

## フォトカソード RF 電子銃を用いた MeV 電子顕微鏡の開発

### DEVELOPMENT OF MEV ELECTRON MICROSCOPY USING PHOTOCATHODE RF GUN

楊金峰<sup>#, A)</sup>, 谷村克己<sup>A)</sup>, 菅晃一<sup>A)</sup>, 近藤孝文<sup>A)</sup>, 神戸正雄<sup>A)</sup>, 吉田陽一<sup>A)</sup>, 高富俊和<sup>B)</sup>, 照沼信浩<sup>B)</sup>, 浦川順治<sup>B)</sup>  
Jinfeng Yang<sup>#, A)</sup>, Katsumi Tanimura<sup>A)</sup>, Koichi Kan<sup>A)</sup>, Takafumi Kondoh<sup>A)</sup>, Masao Gohdo<sup>A)</sup>, Yoichi Yoshida<sup>A)</sup>,  
Toshikazu Takatomi<sup>B)</sup>, Nobuhiro Terunuma<sup>B)</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

A time-resolved electron microscopy, which is called ultrafast electron microscopy (UEM), is being developed at Osaka University using a relativistic-energy femtosecond electron beam generated from a photocathode RF gun. The first prototype of RF gun based UEM has been constructed in 2012. The demonstrations of the relativistic-energy UEM images have been carried out. Since 2014, we have designed and constructed a 1 kHz-repetition-rate new-type RF gun under the collaboration with KEK to increase the beam brightness. The transmission-type photocathodes in RF gun are being developed. In this presentation, the activities on RF gun based UEM are introduced. The considerations and design of the high-repetition-rate new-type RF gun and the transmission-type photocathodes are reported. Finally, some demonstrations of the relativistic-energy UEM images are reported.

#### 1. はじめに

近年、物質科学が飛躍的に発展し、物質構造相転移、電荷・エネルギー移動、化学反応等のナノ領域に特有な物理・化学現象に基づいた新たな物質の設計とその応用に大きな注目を集めている。特に、構造相転移現象や種々の反応過程を積極的に利用した、平衡状態では達成が不可能な高効率・超高速な機能をもった画期的なデバイス・材料・システムの創製が期待されている。物質構造の超高速現象を解明するためには、物理・化学的な素過程を支配する格子系や分子系の運動の観察が不可欠である。そのために、原子または分子の位置をその振動と同じ程度の時間分解能、 $\sim 100\text{fs}$  で捉えることのできる測定技術が要求されている。近年、フェムト秒レーザーによる短パルス電子ビームの発生、フェムト秒領域での時間同期等の技術が急速に発展されてきており、これらの技術を用いた超高速電子線回折測定法を通して、結晶性などの周期性を持つ物質における超高速で進行する構造変化の諸過程に関する詳細な知見が獲得されつつある。しかし、低エネルギー領域での空間電荷効果による電子ビームパルス幅の制限のため、大強度かつ短パルスの電子ビームの発生ができず、世界中の物質科学者が長年に望まれる  $100\text{fs}$  以下の時間とサブナノメートルの空間分解能を同時に実現する超高速電子顕微鏡技術は、依然にまだ「夢」の段階に留まっている。

そこで、我々は、 $100\text{fs}$  と  $1\text{nm}$  の時空間分解能を有する測定技術を実現するために、世界に先駆けて RF 電子銃を用いた相対論的エネルギーの時間分解電子顕微鏡の建設を目指した。Figure 1 に、2012 年 10

月に完成した時間分解能電子顕微鏡実証機の写真を示す[1]。2014 年に実験室の移設に伴い、電子ビーム大強度化と低エミッタンス化のために、新しい  $1\text{kHz}$  の常伝導 RF 電子銃[2]と透過型フォトカソードの開発を行い、装置のアップグレードを行った。以下に、新しい RF 電子銃の製作、透過型カソードの開発、RF 電子銃を用いた電子顕微鏡の測定結果について報告する。



Figure 1: The prototype of RF gun based relativistic-energy electron microscopy which was constructed at Osaka University in 2012 and improved in 2014.

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

## 2. 新しい高繰返しフォトカソード RF 電子銃の開発

時間分解電子顕微鏡の空間分解能をサブナノメートルに向上させるには、更なる低エミッタンス・短パルス電子ビームが不可欠である。このような電子ビームを得るために、パルス当たりの電荷量 (0.1pC/pulse 以下) を低減しなければならない[3-5]。一方、測定には、高精度かつ短時間の観測が望まれ、短時間で沢山の電子数が要求される。これらの問題を解決するために、電子線パルスの繰返しを上げなければならない。すなわち、高繰返しの電子源が必要となる。そこで、我々は、高エネルギー加速研究機構との共同研究で、世界先駆けて繰返し 1kHz の常伝導 RF 電子銃の開発に試みた。Figure 2 に、新しい高繰返し RF 電子銃の断面図と完成した写真を示す。常伝導 RF 電子銃を選んだもう最大理由は、装置の小型化である。

従来の RF 電子銃を比べて、以下の 3 つの改良を行った。(1) 最大の改良点として、ハーフセルとフルセルの間の Iris 寸法と形状を変更し、 $\pi$  モードと 0 モードの共振周波数差を従来の RF 電子銃の 3.5MHz から 15.2MHz までに広げた。これにより、カソードでの 0 モードの電場強度と Iris 表面電場強度を低減することができた。空洞温度変化による field balance などの影響 (温度の敏感さ) が受けにくく、tuning や tolerance の敏感さが緩和され、低繰返しから高繰返しでの安定な運転につながる。RF 加速位相によるエミッタンスの変化が小さくなり、また、パルス内のエネルギー分散の低減も期待できる。(2) 加速空洞の形状は従来の四角形状から丸い形状に変更した。これにより、加速空洞内の電場の非線形成分を低減することができ、最も対称性が良い理想に近い RF 加速電場が実現できる。また、Q 値やシャントインピーダンスの向上にもつながった。(3) Iris の冷却水路形状は従来の四角形状から五角形状に変更した。シミュレーションでは、ハーフセル半径方向に熱発生量が集中しているため、ハーフセルとカソードプレートとの連結部に新たに 1 系統の冷却水路を追加した。また、フルセルに取り付けられた導波管にも冷却水路を設けた。これにより、RF 共振による発生した熱を効率的に除去することができ、将来的に 1kHz の高繰返し RF 電子銃の実現が期待できる。設計の詳細については、文献[2]に参考していただきたい。Table 1 に、新しい RF 電子銃における測定または期待されるパラメータを示す。高繰返し RF 源の開発については、現在、繰返しが 300Hz の IGBT 半導体モジュレーターを開発し、将来的に 1kHz に向上する予定である。

パルス当たりの電荷量が数 pC の時、RF 電子銃から発生する電子ビームのエミッタンスは、カソードから出る時の初期エミッタンス (熱エミッタンス) に支配される。本実験では、RF 電子銃から発生した電子ビームを下流に設置されたコンデンサ絞りによりコリメートし、エミッタンスの低減を試みた。Figure 3 に、規格化エミッタンスの測定データを示す。エミッタンスの測定には、RF 電子銃直後に取り

付けられたコンデンサーレンズを用いた。測定データより、直径 0.5mm 以下のコンデンサ絞りを使得ってコリメートすれば、目標値の 0.1mm-mrad の電子ビームが得られることが分かる。この時、電荷量は 1pC 程度であった。カソードは無酸素銅であり、照射レーザーは 100fs の Ti:Sa レーザーの 3 倍波であった。コンデンサ絞りによりコリメート後のビームエミッタンスの低減は、カソードの熱エミッタンスが小さくなる原因と考えている。

Table 1: The Measured/Expected Parameters in the New RF Gun

Radio-frequency	2856 MHz
RF Power	3 MW (peak) at 50 MV/m 3 kW (average) at 1 $\mu$ s, 1kHz
Mode Separation	15.5 MHz
Q	12150
Emittance	0.1 mm-mrad
Bunch length	100 fs / 50fs
Energy spread	$10^{-4}$ ( $10^{-5}$ for challenge)

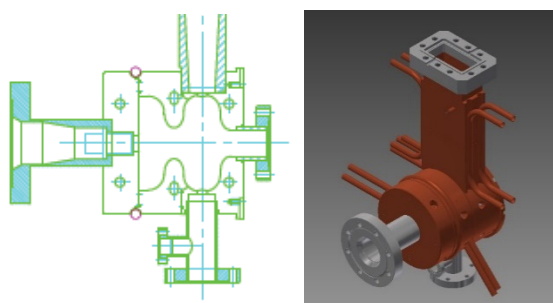


Figure 2: 1kHz photocathode RF gun for electron microscopy.

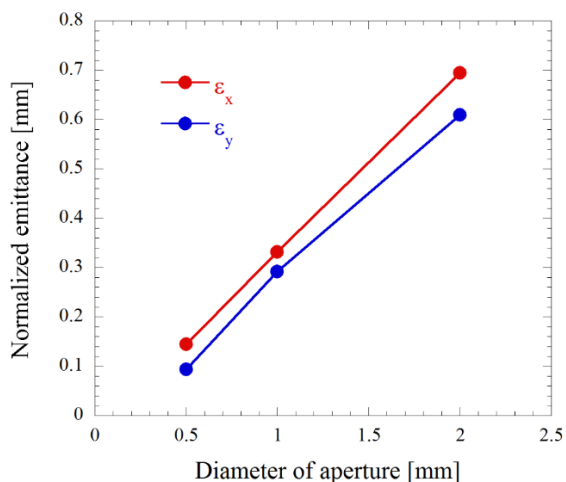


Figure 3: The normalized transverse emittance of the femtosecond electron beam generated from the RF gun as a function of the aperture diameter.

### 3. 透過型フォトカソードの開発

上記に述べたように、RF 電子銃における低エミッタンスの電子ビームを発生させるためには、フォトカソードに照射するレーザースポットを集光し、初期エミッタンスの低減を図る必要がある。また、本研究である究極な電子顕微鏡などの応用分野に RF 電子銃を利用させるためには、電子ビームの低エミッタンス化のほかに設置や利用方法の多様化を考えなければならない。例えば、電子顕微鏡では、電子源は通常の加速器のような水平方向に設置されることではなく、縦垂直方向に取り付ける必要がある。我々は、これらの諸問題を解決するために、KEK との共同研究で、世界初の透過型フォトカソード RF 電子銃の開発を目指した。

Figure 4 に、透過型フォトカソード RF 電子銃の概念図を示す。Figure 5 に設計した透過型カソードプラグを示す。近年、低加速電圧の直流 (DC) 電子源用の透過型フォトカソードの開発[6,7]が進んでおり、レーザーの背面照射、スポット径の精密制御により、初期エミッタンスの低減が可能であることが報告された (レーザー半径を 0.08mm に制御し、0.2mm-mrad の低エミッタンス電子ビームの発生に成功した)。このことは、RF 遮蔽と耐電圧の性能が高い透過型フォトカソードを開発すれば、RF 電子銃に装着し、レーザースポット径を制御することにより、必要な 0.1mm-mrad 以下の極低エミッタンスかつ短パルス電子ビームの発生が可能であることを示唆している。

近年、Au や Ag などの金属系、NEA-GaAs などの半導体系と K<sub>2</sub>CsSb などのマルチアルカリ系の材質を用いた DC 電子銃用の透過型フォトカソードの研究が行われ、エミッタンスや量子効率などの特性とカソード材質または材質厚さへの依存性を調べた。しかし、DC 放電限界の制限により、これらの研究は、加速電場強度が数 MV/m の領域に限定されている。これらの研究成果は、加速電場 100MV/m 以上の RF 電子銃ではそのまま適用できない。透過型フォトカソード RF 電子銃を実現するためには、次の課題を挑戦しなければならない。

- RF 遮蔽能力と光透過率が高いカソード基板材料の製作
- 耐電圧性が高い (100MV/m 以上) カソード材料の開発
- 極低エミッタンス・短パルス電子ビームの発生  
このような課題に関して、我々はこれまでの経験から次のような研究方法を考えている。
- カソード基板は透過型フォトカソードを実現する鍵であり、RF 遮蔽能力を持ち、可視光領域の光の透過率が高い材料の開発が不可欠である。一般的な導電材料は、RF 侵入長が数ミクロンから数十ミクロンであるため、RF だけではなくレーザーも遮蔽してしまう。これに対して、RF 遮蔽能力が高く、導電性が高い材質または超伝導性カソード基板材料を製作する。
- 透過型フォトカソード材料としては、まず、金や銅などの金属系材料を中心として、耐電圧が

高く量子効率が比較的に高いカソードを利用する。将来的に、耐電圧性が高く、時間応答性が速い半導体やマルチアルカリ系カソード材質を模索する。これに関しては、耐電圧、量子効率、寿命などの特性と材質、膜厚さ、レーザー波長などへの依存性を、RF 電子銃を用いて実験的に解明する。

- 0.1mm-mrad 以下の極低エミッタンスを得るためには、初期エミッタンスと空間電荷効果によるエミッタンス増大の低減が不可欠である。初期エミッタンスの低減について、カソード材料を厳選し、レーザースポット径を最適化する。空間電荷効果の低減に関しては、我々は開発に成功した励起レーザーパルス形状の矩形波分布整形による空間電荷効果の低減技術を導入する。

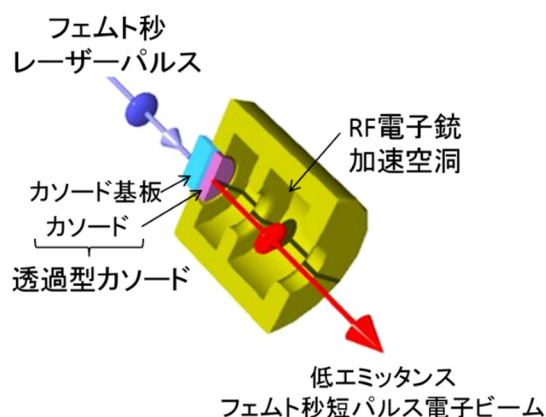


Figure 4: Transmission-type photocathode RF gun.

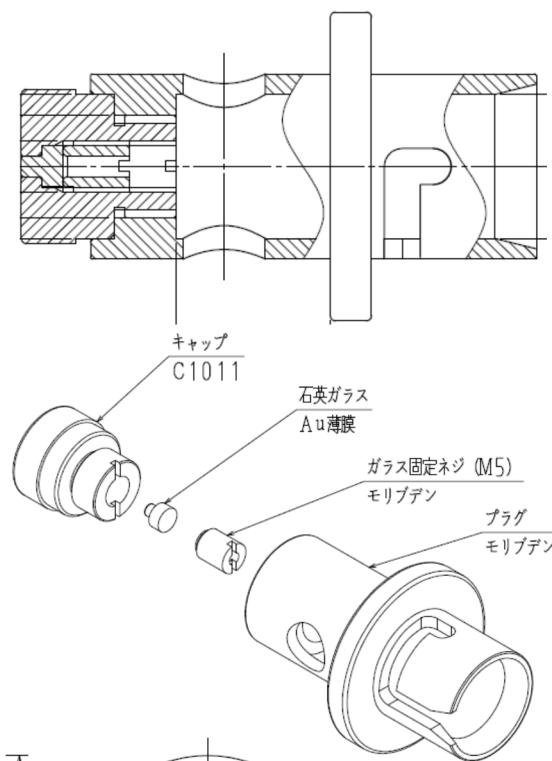


Figure 5: Transmission-type photocathode plug.

#### 4. 相対論的エネルギー電子線パルスによる物質構造測定の結果

製作した新しい RF 電子銃にフェムト秒 UV レーザーの照射によりフェムト秒電子ビームを発生し、発生した電子ビームを用いて電子線回折の測定実験を試みた。実験では、RF 電子銃から発生した電子ビームは、RF 電子銃の直後に取付けられたソレノイド磁石を用いて平行化され、コンデンサーレンズを通して試料に輸送される。コンデンサーレンズの前に直径 0.5mm の絞りを取り付け、ビームコリメーションを行った。電子線回折の測定には、我々が初代の装置に開発成功したパルスあたり少数の電子数でも測定可能な TI をドープした 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。

Figure 6 に、0.1pC の MeV 電子線パルスを用いた厚さ 10 nm 金単結晶と厚さ 100nm の絶縁体 Mica 単結晶  $(K(Fe,Mg)_3(AlSi_3O_{10})(OH,F)_2)$  のシングルパルス、10 パルス、100 パルスの測定結果を示す。本実験では、シングルショットの条件でも明確な回折パターンが測定でき、100 パルスの測定では非常に明瞭な電子線回折が得られることがわかる。この回折パターンの明瞭さは、RF 電子銃から発生した高品質電子ビームの証拠である。時間分解電子線回折の実験は、すでに公表している文献 8 と 9 を参照していただきたい。電子顕微鏡の実験については、装置のアップグレードを行ったため、これから、拡大倍率を確認し、TEM の測定と空間分解能の評価を実施する予定である。

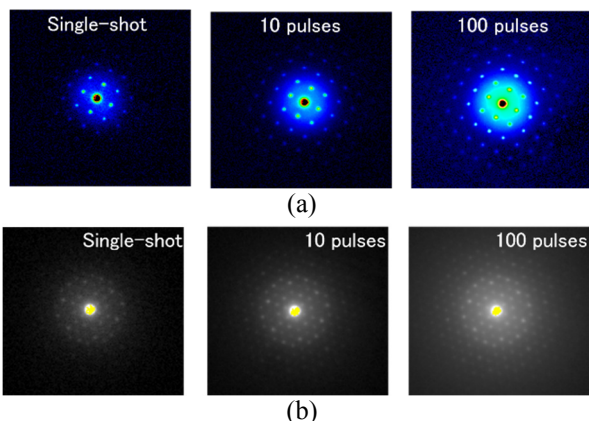


Figure 6: Relativistic-energy electron diffractions observed from single-crystal gold (a) and single-crystal Mica (b) with single-pulse, 10-pulse and 100-pulse averaging measurements.

#### 5. 結論

我々は、RF 電子銃の製作と RF 電子銃における低エミッタンス・フェムト秒短パルス電子ビームの発生技術・経験を生かして、世界に先駆けて RF 電子銃を用いた相対論的エネルギーの時間分解電子顕微鏡の建設を目指した。100fs と 1nm の時空間分解

能を実現するために、世界最高繰返しの 1kHz の常伝導 RF 電子銃の設計・製作、世界初の透過型フォトカソード RF 電子銃の開発を試みた。RF 電子銃における高繰返し化技術と透過型カソード技術は、高輝度電子源の実現に不可欠な技術である。また、透過型フォトカソード RF 電子銃の場合は、レーザーがカソードの背面から照射するため、カソードでのレーザー形状やサイズが容易に制御できる。さらに、レーザーは光ファイバーを通じて導入することができるため、RF 電子銃がどんな装置でも自由自在に取り付けられる。これにより、RF 電子銃の応用が一気に広がる。これらの技術を実現すれば、本研究の時間分解電子顕微鏡のみにならず、次世代放射光や自由電子レーザーなどの先端加速器研究にも大きく貢献すると考えている。

#### 謝辞

本研究の一部は、文部科学省科学研究費補助金（基盤研究 (A)、22246127、H22~24）「フェムト秒時間分解電子顕微鏡の基礎研究」と（基盤研究 (A)、26246026、H26-28）「フェムト秒時間分解電子顕微鏡に関する研究」によって遂行可能となった。装置建設や運転等においては大阪大学産業科学研究所ナノ極限ファブリケーション研究分野（吉田研）の教員・学生、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いた。関連する方々に深く感謝したい。

#### 参考文献

- [1] J. Yang, presented at the Workshop on Ultrafast Electron Sources for Diffraction and Microscopy Applications (Los Angeles, CA, USA, 2012); [http://pbpl.physics.ucla.edu/UESDM\\_2012](http://pbpl.physics.ucla.edu/UESDM_2012); J. Yang, presented at Femtosecond Electron Imaging and Spectroscopy (Key West, Florida, USA, 2013); <http://www.feis2013.org>
- [2] J. Yang, et al., Proceedings of the 11th Particle Accelerator Meeting in Japan, Aomori, 2014.
- [3] J. Yang et al., Radiat. Phys. Chem. 78, 1106 (2009).
- [4] J. Yang et al., Nucl. Instrum. Methods A, 637, S24 (2011).
- [5] Y. Murooka et al., Appl. Phys. Lett. 98, 251903 (2011).
- [6] R. Inagak, et al., Proceedings of the 11th Particle Accelerator Meeting in Japan, Aomori, 2014.
- [7] N. Yamamoto, et al., J. Appl. Phys. 102, 024904(2007).
- [8] Y. Giret et al., Appl. Phys. Lett. 103, 253107 (2013).
- [9] S. L. Daraszewicz et al., Phys. Rev. B 88, 184101 (2013).