

高強度短パルスレーザープラズマ加速電子を用いた超高速電子線回折法の実証
Demonstration of ultra-fast electron diffraction using electrons accelerated in plasmas produced by an
intense short pulse laser
(応用物理学会推薦)

代表研究者 京都大学 阪部 周二 Kyoto University Shuji SAKABE
共同研究者 京都大学 橋田 昌樹 Kyoto University Masaki HASHIDA
共同研究者 京都大学 時田 茂樹 Kyoto University Shigeki TOKITA
共同研究者 京都大学 大谷 一人 Kyoto University Kazuto OTANI

The key issue to realize single-shot ultrafast electron diffraction (UED) is to develop intense short electron-pulse sources. With conventional UED instruments, an electron pulse is generated at a photocathode irradiated by a femtosecond laser pulse and accelerated by an additional external static electric field. The amount of electrons in the pulse is limited because the electron pulse expands during its flight by space-charge forces in the pulse. We have been developing the UED using laser-accelerated electrons. Two technical issues must be developed to realize this UED, that is, pulse compression of electron pulse and high intensity electron source. We have demonstrated longitudinal compression of laser-accelerated electron pulses for the first time. Accelerated by a femtosecond laser pulse with an intensity of 10^{18} W/cm², an electron pulse with an energy of around 350 keV and a relative momentum spread of about 10^{-2} was successfully compressed to a 500-fs pulse at a distance of about 50 cm from the electron source by using a magnetic pulse compressor. This pulse was used to generate a clear diffraction pattern of a gold crystal in a single shot. This method solves the space-charge problem in ultrafast electron diffraction.

研究目的

近年、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し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（固体の相転移、化学反応の動的パスウェイ、生物学的な機能過程など）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

を直接測定するには大きな挑戦を行なわなければならない。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。本研究では、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することを目的とする。

経過・考察

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形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[1-5]への応用を研究している。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 100kV 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ことが最終的な目標である。

(1)に関しては、薄膜にレーザーを照射して発生する電子放射空間分布、及び電子源の強度空間分布を測定し、重要な知見を得た。①金属薄膜の方がポリエチレンなどの有機薄膜よりも 10 倍程度多くの電子を発生するが、線源がマルチスポットになるなどの異常現象が生じる。②放射電子は薄膜面方向に沿って強い分布を示し、金属薄膜の場合は顕著になる。これらの成果をもとに、(2)には、金属ワイヤーをターゲットに用いる事で、ワイヤー方向に指向性のよい電子線が発生すると考察し実験を行った。その結果、ワイヤー側面にレーザーを集光照射し、そこより発生した電子はワイヤーに巻き付くように開放端に進行し、端より指向性良く放射することを世界で初めて見いだし。将来の UED の電子線源としての潜在性を期待でき、今後の詳細研究を展開することになった。(3)には、線質のよいポリエチレン薄膜を用いて当面実施している。本報告書では、(3)、(4)について述べる。

電子パルス圧縮およびパルス幅測定実験

実験配置を Fig. 1 に示す。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。フェムト秒チタンサファイアレーザー装置からのレーザービーム（波長 800 nm、140 mJ、パルス幅 150 fs、直径約 50 mm）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 165 mm）で集光し、集光点のビーム幅は $6 \times 4 \mu\text{m}$ 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 $10\ \mu\text{m}$) 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[8]により加速・放出される。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 $1\ \text{mm}$) により発散角の小さい電子ビームへと整形した。ターゲットから放出した電子は $100\ \text{keV}\sim 1\ \text{MeV}$ 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 $350\ \text{keV}$ 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 $63\ \text{mT}$ 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 $1\ \text{mm}$ スリット ($350\ \text{keV}$ 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。四重極磁石通過後およそ $0.1\ \text{m}$ の位置 (ターゲット位置から $0.45\ \text{m}$) で電子パルスは圧縮され、パルス時間幅が最小となる。この位置で電子パルスと高強度レーザーパルスを垂直に交差させ、ポンデロモ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[9]。高い時間分解能を得るため電子ビームは第 2 の磁気レンズにより $70\ \mu\text{m}$ まで収束し、測定レーザービーム (ビーム幅 $6\times 4\ \mu\text{m}$) 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。

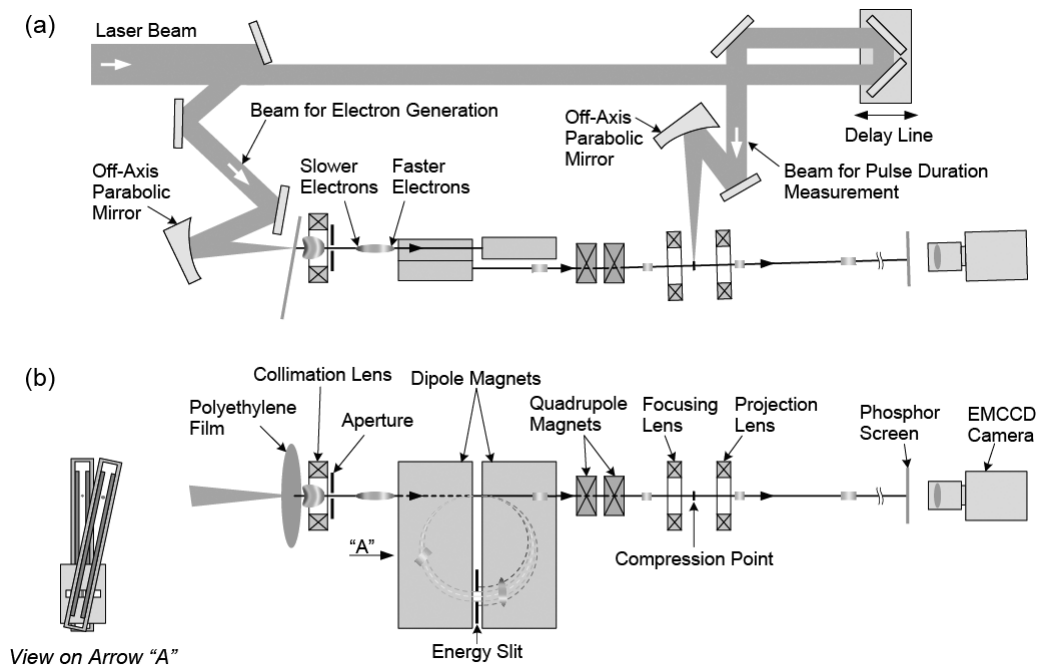


Fig.1 Schematic diagram of the experimental setup of electron pulse compression and pulse duration measurement: (a) top view and (b) side view.

電子パルスとレーザーパルス間の遅延時間を変化させたときに得られたスクリーンの画像を Fig.2 (a) に示す。画像は電子レンズの像回転により約 30° 右回りに回転している。スクリーン

上で左下から右上にかけて映っている線がポンドロモーティブ力により散乱された電子の信号であり、レーザービーム進行方向の横方向に生じる。遅延時間がゼロから離れるにつれ、散乱信号は小さくなっていることがわかる。散乱電子がレーザー光から受けた横方向運動量の総和に対応する信号量を各画像から算出し、遅延時間に対してプロットすると Fig.2 (b) の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 [9]。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 ± 59 fs と見積もられる。この時間幅は電子加速レーザービームの時間幅（150 fs）と比較して著しく大きい。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。

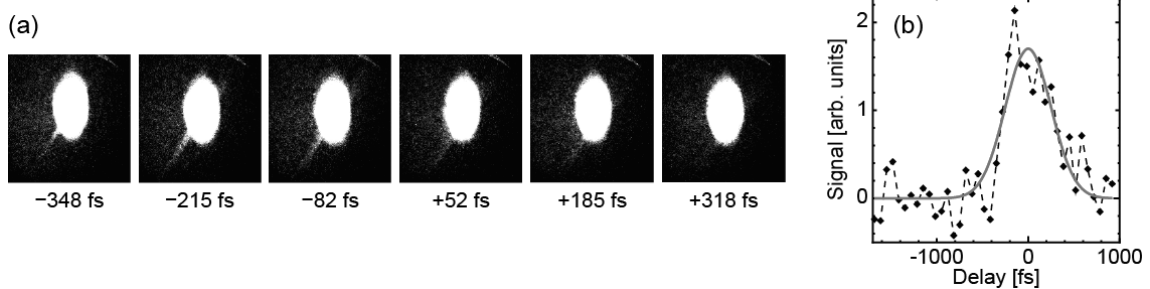


Fig.2 (a) Images of electron beam scattered by ponderomotive force at each delay time of the driver laser pulse, (b) Signal trace of the scattered electrons with a Gaussian fit. FWHM of the Gaussian fit is 593fs.

単一パルス超高速電子回折の実証実験

上述の装置を用いて行った電子回折測定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 0.8 mm であり、パルスあたりの電荷量は 6 fC である。試料により散乱された電子は 0.41 m 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 Fig. 3 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 356 keV と算出された。

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。現在、レーザー装置の短パルス化、パルスの高品位化などの装置改良と上述のワイヤーターゲットのような新しい線源の探求に取り組んでいる。

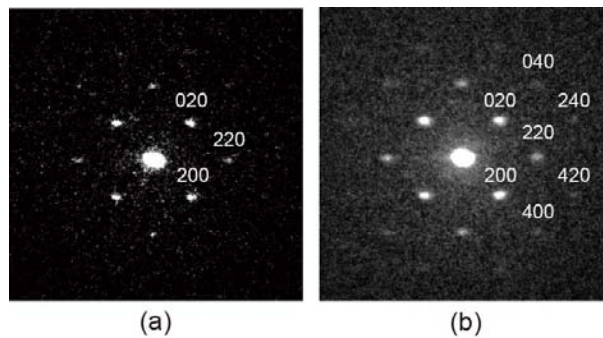


Fig.3 Diffraction patterns obtained from gold (001) single-crystal sample with (1) single shot and (b) 10-shot irradiation.

参考文献

- 1) R. Srinivasan *et al.*, *Helv. Chim. Acta* **86**, 1761 (2003).
- 2) W. E. King *et al.*, *J. Appl. Phys.* **97**, 111101 (2005).
- 3) J. R. Dwyer *et al.*, *Phil. Trans. R. Soc. A* **364**, 741 (2006).
- 4) A. H. Zewail, *Annu. Rev. Phys. Chem.* **57**, 65 (2006).
- 5) C. T. Hebeisen *et al.*, *Opt. Express* **16**, 3334 (2008).
- 6) S. Tokita *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 111911 (2009).
- 7) S. Tokita *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 215004 (2010).
- 8) W. L. Kruer *et al.*, *Phys. Fluids* **28**, 430 (1985).

研究発表

口頭発表 (以下、筆頭著者のみ記載。代表者・共同研究者以外はそれぞれが直接指導した大学院生)

- (1) 井上峻介, 他, 「レーザー生成短パルス電子線を用いたレーザープラズマ周辺の過渡電場の測定」, 日本物理学会 2010 年秋季大会 (大阪府立大学・堺市) 2010. 09. 23-26.
- (2) 時田茂樹, 他, 「レーザー加速 sub-MeV 電子ビームのフェムト秒パルス圧縮」, 日本物理学会 2010 年秋季大会 (大阪府立大学・堺市) 2010. 09. 23-26.
- (3) 二正寺敏彦, 他, 「高強度短パルスレーザーと薄膜との相互作用による電子線放射の特性」, レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会 (電気通信大学・調布市) 2011. 01. 09-10.
- (4) 井上峻介, 他, 「電子結像系とレーザー生成電子パルスを用いたフェムト秒レーザープラズマ近傍の電場の超高速時間分解測定」, レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会 (電気通信大学・調布市) 2011. 01. 09-10.
- (5) 木幡清人, 他, 阪部周二, 「パルスコントラスト改善のためのインライン型プラズマミラーの開発～反射率のレーザー強度依存性の測定～」, レーザー学会学術講演会第 31 回年次大会 (電気通信大学・調布市) 2011. 01. 09-10.
- (6) S. Tokita, *et al.*, "Generation of femtosecond electron pulses by laser acceleration and magnetic pulse compression", 3rd Japan-France Workshop and School on High Density Energy Science", Chamonix, France, 2011.01.09-14.
- (7) S. Inoue, *et al.*, "Electron Microscopic Study for Intense Femtosecond Laser Plasma Interactions", 3rd Japan-France Workshop and School on High Density Energy Science", Chamonix, France, 2011.01.09-14.
- (8) 井上峻介, 他, 「2 本のフェムト秒レーザービーム生成電子線間相互作用の時間・空間分解

- 測定」, 日本物理学会 第 66 回年次大会 (新潟大学・新潟市) 2011. 03. 25-28. (東北震災のため中止、予稿論文集は発表される).
- (9) 時田茂樹, 他, 「高強度短パルスレーザー照射金属ワイヤーの軸方向へ放射される高速電子の特性」, 日本物理学会 第 66 回年次大会 (新潟大学・新潟市) 2011. 03. 25-28. (東北震災のため中止、予稿論文集は発表される).
- (10) S. Tokita, *et al.*, "SUltrafast electron diffraction using femtosecond electron pulses from laser-produced plasmas", Conference on lasers and Electro Optics 2011 (CLEO2011) (Baltimore, USA) 2011.05.01-06.
- (11) S. Sakabe, *et al.*, "Single-shot ultrafast electron diffraction using electrons accelerated by an intense femtosecond laser pulse", CLEO/Europe-EQEC 2011, Munich, Germany, 2011.05.22-26.
- (12) S. Tokita, *et al.*, "Femtosecond time-resolved electron diffraction with laser-plasma sub-MeV electron sources", 3rd International Symposium Laser-Driven Relativistic Plasmas Applied to Science, Energy, Industry, and Medicine (LDRP) 2011, Kyoto, Japan, .2011.05.30 -06.02.
- (13) K. Kowata, *et al.*, "Development of the Plasma Mirror for Contrast Improvement of Ultra Short Intense Lasers", Plasma Conference 2011 (石川県立音楽堂・金沢市) 2011.11.22-25.
- (14) H. Nakajima, *et al.*, "Long-distance Guidance of Fast Electrons with Fine Wires Irradiated by Intense Femtosecond Laser Pulses", Plasma Conference 2011 (石川県立音楽堂・金沢市) 2011.11.22-25.
- (15) S. Inoue, *et al.*, "Femtosecond electron deflectometry to measure the emission time of the laser-produced fast electrons from a solid target", Plasma Conference 2011 (石川県立音楽堂・金沢市) 2011.11.22-25.
- (16) S. Tokita, *et al.*, "Highly directional sub-MeV electron emission form long wires irradiated by intense laser pulses", Plasma Conference 2011 (石川県立音楽堂・金沢市) 2011.11.22-25.
- (17) 時田 茂樹, 他, 「高強度短パルスレーザー生成プラズマからの THz 発生」, レーザープラズマ粒子加速研究会 (光産業創成大学院大学・浜松市), 2011. 12. 05-06.
- (18) 木幡清人, 他, 「パルスコントラスト改善のためのインライン型プラズマミラーの開発 II ~パルスコントラストの測定~」, レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会 (TKP 仙台カンファレンスセンター・仙台市) 2012. 01. 30 -02. 01.
- (19) 井上峻介, 他, 「フェムト秒レーザー生成高速電子の放出時間測定のための自己相関法」, レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会 (TKP 仙台カンファレンスセンター・仙台市) 2012. 01. 30 -02. 01.
- (20) 中島宏章, 他, 「高強度短パルスレーザー照射極細金属ワイヤーによる高速電子の m 級長距離誘導」, レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会 (TKP 仙台カンファレンスセンター・仙台市) 2012. 01. 30 -02. 01.

誌上発表

- (1) S. Tokita, K. Otani, 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).
- (2) 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**, 031501 (2011).