

高強度フェムト秒レーザー加速電子を用いた 超高速時間分解電子線回折法の開発

ULTRA-FAST ELECTRON DIFFRACTION USING ELECTRONS ACCELERATED BY INTENSE FEMTOSECOND LASER PULSES

阪部周二^{#,A,B)}, 橋田昌樹^{A,B)}, 井上俊介^{A,B)}, 時田茂樹^{A,B,*)}
Shuji Sakabe^{#,A,B)}, Masaki Hashida^{A,B)}, Shunsuke Inoue^{A,B)}, Shigeki Tokita^{A,B,*)}

^{A)} Institute for Chemical Research, Kyoto University

^{B)} Graduate School of Science, Kyoto University

Abstract

We have demonstrated to use electron pulses accelerated by intense femtosecond laser pulses and self-compressed for ultrafast electron diffraction (UED). The electron pulses are generated by irradiating tightly focused terawatt femtosecond laser pulses on a polyethylene foil target, then, the pulses are compressed by using an achromatic bending magnet system. These femtosecond electron pulses have an intensity to demonstrate a single-shot diffraction pattern.

1. はじめに

物質科学やナノ科学が飛躍的に発展しているが、物質の状態やその変化を調べるには高い空間と時間分解能をもつ観察手法が必要となる。物質の原子状態を知ることができる電子顕微鏡は今日までの半世紀の間にレンズの高度化、高エネルギー電子加速管の開発、そして収差補正技術の発明などのブレークスルーを経てナノメートル以下の空間分解能を得られるまでに発展してきた。他方、時間分解能技術については空間分解能と比べてみると大きな遅れがあると言える。物質内部のナノメートルスケールで起こる諸現象は究極的には単一原子の運動により決まる。物質の極微細状態変化のような構造的な動力学を単一原子の振動時間尺度（数 100fs）で直接観察できると唯一の方法と考えられるのが時間分解電子線回折（TRED）である。TRED を用いて、固体の相転移、気相の過渡的な分子構造、表面力学の観察が試みられてきたが、今日までは TRED 実験はみな数 ps の時間分解能に留まっている。フェムト秒の時間分解で電子線回折により構造変化を直接測定する手法の開発は大きな挑戦的課題である。特に、十分な強度のフェムト秒電子パルスの発生が絶対不可欠である。最近の当該研究はすべて電子を低強度フェムト秒レーザーとフォトカソードを用いて発生するものである。この方式では、レーザーパルス幅程度の電子線を発生できるが、回折に利用できる数 100keV のエネルギーにまで加速しなければならない。この間に「空間電荷効果」によりパルス幅は大きく広がる。この問題を解決する手法として、電子バンチ（パルス）密度を下げる（究極には 1 個）などが報告されているが、これらはいずれも物質の高速時間分解回折のための電子線源に求められる仕様からほど遠いものである。すなわち、諸現象に見られる構造的な動力学の殆どが不可逆的であるので、単一パルスにより回折像を捉えなければならない。

そのため回折に適したエネルギーでかつ十分な電子量の極短パルスが不可欠である。筆者らは超高強度極短パルスレーザー生成プラズマ中で加速される高エネルギー電子を用いて、単一パルスで数 100fs 以下の時間分解回折像の撮像を実証し、時間分解電子線法（UED: Ultrafast Electron Diffraction）の開発に取り組んでいる。

2. レーザー加速電子線回折実験装置

UED を実現するための最も重要な課題は高輝度の短パルス電子線源を開発することである。超高強度極短パルスレーザーを薄膜に集光照射すると、光場により薄膜表面に生成されるプラズマ電子を高エネルギーに加速することができる。我々はこのレーザー加速電子の UED への応用を研究している^[1]。その主な課題は(1)レーザー加速電子の特性測定と加速機構の解明、(2)レーザー加速電子の高輝度化、(3)レーザー加速電子の短パルス化、(4)UED の予備実証である。これにより、100fs 以下の時間分解能で数 100keV の電子により単一パルスによる電子線回折像を取得する手法を確立することが目標である。

筆者らが行った予備実験配置を Figure 1 に示す^[2]。EMCCD カメラ以外の装置はすべて約 10^{-2} Pa に減圧された真空容器内に配置される。京都大学化学研究所が有する高強度レーザー装置（フェムト秒チタンサファイアレーザー）T⁶-laser からのレーザービーム（波長 800nm, 140mJ, パルス幅 150fs, 直径約 50mm）を等分割し、一方は電子加速ビーム、もう一方はパルス幅測定ビームとして用いた。後者のビームラインには可変光学遅延を挿入している。それぞれのビームを軸外し放物面鏡（焦点距離 165mm）で集光し、集光点のビーム幅は $6 \times 4 \mu\text{m}^2$ である。その結果、集光点の光強度は約 10^{18}W/cm^2 に達する。電子加速ビームをポリエチレン膜（厚さ 10 μm ）のターゲットに入射角 10°で照射し、電離したターゲットの電子は主として $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ 加熱や真空加熱により

[#] sakabe@laser.kuicr.kyoto-u.ac.jp

* 現所属：大阪大学レーザーエネルギー学研究センター

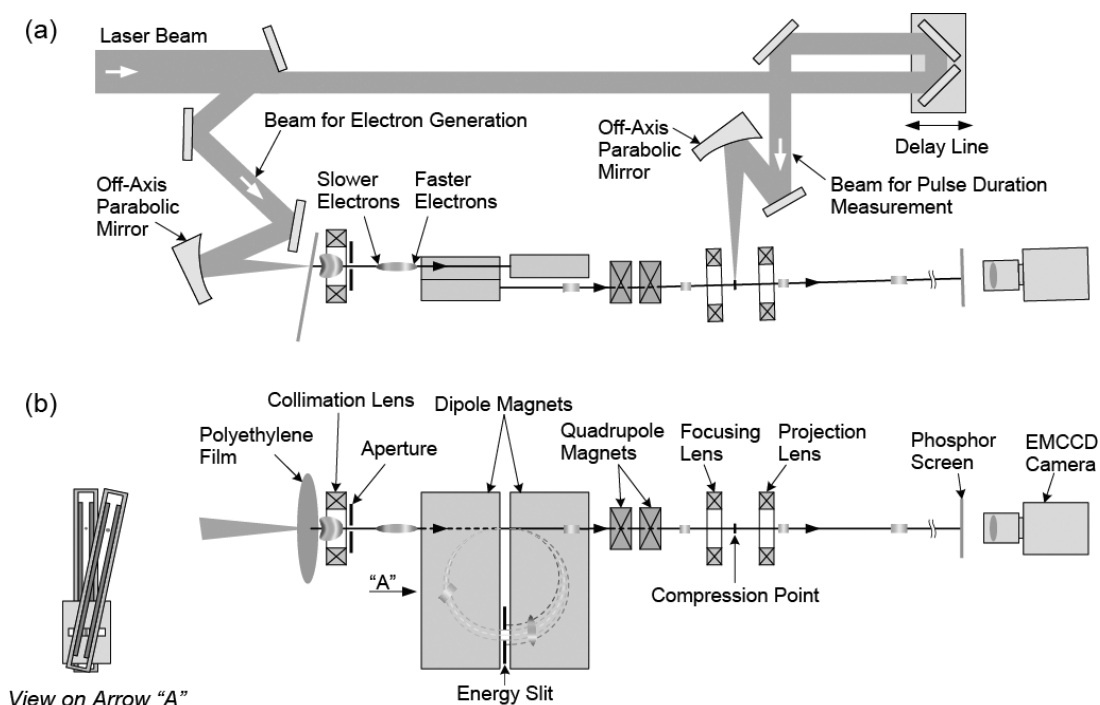


Figure 1: Schematic diagram of the experimental setup of electron pulse compression and pulse duration measurement: (a) top view and (b) side view.

加速・放出される。よって、初期の電子パルス幅はレーザーのパルス幅と同程度であると考えられ、実際、別の実験でこの事は検証されている^[3]。このとき電子は集光点と同程度の領域から放出するが指向性が弱いため、永久磁石により構成した磁気レンズとアパーチャ（直径 1mm）により発散角の小さい電子ビームへと整形した^[4]。ターゲットから放出した電子は 100keV~1MeV を中心とする幅広いエネルギー分布をもつが、磁気レンズを通過した時点でおよそ 350keV を中心としたある程度狭いエネルギー範囲のみが選択される。整形した電子ビームを磁場強度 63mT の偏向磁石を 2 台用いて 180°を 2 回（合わせて 360°）偏向する。偏向磁石へのビームの入射・出射のため、第 2 の偏向磁石を第 1 の磁石に対し 12°の角度をつけて配置し、エネルギー選択のため 180°偏向後のビーム行路上に幅約 1mm スリット（350keV において約 1%の運動量幅に対応）を配置している。さらに、360°偏向後のビーム行路上に 2 台の四重極電磁石を配置した。2 台の四重極電磁石の電流値を調節することにより、スクリーン上での電子ビーム径が最小となるように電子ビームの水平・垂直方向の広がり角を調整した。また、四重極電磁石の中心軸とビーム軸をずらすことにより、偏向磁石で生じる横方向のエネルギー分布の偏りを補正している。四重極電磁石通過後およそ 0.1m の位置（ターゲット位置か 0.45m）で電子パルスは圧縮され、パルス時間幅が最小となる。この位置で電子パンデロモーティブ力による電子の散乱を観測することによりパルス幅を測定できる。高い時間分解能を上述の装置を用いて行った電子回折測定の実証実験

ルスと高強度レーザーパルスを垂直に交差させ、ポ得るため電子ビームは第 2 の磁気レンズにより 70 μ m まで収束し、測定レーザービーム（ビーム幅 6 \times 4 μ m²）と交差させ、第 3 の磁気レンズにより再び平行ビームに戻した後、蛍光スクリーンに入射する。

3. 結果

3.1 電子パルス幅測定

電子パルスとレーザーパルス間の遅延時間を変化させ電子線像を観測する。レーザービーム進行方向の横方向にパンデロモーティブ力により散乱された電子の像に含まれる散乱電子量を遅延時間に対してプロットするとトレースが得られる。これは電子パルスとレーザーパルスのエンベロープの相互相関に対応する。各々のパルスがガウス関数のエンベロープを持つと仮定した場合、電子パルスの時間幅（半値全幅）は 524 \pm 59 fs と見積もられた（この結果は論文に発表した値を記しているが、その後の実験で 300fs に達している）。この時間幅は電子加速レーザービームの時間幅（150fs）と比較して大きい。現時点でこの原因は明らかではないが、レーザーとプラズマの相互作用における電子放出において、何等かのパルス幅を伸ばす効果が存在することを示唆している。

3.2 単一パルス電子線回折の実証実験

について述べる。厚さ 10 nm の金の単結晶 (001) 薄膜を四重極磁石後のビーム行路上に設置し、観察試料として用いた。パルス幅測定で電子ビーム収束

に用いた第二および第三の磁気レンズを取り除き、スクリーンに近づくにつれ徐々にビームが収束するように四重極磁石を調整する。試料位置での電子ビームの直径は約 0.8mm であり、パルスあたりの電荷量は 6fC である。試料により散乱された電子は 0.41m 後方の蛍光スクリーンへ入射し、スクリーン上で生じた回折パターンは EMCCD カメラにより撮影する。単一ショット撮影により得られた回折像を Figure 2 に示す。明瞭な (020) 及び (220) 面の回折スポットが観察でき、単一ショット撮影に十分なビーム強度が得られていることがわかる。既知の金単結晶の格子定数より、電子ビームのエネルギーは 356keV と算出された。

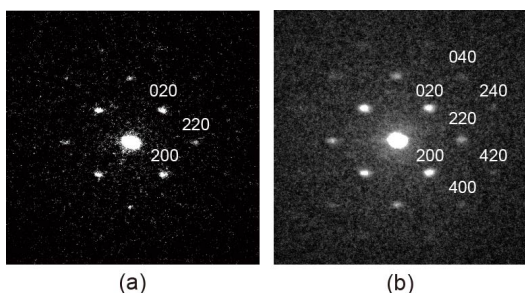


Figure 2: Diffraction patterns obtained from gold (001) single-crystal sample with (1) single shot and (b) 10-shot irradiation.

3. 結 言

以上の成果から、我々は 350keV のレーザー加速電子ビームを 500fs に圧縮を世界で初めて実証し、それを用いて単一パルスでの電子線回折像の撮像に成功した。これらは最終目的に向けて研究を進展させるための有意義な成果であり、既に、レーザー装置の短パルス化とパルスの高品位化などの装置改良を実施し、新しい線源の探求に取り組んでいる^[5,6]。また、この高強度短パルスレーザー加速された短パルス電子は電子偏向法の電子源に用いてプラズマや物質近傍の電磁場の測定にも有効である。

謝 辞

本研究は科学研究費補助金（基盤研究(A) (18206006), 挑戦的萌芽研究(22654050), 基盤研究(S) (23226002), 基盤研究(C) (24540537), 挑戦的萌芽研究(25600138)), 山田科学財団, 三菱財団, 京都大学のコーステージバックアップからのご支援を頂き行われております。研究のご支援に深く感謝申し上げます。

参考文献

- [1] S. Tokita, S. Inoue, S. Masuno, M. Hashida, and S. Sakabe: "Single-Shot Ultrafast Electron Diffraction with a Laser-Accelerated Sub-MeV Electron Pulse", *Applied Physics Letters* **95**, 111911 (2009).
- [2] S. Tokita, M. Hashida, S. Inoue, T. Nishoji, K. Otani, and S. Sakabe: "Single-Shot Femtosecond Electron Diffraction with Laser-Accelerated Electrons: Experimental Demonstration of Electron Pulse Compression", *Physical Review Letters* **105**, 215004 (2010).
- [3] S. Inoue, S. Tokita, K. Otani, M. Hashida, and S. Sakabe: "Autocorrelation measurement of fast electron pulses emitted through the interaction of femtosecond laser pulses with a solid target", *Physical Review Letters* **109**, 185001(2012).
- [4] S. Inoue, S. Tokita, T. Nishoji, S. Masuno, K. Otani, M. Hashida, and S. Sakabe: "Single-shot microscopic electron imaging of intense femtosecond laser-produced plasmas", *Review of Scientific Instruments* **81**, 123302 (2010).
- [5] S. Tokita, K. Otani, M. Hashida, T. Nishoji, S. Inoue, M. Hashida, and S. Sakabe: "Collimated Fast Electron Emission from Long Wires Irradiated by Intense Femtosecond Laser Pulses", *Physical Review Letters* **106**, 255001 (2011).
- [6] H. Nakajima, S. Tokita, S. Inoue, M. Hashida, and S. Sakabe: "Divergence-free transport of laser-produced fast electrons along a meter-long wire target", *Physical Review Letters* **110**, 155001(2013).
- [7] S. Inoue, S. Tokita, K. Otani, M. Hashida, and S. Sakabe: "Femtosecond electron deflectometry for measuring transient fields generated by laser-accelerated fast electrons", *Applied Physics Letters* **99**, 31501 (2011).