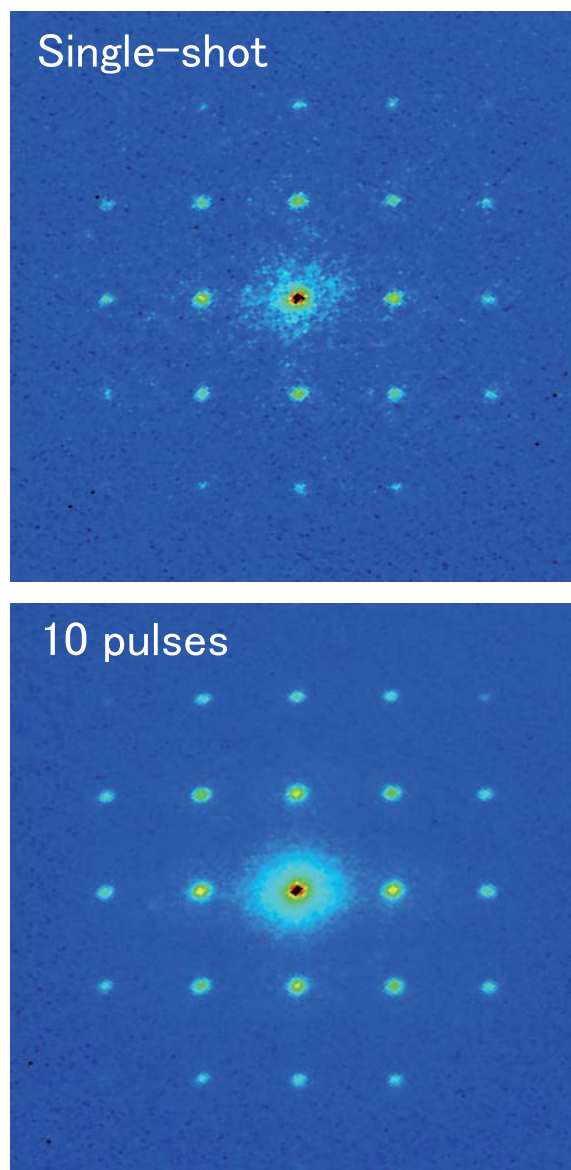


図 8 シングルショットと 20 パルス積算で得られた厚さ 20 nm の金単結晶の回折像。

図 8 に電子エネルギーが 3 MeV, パルスあたりの電子数が 5×10^4 個という測定条件における、シングルショットと 10 パルス積算で得られた厚さ 20 nm の金単結晶の回折像を示す。RF 電子銃からの dark current の影響が殆どなく、シングルショットの測定でも十分明瞭な回折パターンが得られていることが大きな成果である。これは、高精度の RF 電子銃と電子レンズ系

を使用した成果である。このように明瞭かつ広い運動量空間における情報がシングルショットで測定可能となったことは、今まで不可能であった非可逆過程に対する超高速原子ダイナミクスの研究を可能にするという極めて大きな意義がある。また、回折像の明瞭さは、電子ビームの単色性、エミッタンス等のビーム特性と共に、収束角、収差等の電子レンズ系の性能を含めた測定装置全体の特性によってきまる。図 8 に示した金単結晶回折像のゼロ次スポットのシャープさは、電子ビームの試料への収束角が小さく、電子ビームの横方向エミッタンスが小さい証拠となっている。ゼロ次以外の回折スポット幅の評価により、プローブ電子ビームが優れた単色性を有することを示している。

現在、これらの回折像の強度や位置変化を、フェムト秒レーザー励起の直後から、フェムト秒時間分解能で追跡して、光誘起相転移ダイナミクスを行っている。対象例としては、フェムト秒レーザー励起による Al や Au などの金属における溶解という高速非可逆過程の研究、Si 結晶の光誘起過程の研究(例えば、電子系に付与された光エネルギーがどのように格子系に伝達されていくかの解明)がある。時間分解の測定では、100 fs を切る時間分解能を実現し、数 % の回折スポットの強度変化の正確な測定が可能となった。フェムト秒時間分解電子線回折の測定については、引用文献 15 を参考にいただきたい。

上記で述べたように、我々が開発したフェムト秒時間分解 MeV 電子回折測定装置は、(1) シングルショット測定による極めて鮮明な回折像が測定可能、(2) 100 fs 以下の時間分解能での測定が可能、(3) 数 % の強度変化の正確な測定が可能等の多くの点で、現時点で世界最高性能を有している。Au, Al などの金属だけではなく、Si などの半導体や雲母等の完全な絶縁性結晶においても明瞭な回折像が観測できており、その適応範囲は大きく拡大している。

5 まとめ

以上、低エミッタンス・フェムト秒極短パルス RF 電子銃の開発と、それらを用いたフェムト秒時間分解電子線回折からフェムト秒時間分解 MeV 超高压電子顕微鏡までの一連の研究を紹介した。RF 電子銃を用いたフェムト秒時間分解 MeV 電子線回折は、フェムト秒時間領域における光誘起構造相転移ダイナミクスの解明において、強力なツールとなっている。さらに、我々が研究開発を推進しているフェムト秒時間分解電子顕微鏡は、フェムト秒領域の時間分解能と原子レベ

ルの空間分解能を併せ持つ新しい測定ツールであり、実現すれば、今後の超高速構造科学研究を質的に格段に深化させるであろう。これによって、回折像から得られる周期的格子情報(運動量空間情報)と実時間・実空間における個々の原子の変位に関する直接的かつ重要な知見が同時に獲得できる。ナノメートルの空間領域で、フェムト秒時間領域において進む情報を解析すれば、物質における構造相転移の統一的理解、物理化学反応全貌を解明できる。これらの構造変化や反応過程を明らかにすることは、新物質の創製と新機能の開拓への強固な基礎を創出し、ライフサイエンスの発展にも極めて大きな貢献をもたらすであろう。

また、1 MeV 以上の相対論的エネルギー領域で動作する超高压電子顕微鏡は、Å の最高空間分解能、像の鮮鋭度、イオン化損傷の低減、結晶構造因子・結合状態解明の可能性やその場観測の多様性から物理学、生物学、材料科学などの幅広い研究分野において注目されている。しかし、現在の装置は、大型かつ高価であり、大規模の大学や国立研究所などの大型施設でさえも購入や設置が困難である。規模が小さい研究施設や研究室では当然手が届かない。我々が開発したフォトカソード RF 電子銃は、すでに述べたように、僅か 15 cm の長さで、1 MeV-3 MeV まで加速できる。今後、RF 電子銃を改良して分解能を Å にまで高めれば、この RF 電子銃を用いた新しい電子顕微鏡は、電子顕微鏡の性能だけを考えても、小型かつ安価で、一般的な研究施設や研究室でも導入可能である。更に、フェムト秒の高時間分解能が付加されることを考えれば、次世代の電子顕微鏡の誕生と言っても言い過ぎではない、世界中の物質構造科学研究者が待望してやまない「夢の装置」である。

6 謝辞

本研究は、文部科学省科学研究費補助金(基盤研究(A))「フェムト秒時間分解電子顕微鏡の基礎研究」によって遂行可能となった。特に本研究の中で、フェムト秒 RF 電子銃の開発は、高エネルギー加速器研究開発機構(KEK)との共同研究の成果であり、浦川順次教授、高富俊和氏を始めとする KEK の数多くの方々にも協力をいただいた。又、装置建設や運転等においては大阪大学産業科学研究所附属量子ビーム科学研究施設の教員と技術職員の方々にも最大限の協力をいただき、装置立ち上げにおいては大阪大学超高压電子顕微鏡センターの保田英洋教授と独立行政法人産業技術総合研究所(産総研)の黒田隆之助氏に多大な支援を頂

いた。関連する方々に深く感謝したい。

参考文献

- 1) F. Carbone, P. Baum, P. Rudolf, A.H. Zewail, *Phys. Rev. Lett.*, 100 (2008) 035501.
- 2) B. J. Siwick, J. R. Dwyer, R.E. Jordan, R.J.D. Miller, *Science*, 302 (2003) 1382.
- 3) W.E. King, G.H. Campbell, A. Frank, B. Reed, J.F. Schmerge, B.J. Siwick, B.C. Stuart, P.M. Weber, *J. Appl. Phys.*, 97 (2005) 111101.
- 4) J. Cao, Z. Hao, H. Park, C. Tao, D. Kau, and L. Blaszczyk, *Appl. Phys. Lett.*, 83 (2003) 1044.
- 5) A.M. Michalik, E. Ya. Sherman, J.E. Sipe, *J. Appl. Phys.*, 104 (2008) 054905.
- 6) M.R. Armstrong, K. Boyden, N.D. Browning, G.H. Campbell, J.D. Colvin, W.J. DeHope, A.M. Frank, D.J. Gibson, F.V. Hartemann, J.S. Kim, W.E. King, T. LaGrange, B.J. Pyke, B.W. Reed, R.M. Shuttlesworth, B.C. Stuart, *Ultramicroscopy*, 107 (2007) 356.
- 7) T. LaGrange, M.R. Armstrong, K. Boyden, C.G. Brown, G.H. Campbell, J.D. Colvin, W.J. DeHope, A.M. Frank, D.J. Gibson, F.V. Hartemann, J.S. Kim, W.E. King, B.J. Pyke, B.W. Reed, M.D. Shirk, R.M. Shuttlesworth, B.C. Stuart, B.R. Torralva, N.D. Browning, *Appl. Phys. Lett.*, 89 (2006) 044105.
- 8) V.A. Lobastov, R. Srinivasan, A.H. Zewail, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 102 (2005) 7069.
- 9) X.J. Wang, D. Xiang, T.J. Kim, H. Ihee, *J. Korean Phys. Soc.*, 48 (2006) 390.
- 10) P. Musumeci, J.T. Moody, C.M. Scoby, *Ultramicroscopy*, 108 (2008) 1450.
- 11) R. Li, C. Tang, Y. Du, W. Huang, Q. Du, J. Shi, L. Yan, X.J. Wang, *Rev. Sci. Instrum.*, 80 (2009) 083303.
- 12) J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 637 (2011) S24.
- 13) J. Yang, K. Kan, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, *J. Urakawa, Radiat. Phys. Chem.*, 78 (2009) 1106.
- 14) Y. Murooka, N. Naruse, S. Sakakihara, M. Ishimaru, J. Yang, K. Tanimura, *Appl. Phys. Lett.*, 98 (2011) 251903.
- 15) N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, K. Tanimura, *J. Particle Accelerator Society of Japan*, 7 (2011) 261.
- 16) Y. Yoroza, J. Yang, Y. Okada, T. Yanagida, F. Sakai, S. Ito, A. Endo, *Appl. Phys. B*, 76 (2003) 293.
- 17) J. Yang, F. Sakai, T. Yanagida, M. Yoroza, Y. Okada, K. Takasago, A. Endo, A. Yada, M. Washio, *J. Appl. Phys.*, 92 (2002) 1608.
- 18) K. Kan, J. Yang, T. Kondoh, Y. Yoshida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 659 (2011) 44.
- 19) J. Yang, N. Naruse, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *Proc. IPAC*, 4170 (2012).
- 20) J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Murooka, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *J. Vac. Soc. Jpn.*, 55 (2012) 42.
- 21) J.A. Berger, J.T. Hogan, M.J. Greco, W.A. Schroeder, A.W. Nicholls, N.D. Browning, *Microsc. Microanal.*, 15 (2009) 298.

著者略歴

楊 金峰：大阪大学産業科学研究所 准教授。理学博士。専門：加速器科学，ビーム物理学，放射線化学。学歴：平成 5 年に東京大学大学院工学研究科原子力工学専攻修士課程修了。平成 9 年に東京都立大学大学院理学研究科高エネルギー物理専攻博士課程修了。職歴：昭和 62 年から平成 3 年まで中国科学院上海原子核研究所研究員，平成 9 年より住友重機械工業株式会社技術開発センター研究員，阪大学産業科学研究所助手，助教授を経て平成 18 年より現職。平成 16 年から平成 17 年まで名古屋大学大学院理学研究科物理学教室非常勤講師を兼任。受賞：平成 18 年に財団法人高エネルギー加速器科学研究奨励会西川賞