

## FEMTOSECOND TIME-RESOLVED MEV ELECTRON MICROSCOPY

Jinfeng Yang<sup>#,A)</sup>, Takafumi Kondoh<sup>A)</sup>, Koichi Kan<sup>A)</sup>, Nobuyasu Naruse<sup>A)</sup>, Yoshie Murooka<sup>A)</sup>, Yoichi Yoshida<sup>A)</sup>,  
Katsumi Tanimura<sup>A)</sup>, Toshikazu Takatomi<sup>B)</sup>, Junji Urakawa<sup>B)</sup>

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

8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka, 567-0047

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

1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801

### Abstract

A time-resolved MeV electron microscopy (UEM) based on a femtosecond photocathode electron rf gun was proposed in Osaka University for the study of photon-induced dynamic of materials in femtosecond time region and nanometer real space. The real potential of the photocathode rf electron gun were discussed for the single-shot UEM. The concept of a photocathode rf gun based UEM has been considered. Moreover, the photocathode rf gun based femtosecond electron source has been developed successfully for a femtosecond time-resolved MeV-electron diffraction. The beam dynamics in the rf gun and the experimental results of MeV electron diffraction were reported. The MeV electron diffraction system was used successfully for the single-shot electron diffraction measurement.

### フェムト秒時間分解・MeV 電子顕微鏡

#### 1. はじめに

物質における量子ビーム誘起高速現象（相転移、溶解、表面や界面における構造変化、電子励起による局所的な原子構造変化などの誘起現象）は、時空間的には、フェムト秒の時間スケール、およびナノまたはサブナノメートルの空間スケールで進行している。フェムト秒およびナノメートルの極限的な時間・空間領域での量子ビーム誘起高速現象の追跡、その現象の本質的な理解は、物理・化学などの基礎科学分野からの要請だけではなく、ナノ材料、ナノエレクトロニクス及びナノバイオなどのナノテクノロジー・環境・エネルギー材料などの応用科学分野の発展につながる。

高速誘起現象の観測・分析には、いくつかの方法がある。例えば、近年にフェムト秒レーザー光パルスまたは high-order harmonic generation によるアト秒短パルスレーザーを利用した高速現象の計測手法がある[1]。しかし、空間分解能は光の波長に制限され、数 $\mu\text{m}$  となっている。また、光を通さない物質は測定できない制約がある。それに克服する短パルス X 線（X 線 FEL など）を利用する方法がある[2]が、しかし装置が非常に大型である。また、X 線と物質の相互作用（energy deposited）が、電子に比べると3桁に弱い短所がある。

そこで、加速器から生成したフェムト秒短パルス電子ビームは、荷電粒子性といった見地からレーザーと異なった短パルスビームとして、フェムト秒時間領域の物質内超高速現象の解明・構造変化の追跡に注目されている。一つの例として、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）である。最近の UED 研究

では、DC または RF 電子銃から発生したフェムト秒短パルス電子ビームを利用してフェムト秒時間分解能を達成し、フェムト秒時間領域での光誘起ダイナミクスの解明が可能となった。しかし、空間分解能がなく、イメージングの測定はできない。

一方、電子顕微鏡は、物質・材料のナノスケール領域を原子レベルで直接観ることが可能な強力な観察・分析・解析装置であり、これに時間分解機能を付加した時間分解電子顕微鏡は、ナノスケールでの構造変化や高速現象を追跡することが可能であるから、広い学問分野で大きな注目を集めている。現在、時間分解電子顕微鏡の分解能は、加速電圧が 100~300keV の DC 電子銃からのナノ秒電子線パルスを利用した single-shot 測定法により、時間的に数ナノ秒から数十ナノ秒、空間的に 1 から 10nm まで到達しており[3]、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、DC 電子銃においては、空間電荷効果の制約によりピコ秒またはフェムト秒の大強度電子線パルスの発生が難しいため、single-shot 測定にはピコ秒またはその以下の時間分解能が向上できないと考えられる。高時間分解を得るために、米国の California 技術研究所のグループ[4]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の開発を行ってきた。2008 年にピコ秒の時間分解能を実現したが、しかし空間分解能はマイクロメートルにしかない状況である。

我々は、フォトカソード RF 電子銃と短パルス電子ビーム発生の経験を生かして、フォトカソード RF 電子銃を用いた次世代のフェムト秒時間分解・MeV 電子顕微鏡の開発をスタートした。本プロジェクトを遂行するために、短パルス電子線の特徴

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

(フォトカソード材質依存性、空間電荷効果依存性および加速 RF 依存性)を明らかにし、新たな低エミッタンス・短パルスフォトカソード RF 電子銃を開発する共に、時間分解電子顕微鏡の測定手法の開発を進めている。現在、フォトカソード RF 電子銃を用いたフェムト秒電子線パルスを発生し、MeV 電子線回折に成功した。

## 2. 必要な電子ビームパラメーター

電子顕微鏡に必要なビーム強度 (パルス当たりの電子数) は、Rose criterion から計算できる。すなわち、イメージング計測には、十分な解像度を得るために 1 ピクセル (pixel) 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、シングルショット測定に必要なパルス当たりの電子数は  $10^8$  (10pC/pulse) である。一方、電子線回折の測定には、必要な電子数は  $10^6 \sim 10^7$  (0.1~1pC/pulse) となる。

また、10nm の空間分解能を得るために、1000x1000pixel の CCD カメラを利用する場合 (10nm/pixel)、サンプルで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 [5]は、

$$\Delta\theta \leq \frac{N_p \cdot \Delta X}{f_1} \quad (1)$$

ここで、 $N_p=1000$  は水平または垂直方向の CCD のピクセル数、 $\Delta X=10\text{nm/pixel}$ 、 $f_1$  はサンプル直前のコンデンサーレンズの焦点距離である。 $f_1=50\text{mm}$  と仮定すると、10nm 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、0.2mrad 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、detector での回折スポットサイズとスポット間の距離の比が 1/5 より小さくしなければなら

い。すなわち、

$$(f_2 / f_1) \cdot \Delta x \leq 5 \cdot f_2 (M\lambda_e / a)(\Delta a / a)$$

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

ここで、 $f_2$  はサンプル直後のオブジェクトレンズの焦点距離、 $\Delta x$  は電子銃から発生する電子ビームのサイズ、 $M$  は diffraction order、 $\lambda_e$  は電子の波長、 $a$  は Bragg plane spacing である。一般的には、 $a = 0.1 \sim 0.2 \text{ nm}$ 、 $\Delta a/a=10\%$ 。例えば、電子ビームエネルギーが 1MeV の場合 ( $\lambda_e \sim 1\text{pm}$ )、 $M = 1$ 、 $\Delta x = 250 \mu\text{m}$  以下となる。式(1)と合わせると、10nm 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、

$$\varepsilon_N = \gamma\beta \cdot \Delta x \cdot \Delta\theta = 0.14\text{mm-mrad} \quad (3)$$

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、サンプルの物質に依存するが、通常は  $10^{-4}$  であれば、測定可能と考えられる。

## 3. 時間分解 MeV 電子顕微鏡の構成

図 1 に、フォトカソード RF 電子銃を利用した時間分解・MeV 電子顕微鏡の構成図を示す。フォトカソードにフェムト秒レーザーを励起し、低エミッタンス、フェムト秒短パルス、MeV 電子ビームを発生する。RF 電子銃の出口に設置されたソレノイドを用いて輸送中空間電荷効果によるエミッタンス増大を補正する。その後、achromatic アルファ電磁石を利用してエネルギー分散をセレクトし、 $\Delta E/E=10^{-4}$  の電子ビームを生成する。

生成した低エネルギー分散の電子ビームを、2 個

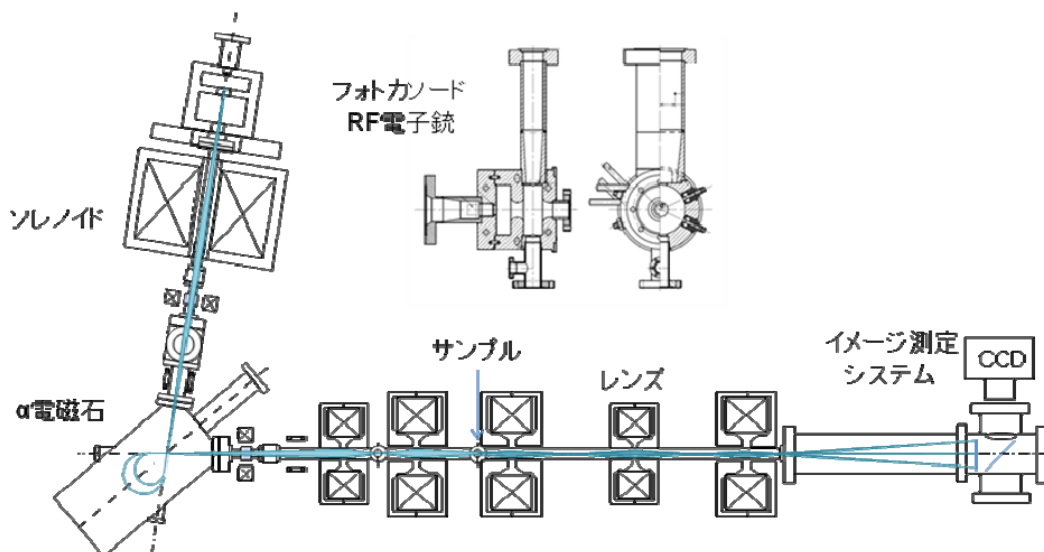


図 1 フォトカソード RF 電子銃を利用した時間分解・MeV 電子顕微鏡の構成図

のコンデンサーレンズを用いてサンプルに 10 $\mu$ m まで集束させる。サンプルを通過した電子はオブジェクトレンズより結像され、最終的に形成されたイメージング像を中間レンズとプロジェクトレンズにより拡大される。イメージングの測定は、シンチレーターと CCD カメラを用いて行う予定である。

フォトカソード RF 電子銃における電子ビームの発生については、今までの研究成果により、エネルギーが 1MeV の電子ビームを発生する必要な電場強度は  $E_{acc}=25\text{MV/m}$  であることがわかる。この電場強度では、無酸素銅のカソードを使っても十分にシングルショット電子顕微鏡測定に必要な電荷量が 1~10pC/pulse の短パルス電子ビームの発生が可能である。また、この電荷量 (1~10pC/pulse) では、ビームのエミッタンスはカソードでの熱エミッタンスが支配され、熱エミッタンスの低減が必要である。RF 電子銃における熱エミッタンスは、次のように表れる。

$$\varepsilon_{th} \cong \sigma_{laser} \sqrt{\frac{\hbar\omega - \phi + \phi_{schottky}}{3m_e c^2}} \quad (3)$$

$$\phi_{schottky} \text{ (eV)} \cong 3.7947 \times 10^{-5} \sqrt{E_{acc} \text{ (V/m)}}$$

ここで、例えば、266nm の UV レーザー ( $\hbar\omega=4.66$  eV)、無酸素銅カソード ( $\phi=4.59$ eV) を使う場合、カソードでのレーザーサイズ ( $\sigma_{laser}$ ) が 250 $\mu$ m 以下であれば、熱エミッタンスを 0.1mm-mrad 以下に低減することができる。また、小さい電子ビームを得るために、レーザーをカソードに小さく集光する必要がある。そこで、レーザーをカソードの後ろから入射し、透過型カソードの開発を行う。これにより、カソードでのレーザーの集光ビーム径が 10 $\mu$ m 程度または 10 $\mu$ m 以下に得ることができ、ビーム径小さい低エミッタンス電子ビーム (エミッタンスが 0.1mm-mrad 以下、ビームサイズが 10 $\mu$ m) が実現できる。

フォトカソード RF 電子銃におけるフェムト秒短パルス電子ビームの発生については、カソード近傍におけるパルス増大が考えられるが、現在銅カソードを利用してフェムト秒レーザーの励起によりフェムト秒短パルス電子ビームの発生[6-8]に成功しており、特に問題がないと考える。

#### 4. MeV 電子線回折の実験結果

時間分解電子顕微鏡の開発と共に、フォトカソード RF 電子銃を利用したフェムト秒時間分解電子線回折の開発も進行している。電子線回折の研究[6-8]では、フォトカソード RF 電子銃に長さ 70fs のレーザーパルスを銅カソードに励起して、パルス幅が 100 フェムト秒、エミッタンスが 0.1mm-mrad、エネルギー分散が  $10^{-3}$ 、パルス当りの電荷量が 0.1~1pC の電子ビームの発生を行っている。発生した電子ビームを利用して、電子線回折を通してフェムト秒時間領域での光誘起相転移ダイナミクス of 解明を行っている。

図 2 に、昨年度 7 月に完成したフォトカソード RF 電子銃を用いた MeV 電子線回折システムを利用して観測した厚さ 70nm の多結晶アルミニウム膜の MeV 電子線回折像を示す。典型的なアルミニウムの Debye-Scherrer リング ( $1.4\text{\AA}^{-1}$ ) がはっきりと観測することができた。また、観測した回折パターンを 300keV の透過型電子顕微鏡の回折像 (図 3) と比較し、よく一致していることからフォトカソード RF 電子銃は電子線回折や電子顕微鏡に応用できることを示している。

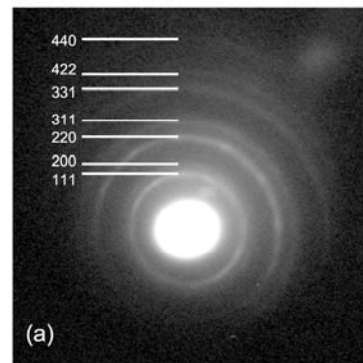


図 2 厚さ 70nm の多結晶アルミニウム膜の MeV 電子線回折像を示す。

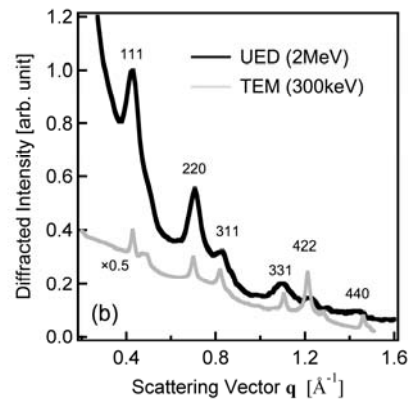


図 3 MeV 電子線回折パターンと 300keV 透過型電子顕微鏡の測定結果との比較

#### 参考文献

- [1] A. Baltuska, et al., Nature 421, 2003, 611.
- [2] Z. Huang, S. Krinsky, Nucl. Instrum. Methode Phys. Res A528, 2006, 28.
- [3] M. R. Armstrong, et. al., Ultramicroscopy 107, 2007, 356.
- [4] T. LaGrange, et. al., Appl. Phys. Lett. 89, 2006, 044105.
- [5] J. A. Berger, et. al., Microsc. Microanal. 15(2009) 298.
- [6] J. Yang, et al., IPAC10, Kyoto, May 24-28, 2010.
- [7] J. Yang, K. Kan, N. Naruse, Y. Yoshida, K. Tanimura, J. Urakawa: Radiat. Phys. Chem. 78, (2009) 1106.
- [8] J. Yang, et. al., Nucl. Instrum. Methode Pyhs. Re. A, in press.