

## RF 電子銃を用いたフェムト秒時間分解電子顕微鏡の開発

### FEMTOSECOND ELECTRON MICROSCOPY USING PHOTOCATHODE RF GUN

楊金峰<sup>#,A)</sup>, 菅晃一<sup>A)</sup>, 成瀬延康<sup>A)</sup>, 近藤孝文<sup>A)</sup>, 吉田陽一<sup>A)</sup>, 谷村克己<sup>A)</sup>, 浦川順治<sup>B)</sup>  
Jinfeng Yang<sup>#,A)</sup>, Koichi Kan<sup>A)</sup>, Nobuyasu Naruse<sup>A)</sup>, Takafumi Kondoh<sup>A)</sup>, Yoichi Yoshida<sup>A)</sup>, Katsumi Tanimura<sup>A)</sup>,  
Jyunji Urakawa<sup>B)</sup>

<sup>A)</sup> The Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR), Osaka University

<sup>B)</sup> High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

#### Abstract

The revealing and understanding of ultrafast structural-change induced dynamics are essential not only in physics, chemistry and biology, but also are indispensable for the development of new materials, new devices and applications. Both new RF gun based ultrafast relativistic electron diffraction and microscopy (UED and UEM) have been developed in Osaka University to probe directly structural changes at the atomic scale with sub-100 fs temporal resolution in materials. The first prototype of relativistic-energy UEM using a femtosecond photocathode RF gun has been developed. Both ultrafast diffraction and image measurements have been succeeded using a femtosecond electron beam. In this paper, the development of the UEM prototype and the first experiments of relativistic-energy electron imaging will be reported.

#### 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、その物質を構成する個々の原子・分子の運動、変化途中の種々の極微細状態かつ短寿命の中間種に関与している。これらの物質の高速現象を明らかにするためには、単一原子や分子の空間スケールとその原子の振動周期の時間尺度（ $<$  数 100fs）での観測が不可欠である。すなわち、フェムト秒時間とナノメートル空間の分解能を有する測定技術が期待されている。

電子顕微鏡は物質の微細構造を原子・分子レベルで直接観測することが可能な強力な観察装置であり、構造と機能を結びつけて理解する土台となっている。しかし、普通の市販電子顕微鏡では、時間分解の機能がなく、超高速現象の観測への応用できない状況である。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、フェムト秒超高速電子顕微鏡法（UEM）である。本稿では、まず、従来の時間分解電子顕微鏡の開発現状とその問題点を述べた後、我々が世界に先駆けて開発したフォトカソード RF 電子銃を用いたフェムト秒時間分解 MeV 電子顕微鏡実証機の概要と特徴を説明する。最後に、RF 電子銃から発生したフェムト秒電子線パルスを用いた電子線回折と電子顕微鏡イメージングの測定例を報告する。

#### 2. 時間分解電子顕微鏡開発の現状

時間分解電子顕微鏡は、高速で進行する物質の極

微細な構造変化を時間分解で直接的に観測する技術として、基礎から応用まで幅広い学問分野で期待されている。時間分解電子顕微鏡を用いて核の生成、固体の相転移、気相の過渡的な分子構造や分子系の化学反応が調べられてきたが、今までの時間分解電子顕微鏡実験はみな数 10ns の時間分解能に留まっている。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パルス幅、エミッタンスとエネルギー分散の増大である。今までの研究では、電子を加速電圧が 100keV 以下のフォトカソード DC 電子銃を用いて発生している。この方式では、カソードから発生した電子を、DC 電場で加速する間、電子顕微鏡レンズ系に輸送する間に空間電荷効果によりパルス幅とエネルギー分散が大きく広がる。例えば、エネルギーが 30keV、電子数が  $10^4$  個の電子線パルスを僅か 40cm の距離で輸送する間に、空間電荷効果によりパルス幅が 100fs から数 ps に広がり、エネルギー分散が  $10^{-3}$  に増大してしまう。低エネルギー領域で空間電荷効果を減じるためには、パルス当たりの電子数を 1,000 個以下に制限する必要がある。最近、米国の California 技術研究所のグループは、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。この方式では、単一ショット（single-shot）でイメージ像を取得することは不可能である。すなわち、不可逆過程の観察ができない。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、反射型のイメージ観測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。

<sup>#</sup> yang@sanken.osaka-u.ac.jp

これらの問題を克服するために、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<sup>[1-5]</sup>の経験を活かして、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の建設に装置開発目標を置いた。我々の UEM 研究では、RF 電子銃から発生する 1~3MeV 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 100fs とする超長時間分解能を実現し、フェムト秒時間領域での構造変化や相転移などの超高速現象の解明を目指す。

### 3. RF 電子銃を用いたフェムト秒時間分解 MeV 電子顕微鏡実証機の建設

Figure 1 に、我々が世界に先駆けて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・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。



Figure 1: Prototype of RF gun based femtosecond time-resolved MeV electron microscopy

#### 3.1 フェムト秒フォトカソード RF 電子銃

時間分解電子顕微鏡に適応するために、今までのフェトカソード RF 電子銃をさらに高精度化する必要がある。まず、10nm の空間分解能を実現するために、1000x1000pixel の CCD カメラを利用する場合 (10nm/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から計算すると、電子ビームの規格化エミッタンスが 0.1mm-mrad 以下抑える必要がある。次に、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。1000x1000pixel の CCD カメラを利用する場合、single-shot の測定には必要なパルス当たりの電子数は  $10^{7-8}$  (1~10pC) 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。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。

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、100fs を切る極短パルス RF 電子銃の設計・開発を行った。Figure 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ムト秒短パルス RF 電子銃を示す<sup>[2,5]</sup>。暗電流や加速する 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 BNL タイプの形状ではなく、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変形させる新型チューナーを取り付けた。これにより、フ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<sup>[6]</sup>を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(0.1pC 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、0.1mm-mrad 以下の

低エミッタンス電子ビームの発生が期待できる。

Table 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。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(266nm、時間幅 90fs)を用いた。実験では、規格化エミッタンスが 0.2mm-mrad、パルス幅が 100fs の電子ビームを得ることができた。今後、カソードに照射するレーザースポット径を 0.1mm 以下に集光し、熱エミッタンスを低減して、目標の 0.1mm-mrad の低エミッタンス電子ビームの発生が可能であることが分かった。

Table 1: Expected beam parameters from RF gun

Electron energy	1~3 MeV
Bunch length	100 fs
Emittance	0.1 mm-mrad
Energy spread	$10^{-4}$
Bunch charge	$10^7 \sim 10^8 e^-s$ (1~10 pC)

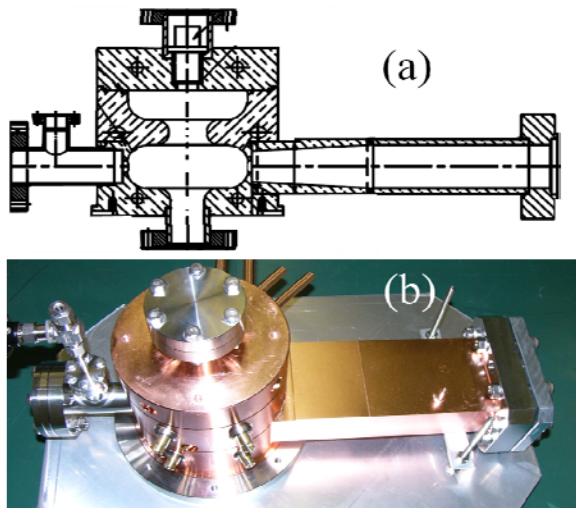


Figure 2: Photocathode femtosecond RF gun for ultrafast electron microscopy

### 3.2 MeV 電子ビームイメージング光学系

電子ビーム光学系 (Figure 3 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  $\Delta\theta = 0.3 \sim 1 \text{ mrad}$  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。我々の電子線回折の実験では、 $\Delta\theta = 0.05 \text{ mrad}$  に実現しており、本開発目標である  $\Delta\theta < 0.1 \text{ mrad}$  を達成した。

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。対物レンズでは、上極と下極に非対称の構造を採用し、最大起磁力が  $44 \text{ kA} \cdot \text{ターン}$  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 2.4T 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 2MeV の時、 $f_o \leq 12 \text{ mm}$  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。これにより、本電子顕微鏡のイメージ像拡大倍率は 5,000 ~ 75,000 倍となり、本開発目標である 10nm 分解能を十分に達成する見込みである。

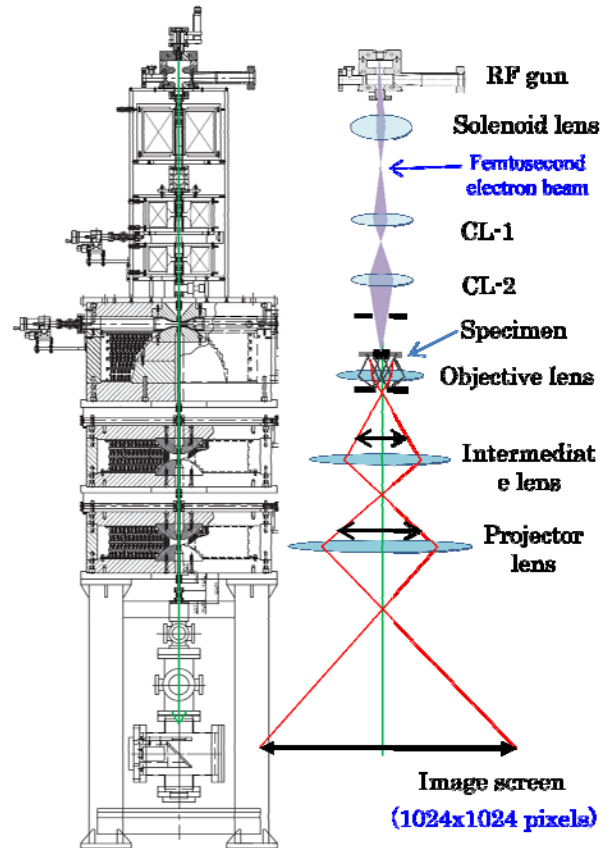


Figure 3: Concept of RF gun based femtosecond electron microscopy

### 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、不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<sup>[6-9]</sup>。素子から発生した光は、厚さが 5 $\mu\text{m}$  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、 $3 \times 10^{-3}$  counts/ electron を達成し、電子数  $10^5$  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<sup>[6-8]</sup>。

### 3.4 フェムト秒励起レーザー

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。このレーザーはパルス幅 80 フェムト秒の Ti:Sapphire レーザー発振器 (Tsunami, 中心波長: 800nm)、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 2856MHz の RF を 1/36 の周期に分周した周波数 79.3MHz の RF と時間同期して 79.3MHz の繰り返しでモードロック発振を行っている。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 1mJ 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 1kHz のグリーンレーザー (Empower, 波長: 532nm、出力: 10W) により駆動されている。

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: 266nm) 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 1mm 以下の SHG と THG 非線形結晶を使用した。無酸素銅カソード表面でのレーザースポット径は絞りにによりコントロールされている。

## 4. 実証機における電子線回折像とイメージ像の測定結果

### 4.1 金単結晶の電子線回折像

Figure 4 に RF 電子銃から発生したフェムト秒電子ビームを用いて、パルスあたりの電荷量が 0.1pC 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 15nm の金単結晶の電子線

回折像を示す。RF 電子銃からの暗電流の影響が殆どなく、10 パルス積算で十分明瞭な回折パターンが得られていることと、シングルショットの測定に成功した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。

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不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。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。磁気レンズによるエミッタンスの測定では、電荷量が 0.1pC の時、規格化エミッタンスの実測値が 0.2mm-mrad であった。また、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。

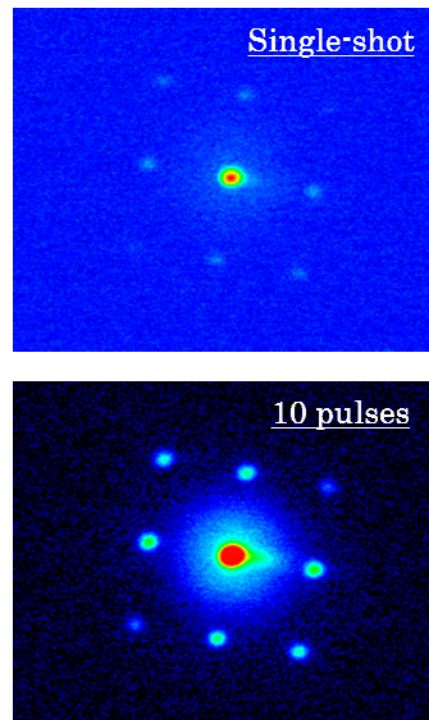


Figure 4: Electron diffraction patterns of single-crystal gold observed with single-pulse and 10-pulse measurements in RF gun based UEM prototype

### 4.2 透過電子顕微鏡イメージ像

Figure 5 に、時間分解電子顕微鏡実証機における拡大倍率や解像度を評価するために、1000 メッシュの銅グリッド標準試料を透過した電子顕微鏡イメージ像の測定結果を示す。対物レンズだけを使用した場合、像の拡大倍率は 200 倍であった。これは、電子顕微鏡の心臓部と言われている対物磁気レンズが十分な性能を発揮していることを示す。また、対物レンズと投影レンズを組み合わせる場合、

像の拡大倍率は 1700 倍であった。この時、測定の解像度は 30nm/pixel であった。

本測定では、CL の使用がなく、サンプル上に電子ビームが収束されず、ソレノイド磁気レンズとビーム絞りの組み合わせにより平行化した電子ビームを用いた。サンプルでのビームサイズは 1mm (直径) であった。サンプルに照射する電子ビームの電荷量は 0.1pC であった。今後、CL を用いてサンプルでのビームサイズを 10 $\mu$ m に絞り、ビーム輝度を 100 ~ 1000 まで向上させる。さらに、中間レンズを利用し、対物レンズ、中間レンズと投影レンズの 3 つのレンズ結像光学系を活用して像の拡大倍率は 5,000 倍から 10,000 倍まで拡大し、目標の 10nm の空間分解能を実現する見込みである。

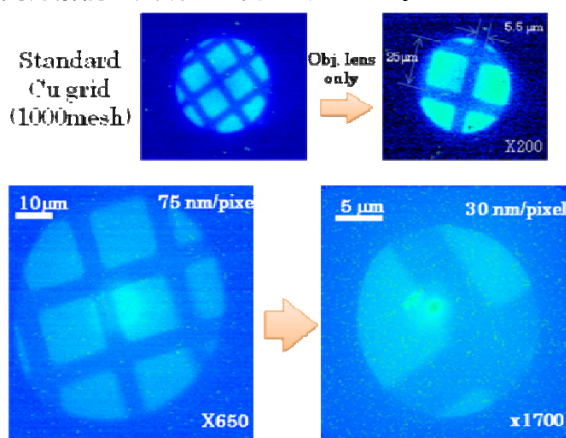


Figure 5: Transmission electron microscopy images observed by RF gun based UEM prototype.

## 5. まとめ

加速器から生まれたフォトカソード RF 電子銃技術は、先端加速器への応用だけではなく、高速電子線回折<sup>[6-8]</sup>、電子顕微鏡<sup>[9]</sup>や高速パルスラジオリシス<sup>[10]</sup>などの様々な最先端計測分野にも利用されつつある。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<sup>[6-8]</sup>。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。

また、1MeV 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、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 15cm の長さで、1~3MeV ま

で加速できる。勿論、更になる低エミッタンス化や単色化などの課題が残されているが、今後、RF 電子銃を改良して分解能を 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。

## 参考文献

- [1] J. Yang, F. Sakai, T. Yanagida, M. Yoroza, Y. Okada, K. Takasago, A. Endo, A. Yada, M. Washio, *J. Appl. Phys.* **2002**, 92, 1608.
- [2] J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Murooka, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *J. Vac. Soc. Jpn.* **2012**, 55, 42-49.
- [3] J. Yang, K. Kan, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *Radiat. Phys. Chem.* **2009**, 78, 1106.
- [4] K. Kan, J. Yang, T. Kondoh, Y. Yoshida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **2011**, 659, 44.
- [5] J. Yang, N. Naruse, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *Proc. IPAC* **2012**, 4170-4174.
- [6] N. Naruse, Y. Murooka, J. Yang, K. Tanimura: *J. Particle Accelerator Society of Japan*, **2011**, 7, 261-270.
- [7] J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **2011**, 637, S24.
- [8] Y. Murooka, N. Naruse, S. Sakakihara, M. Ishimaru, J. Yang, K. Tanimura, *Appl. Phys. Lett.* **2011**, 98, 251903.
- [9] <http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/bsn/KibanAKokai.pdf>
- [10] J. Yang, T. Kondoh, K. Kan, Y. Yoshida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **2011**, 629, 6-10.