

# テラヘルツ光を用いた超短電子ビームの単色化

## THz-wave-driven production of narrow-energy ultrashort electron beams

(原子衝突学会推薦)

代表研究者 理化学研究所 森本 裕也 RIKEN Yuya MORIMOTO

Pulsed electron beams usually have an energy-distribution width which is much wider than that required for their temporal durations. The wide energy spread prevents the application to high-resolution electron energy loss spectroscopy. The flux of pulsed electron beams is usually very small. Therefore, the use of conventional electron-beam monochromator with a slit causing a large loss of current is not practical. In this work, we proposed and aimed at developing a novel scheme for achieving monochromatic pulsed electron beams. Our scheme involves a THz field which provides time-dependent velocity modulation to electrons and monochromatize them when the electron pulse is injected at the right time. To demonstrate the scheme, we designed and developed a magnetic-field-type electron energy analyzer giving a high energy resolution of less than a few hundreds of milli-electron-volts. In addition, we developed an optical system for producing and detecting the THz field. Successful demonstration of the new monochromatization scheme will pave the way for spectroscopic observation of ultrafast lattice/vibrational dynamics in an electron microscope.

### 研究目的

高速現象の測定において、時間、空間やエネルギーの分解能は、観測できる過程を制限する重要なパラメーターである。そして、既存の分解能を上回る装置や手法の開発は、新たな発見に繋がる。近年の電子ビーム技術の発展により、サブ・ピコ秒（1ピコ秒=10<sup>-12</sup>秒）の時間幅を持つ電子パルスを用いた、電子顕微鏡による高速現象の観測が盛んに行われるようになった。しかしながら、超短パルス電子ビームは、世界中の装置において、フーリエ変換限界を超えて不必要に幅広いエネルギースペクトルを有するという欠点がある。例えば、1ピコ秒パルスに必要なエネルギー幅はわずか0.002 eVであるが、超短パルス電子ビームは通常、1 eV前後のエネルギー幅を有する。そのため、電子顕微鏡が本来得意とする、原子レベルの高い空間分解能でのイメージングやエネルギー損失分光に、超短パルス電子ビームは適していない。電子ビームの単色化には、通常、電子線の一部のみを切り出すフィルターが用いられる。しかしながら、超短パルス電子ビームは、パルスとい

う特性上、直流電子線と比較してその線量が非常に小さく（通常3桁から6桁小さい）、フィルターの使用は得策ではない。

そこで、本研究では、光（テラヘルツ光）を用いたパルス電子ビームの単色化技術の開発に、世界で初めて成功することを目指した。本課題で開発する単色化技術は、ビーム強度の低下が極めて小さいため、パルス電子ビームに最適である。本課題の成功によって、時間・空間・エネルギーの3つの分解能が全て高水準にある、極限的な測定への道が拓かれると期待される。

### 研究経過

電子ビームの単色化には、これまで、(1)プリズムを用いてエネルギー（波長）ごとに空間的に分け、(2)スリットで切り出す、という手法が用いられてきた。この操作は、光の単色化でも使用される。本課題で開発を行った手法では、これとは本質的に異なる

る操作を行う。(1)電子パルスを真空中で飛行させる。そうすると、パルスの前側にはエネルギーの高い(=高速の)電子、後ろ側にエネルギーの低い(=低速の)電子が位置する。(2)電子は電荷を有するので、電磁場と相互作用する。光によって、パルスの前側を減速し、後ろ側を加速することで、速度が揃い、電子ビームが単色化される。電子ビームのパルス幅(ピコ秒)の周期を有するテラヘルツ光が本目的には最適である。従来の「切り出す」操作と異なり、「光で速度変調する」ことで、ビーム内の大部分の電子が利用できるという大きな利点がある。本研究課題では、この新しい手法の開発のため、高分解能エネルギー分析器の設計・製作およびピコ秒パルステラヘルツ波の発生に主に取り組んだ。以下ではそれぞれについて詳しく説明する。

本課題では、我々が独自に開発を進めている装置で得られる運動エネルギー30 keV(速さが真空中の光速の33%)の電子ビームを実験に用いた。エネルギーが数十 keV やそれ以上の電子ビームのエネルギー測定には、静磁場型の分析器が一般的に用いられるが、市販品は極めて高価なうえ、30 keV 未満の比較的低速の電子ビームを対象とした商品は我々の知る限り存在しない。そこで我々は、エネルギー30 keV およびそれ以下の電子ビームを0.1 eV 程度の高いエネルギー分解能でエネルギー測定できる分析器を自ら設計した。

我々が設計したエネルギー分析器は、静磁場による90度偏向型である。分析器は周囲に銅線が巻かれたパーマロイ板2枚が平行に設置された構造をしており、その間を電子ビームが飛行する。電子ビームが飛行する箇所は超高真空である。我々は市販の磁場計算ソフトウェアを用いて電子ビームが飛行する空間の3次元磁場分布を計算し、それを入力とした自作のソフトウェアで電子の飛行軌道シミュレーションを行うことで、エネルギー分析器の形状の最適化と性能評価を行った。

我々は測定試料から200 mmの位置に入口を持ち、曲率半径100 mmで電子ビームを90度だけ偏向させる分析器を設計した。入口側のパーマロイは電子ビームに対して垂直に、出口は垂直から49度傾斜させることで、エネルギー分散面とそれに垂直な面の両方向でビームの集束が起こる二方向集束型の最適な設計を得た。エネルギー分散の大きさは、30 keV 電子に対して8  $\mu\text{m}/\text{eV}$  であり、エネルギー分解能は0.26

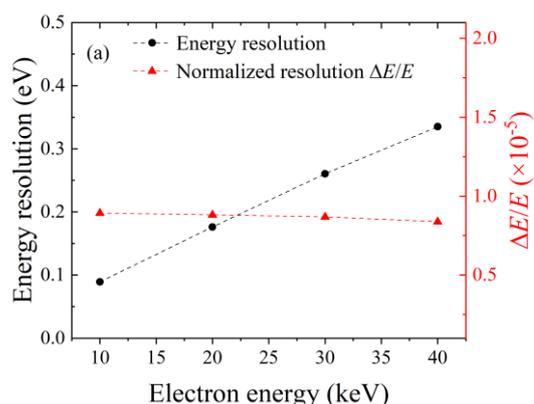


Fig 1. Simulated resolution of the electron energy spectrometer developed in this work. Left axis: FWHM resolution in eV. Right axis: resolution normalized by electron's kinetic energy.

eV(半値全幅)と見積もられた。他の運動エネルギーでのエネルギー分解能の見積もり値を図1にまとめている。運動エネルギーで規格化された分解能(図1の赤線)は、電子の運動エネルギーにあまり依存せず、おおよそ $9 \times 10^{-6}$ であった。これらの見積もられた値は、我々が設計した分析器が、本課題の目的の達成に十分な性能を有することを示している。

次に、エネルギー分析器の製作を試みた。まずはパーマロイより加工が容易なアルミニウムにて試作機を製作し、設計通りに分析器が組み上がることを確認した。次にパーマロイにて実際の分析器の製作を試みたが、残念ながら部材の納期の都合により本研究期間内での製作の完了には至らなかった。

90度偏向型の静磁場型分析器と組み合わせて用いる付属機器の設計および製作も行った。具体的には、分析器に入射する電子の方向を微調整するための8極子型偏向器とエネルギー分析された後の電子をマイクロチャンネルプレート検出器上に拡大投影するための8極子拡大レンズを設計した。設計手順は分析器と同様で、3次元磁場分布のシミュレーションと飛行軌道シミュレーションを組み合わせて行った。設計された偏向器およびレンズは製作も研究期間内に完了した。

更に、上述の0.26 eVよりも高いエネルギー分解能を得るために、収差補正器の設計にも着手した。0.26 eVの制限は、静磁場型分析器が有する、入射電子の角度広がりに対する収差が主な原因である。

我々は入射電子の角度広がりに対して2次および3次までの収差を補正可能な収差補正器の構造を得ることを目的にシミュレーションを開始し、0.26 eVよりも高い分解能を得ることを実際に確認した。現在その精密な設計に取り組んでいる。

ピコ秒パルステラヘルツ波は、我々が所有する波長1030 nm、パルス幅300 fs、繰り返し200 kHzの高強度レーザー光源を用いて行った。波長1030 nmのレーザー光をテラヘルツ波に変換するための非線形光学結晶としては、3 mm厚のGaP結晶を用いた。レーザー光を長焦点距離( $f = 250$  mm)でGaP結晶に集光することで、非線形光学過程である光整流(あるいは差周波発生)の効果によってテラヘルツ光が発生する。テラヘルツ光の発生効率が本質的に極めて低く(典型的には波長1030 nmのレーザー光からの変換効率は $10^{-6}$ )、発生したテラヘルツ光が微弱であったため、第一の試みでは、その強度を計測することが出来なかった。そこで、市販のパワーメーターでも測定可能な高強度のテラヘルツ光を発生させるために改良したレーザー光の集光方法を考案し、試みようとした。その最中、不運なことに、レーザー装置の一部(レーザービーム位置安定化システム)が故障し、実験の継続が不可能となってしまった。

テラヘルツ光の発生と並行して、発生したピコ秒パルステラヘルツ光の波形を測定するための電気光学サンプリング用の光学装置を開発した。テラヘルツ光とプローブ用の近赤外パルス光を穴あき放物面鏡で合流させ、非線形光学結晶に集光した後、1/4波長板とウォラストンプリズムを用いて、テラヘルツ波によるプローブ光の偏光方向の回転を差分増幅検出器で測定するというものである。上述したレーザー装置の故障のため、テラヘルツ光にて波形計測を行うことは叶わなかったが、他の装置で得られたパルス中赤外光の波形計測を実施し、その動作および性能を確認した。

## 考察

以上の通り、本課題の目標を達成するための準備は研究期間内に完了した。エネルギー分析器の設計に関しては下記の論文や誌上発表を行った。その一方で、予期せぬ部材の長納期化やレーザー装置の故障により、目標の完全な達成には至らなかった。静磁場型エネルギー分析器は現在製作中であり、数か月以内にはその性能評価を実験的に見える見込みで

ある。レーザー装置に関しては現在でも故障中であり、欧州からの修理品の到着を待っている。レーザー装置の修理が完了し次第、本課題の目標達成に向けた研究を全力で行いたい。

本課題の実施期間中に、我々の研究内容と酷似した実験研究がイスラエルの研究チームから発表された(Phys. Rev. Lett. 131, 145002, 2023)。しかしながら、未だ応用実験は報告されておらず、我々が追いつき、追い越すチャンスは十分にあると考える。我々は、応用実験として、従来の手法では不可能であった、サブ・ピコ秒エネルギー損失分光や高速自由電子とフォノン・ポラリトンとの結合観測を世界に先駆けて達成すべく、入念な準備を進めている。

## 研究の発表

### 口頭発表

1. Y. Morimoto, "Electron-atom scattering with attosecond bunched pulses," ACHIP+ workshop, Hamburg, Germany, Mar. 18-19, 2024.
2. Y. Morimoto, "Single-cycle Optical Control of Valence Electrons in a Solid and Free Electrons in a Beam," CLEO 2023, Hamburg, San Jose, USA, Mar. 7-12, 2023.
3. Y. Morimoto, "Generation of attosecond electron beams and the potential applications to electron-atom collisions," The 14th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, Online, February 17, 2023.
4. 森本裕也(招待講演), 「アト秒超高速電子線イメージング実現に向けた取り組み」, 日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会研究会, 三浦市, 2024年3月8-9日.
5. 森本裕也(招待講演), 「アト秒電子顕微鏡測定の実現に向けた我々の取り組み」, 非平衡固体物性の最前線, 東京都, 2023年11月13-14日.
6. 森本裕也(招待講演), 「アト秒電子ビーム技術: 最近の進展を振り返って」, 第43回 ナノステイティングシンポジウム NANOTS2023, 豊中市, 2023年11月7-9日.
7. 森本裕也(招待講演), 「アト秒電子パルスによる超高速現象観測に向けた取り組み」, 第7回レーザー加工若手研究会, 東京都, 2023年8月10日.

8. 森本裕也(招待講演),「アト秒超高速電子線イメージングを目指して」, 日本顕微鏡学会 第 79 回日本顕微鏡学会学術講演会, 松江市, 2023 年 6 月 26-28 日.
9. 森本裕也(招待講演),「アト秒電子線イメージングに向けた取り組み」, 第 7 回超高速光エレクトロニクス研究会, 徳島市, 2023 年 4 月 7 日.
10. 森本 裕也(招待講演),「アト秒電子パルスの発生と実時間物性計測の試み」, レーザー学会学術講演会第 43 回年次大会, 岡山大学 & オンライン, 2023 年 1 月 18-20 日.

#### ポスター発表

1. Y. Tachibana, Y. Morimoto, “Trajectory analysis of 30-keV electrons in magnetic fields for thigh-

resolution energy spectrometry” 第 38 回化学反応討論会、2023 年 6 月 7-9 日、九州大学 (福岡市)

2. 立花佑一、森本裕也、「10-40 keV 電子のための静磁場型エネルギー分析システム的设计」、原子衝突学会第 48 回年会、2023 年 11 月 25-26 日、東京工業大学 (目黒)
3. 立花佑一、森本裕也、「10-40 keV 電子のための静磁場型エネルギー分析器的设计」、第 11 回光量子工学研究、2024 年 2 月 29-3 月 1 日、理化学研究所 (和光)

#### 誌上発表

1. 立花佑一、森本裕也、「静磁場型電子エネルギー分析器的设计指針」、原子衝突学会誌 しょうとつ 第 21 巻第 5 号、R003 (2024).