

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2011～2015

課題番号：23226002

研究課題名(和文) 高強度フェムト秒レーザープラズマ高速電子パルスによる高速時間分解電子線回折の実証

研究課題名(英文) Demonstration of ultrafast electron diffraction with fast electron pulses in plasma generated by intense femtosecond laser

研究代表者

阪部 周二 (Sakabe, Shuji)

京都大学・化学研究所・教授

研究者番号：50153903

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 129,200,000円

研究成果の概要(和文)：超高強度フェムト秒レーザーと薄膜との相互作用により生成・加速されるプラズマ電子を電子線源として利用し、小型位相回転器による電子パルス圧縮法とその圧縮パルスを用いた「超高速電子線回折法」を実証した。単一パルス撮像を可能とする電子線量を得るために、レーザープラズマから効率的に電子を引出す「レーザー予備照射によるシース電場の抑制法」を提案し、プラズマミラーにより整形した高コントラストレーザーパルスを用いた実験により、それを実証した。金属細線による加速電子の誘導と集束、超高速電子偏向法、金属細線による強力テラヘルツ表面波の生成などの派生成果も得られた。

研究成果の概要(英文)：With an pulse of electrons which are produced and accelerated by the interaction of an intense femtosecond laser pulse with a foil target, compression of the electron pulse with a compact phase rotator, and "ultrafast electron diffraction (UED)" with the compressed electron pulses have been demonstrated. To develop high intensity electron source for single pulse UED, a new method "sheath break by laser pre-irradiation", which pull out electrons efficiently from laser plasma, has been proposed and experimentally demonstrated with high-contrast laser pulse shaped by a plasma mirror. Derivative fruits of research have been also obtained, such as guiding and collimation of laser accelerated electrons on a metal wire, ultrafast electron deflectometry, and generation of strong terahertz surface wave on a metal wire.

研究分野：レーザー・レーザープラズマ科学

キーワード：電子線回折 レーザー加速 フェムト秒レーザー 高強度レーザー レーザープラズマ

1. 研究開始当初の背景

物質科学の発展には物質の構造・状態やその変化を調べることのできる高い空間と時間分解能を持つ観察手法が必要となる。物質の構造や組成の探索には様々な量子ビームが用いられている。電子線は原子弾性散乱断面積が大きい、有効弾性散乱当たりの非弾性散乱によるエネルギー損失が小さいなどの利点がある。この四半世紀に電子顕微鏡の技術は飛躍的に進化し、弾性散乱を利用した物質の構造探索(透過型電子顕微鏡 TEM)の他に、非弾性散乱過程で生じた様々な2次的信号を用いた物質組成や電子状態、表面構造探索の機能(電子エネルギー損失分光法 EELS など)も持ち合わされ、分析電子顕微鏡として、物質を多角的に探索する装置として発展してきている。TEMでの構造探索では、0.1nm以下の高い空間分解能が実現している。

さらなる高度化への開発課題の一つは、物質の動的構造を調べることのできる時間分解電子顕微鏡である。本来、電子顕微鏡のもつ高い空間分解能で観る原子分子レベルの構造の動的変化は数 10fs~ps 程度で生じるものであり、空間分解能に見合う時間分解能が求められる。ポンプ&プローブ法を用いた電子顕微鏡観察の最初の挑戦は超高速電子線回折(UED)である。UEDの重要な課題はプローブの短パルス電子線を如何に生成制御するかである。特に、非可逆過程を観察する場合、ポンプパルスを照射された試料は初期状態に戻らないので、鮮明な像を得るためのさらなる重ね撮像には、新たな試料を供給しなければならない。そのため、十分な強度のフェムト秒電子パルスの生成が必要不可欠である。プローブ用の電子パルスで現在研究開発されている主なものは、フェムト秒レーザーフォトカソードと DCあるいは RF 加速器を用いたものである。

フェムト秒レーザーフォトカソード電子源を用いた UED は Zewail らや Miller らのグループが研究を進めてきた。基本的な構成は、市販の数 100keV の電子顕微鏡に装備されている電子源をフォトカソードに置き換え、電子加速や収束は加速管や電子レンズ系を基本的にはそのままに利用している。フォトカソードから発する電子のパルス幅はレーザーパルス幅程度に短くできるが、発生電子を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ので、その間に空間電荷効果により電子パルス幅は大きく広がり、これが時間分解能を低減する。これを避けるためにパルス内の電子数が制限される。100fs 程度の電子パルスを保つために 10^3 個以下の電子数にしている。そのため、明瞭な回折パターンを得るためには、数 1000 パルス以上を照射し回折電子を積算しなければならないので、対象の動的現象は可逆でなければならない。

短パルスかつ高輝度の電子線を発生する手法の開発が UED には必須であった。

2. 研究の目的

非可逆現象観察可能な単一パルス UED の実現のために、従来型のフォトカソードと加速器を用いた手法に代わりうる、新規手法として高強度極短パルスレーザー加速電子線の利用を実証する。レーザープラズマ放射線は一般に点源・パルス・高輝度・小型などの特徴を有しており、これらの特質を最大限に利用して、レーザー加速パルス電子線の利用を提案実施した。UED に求められるエネルギー:数 100keV, パンチ(パルス)幅:<数 100fs, 電子数:>100 万個程度の電子線源を生成制御し、単一電子パルスによる高速時間分解電子線回折像の取得を実証することを目的とする。

3. 研究の方法

高時間分解能で動的構造を捉えることができるのは、短パルスのポンプ&プローブ法だけである。ポンプとプローブビームの時間間隔を順次変化させて動的変化を追う。ポンプ&プローブ法の時間分解はポンプとプローブビームのパルス幅とこれらのビームの同期精度で決まる。つまり、同期性の高い極短パルスポンプとプローブビームが必要である。また、現象の時間原点を設定しなければならない。この対象現象の誘起はポンプビームで決まる。ポンプとして最も一般的なのは光である。この場合、対象現象は光誘起現象になる。ポンプとして光を用いる場合、ほとんどの観察試料において、電子の散乱行程はポンプ光の進入深さと良く一致することも、冒頭述の電子線の利点に加わる。高強度短パルスレーザーによる量子ビーム生成は最も有望な方法である。プローブ用の電子ビームをレーザーで生成する場合、短パルスレーザーを2分し、一方をポンプ光ビーム(あるいは他の量子ビーム生成)に、他方を電子ビーム生成に用いれば、ポンプとプローブを完全同期することができる。

非可逆過程を観察するには、単一パルスで明瞭画像の撮像に足る電子数をもつ短パルス電子線が必要である。空間電荷効果によるパルス幅広がりを抑える方法は、(1)電子を相対論領域のエネルギー(>MeV)にまで加速する、(2)パルス中電子数を下げるが考えられるが、(1)は試料の損傷の問題のため、現実に結晶化学分野で汎用している電子顕微鏡のエネルギーは数 100kV 以下である。(2)は既述のように、多パルス積算が必要であるので、非可逆過程の観察ができない。第3の方法として、運動量にある程度の広がりを持つ短パルス電子線源を用い、それによるパルス広がりを位相回転することによりパルス圧縮する(自己圧縮)方法がある。

この運動量広がりをもつ短パルス高輝度電子線発生に高強度極短パルスレーザー加速は最適である。つまり、(1)レーザーと固体との相互作用により生成されるレーザープラズマ(高電子密度)中で電子を加速するので、高

電子数のパルスの発生が期待される。(2)電子はレーザーによる直接加速であるので、付加的な外部加速器を必要とせず、瞬時に目的としているエネルギーにまで加速され、加速時間の短いことにより空間電荷効果によるパルス広がりも極めて小さい。(3)時間的に変化し、空間的にも分布するレーザー光の電界による加速であるので、加速電子はエネルギー分布(位相空間の運動量広がり)をもち、それにより時間的に広がるパルスを位相回転によって再圧縮することができる。

本研究では、(1)高強度極短パルスレーザーと標的との相互作用により高輝度の短パルス電子を発生する。(2)位相回転器を開発し、レーザー加速電子パルスを圧縮する。(3)レーザー生成・加速短パルス電子を圧縮し、これを用いて回折像の撮像を実証する。(4)本提案の概念をもとに UED 装置の設計を示す。

4. 研究成果

(1)レーザー生成・加速電子の位相回折器による位相反転、パルス圧縮と回折像の取得

(電子線源)高強度フェムト秒レーザーとポリエチレン薄膜との相互作用により生成・加速・放射する電子の特性を詳細に調べ、電子線回折に用いることを示した。

(位相回転器)永久磁石 2 重極を用いた小型位相回転器を設計製作した。

(ポンデロモティブ力電子散乱を用いたパルス測定法の実証)レーザー生成・加速電子パルスを高強度レーザーパルスと相互作用させることにより、散乱電子量を電子パルスとレーザーパルスの相関量として測定し、電子パルス幅の測定に成功した。

(パルス圧縮の実証)圧縮器の最適化により 250fs 程度の電子パルスを実現した。レーザープラズマ加速電子の圧縮パルスとしては世界最短であり、自己パルス圧縮の有効性を示すとともに、元の電子パルス幅を短くできれば、さらに短くできることを示した。

(回折像)この圧縮パルスを金の単結晶に照射し、単一パルスでの撮像の実証に成功した。これらの成果を基に、開発の方向性(電子のさらなる短パルス化、電子量の増大)が明瞭になった。

(2)レーザー加速プラズマ電子パルス幅がレーザーパルス幅に等しいことの検証に成功

上述の位相回転器の有効性が示されたが、元の電子パルス幅が実際に十分に短いことを示さなければならない。レーザー生成・加速直後のパルス幅を測定した報告は今までなかった。「フェムト秒電子偏向法」を提案し、2つのレーザー生成加速短パルス電子による自己相関法によりこの検証を行った。2分したレーザーパルスを薄膜ターゲットの異なる 2 点に照射し、2つの電子パルスを発生する。この発生位置を電子レンズにより観測する。2つの生成電子パルスは互いにクーロン斥力を受けるので、時間差により 2 点の像の間隔が変化する。時間差を変化させるこ

とにより、この 2 点間の距離を測定する。他方、電子軌道計算により電子源から撮像スクリーンまでの挙動を求める。実験ではレーザーパルス幅を、計算では電子パルス幅を変化させ時間差と空間間隔の相関を調べた。その結果、ほぼ同相関が得られた。これによりレーザーパルス幅と加速電子パルス幅が同程度であることが世界で初めて検証された。

(3)レーザーシステムの短パルス化

上の成果を受けて、より短い電子パルスを生成するために、所属機関の高強度レーザーシステムの短パルス化を行った(150fs から 35fs へ)。

(4)電子線量の増大化(線源標的材料と電子放射特性の調査)

電子線回折に必要な電子線量を得るために、標的材料と放射電子特性の詳細を調べた。線源標的をポリエチレン薄膜からアルミニウム薄膜にすることにより、線量は 10 倍以上に増加した。しかし、線源の拡大・多点化や面方向への放射などの欠点が明らかとなり、透明標的と不透明標的の差が起因していると考察した。

(5)プラズマミラーの開発

上述の問題点を改善するために、レーザーパルスのコントラストの向上の必要性が明らかとなった。パルスコントラストの改善のためにプラズマミラー装置を開発し、レーザーシステムに導入した。開発したプラズマミラーの性能は反射率 $\sim 70\%$ 、プリパルスコントラスト比の改善 10^4 を示し、世界で報告されているプラズマミラーと比して最高の性能が得られた。このプラズマミラーを用いることにより、電子線源の品質は著しく改善された。

(6)電子線量の増大化(ダブルパルス照射による電子線量の増加)

線源標的材料を金属に変え、線量を 10 倍以上に増加したが、目標としている線量にはさらなる増大化が必要である。本質的に、高強度レーザーにより標的材料から電子を加速引き出すとその瞬間に標的裏面に強力なシース電場が形成され(標的が正に荷電するので)、低エネルギーの電子を引き戻し放射効率を下げようとする。電子の放射効率を高めるには、このシース電場を低減することが必要と考え、我々は標的裏面の予備プラズマ化法を提案した。

レーザーシステムの改造による短パルス化とレーザーの高強度化の結果、ダブルパルス実験が可能となった。線源標的の薄膜の裏面のプラズマ化と電子加速をそれぞれ低強度と高強度の短パルスレーザーで行った。その結果、アルミニウム薄膜で、単一パルス照射に比べて、20 倍以上の線量増加が確認できた。これらは、世界で初めての成果であり、高強度レーザー加速電子の高い潜在能力を示したものである。

(7)超高速電子線回折装置の構築

上述の成果から、高強度短パルスレーザー

生成・加速電子を用いた UED の有効性が示された。これらの成果を基に、新 UED 装置を設計した(現在構築中)。短パルス化(成果(3))しプラズマミラー装置(成果(5))を装備した高強度レーザーシステムから、光ビームの一部を分岐し、時間遅延光路を通して紫外光に波長変換してポンプ光として観察試料に照射する。光ビームの主要部分はさらに、一部を分岐し、時間遅延光路を通して軸外し放物面ミラーにより線源標的のアルミニウム薄膜(成果(4))の裏面を照射し薄膜を予備プラズマ化(成果(6))する。残りの主ビームは線源薄膜の表面に照射し電子を生成・加速する(成果(2))。加速放射電子は電子レンズで集束され、位相回転器(成果(1))を通し、エネルギー選択とパルス圧縮をして、四重極レンズにより収差補正を行った後に、観察試料に照射する。回折電子を蛍光スクリーンで受け、その発光を光電子像倍機能付き CCD カメラで撮像する。これらは全て、900mmx1500mm 程度の真空容器に収納されているが、従来の加速器等を必要としないため、高真空を必要としない。

(8) 派生した顕著な成果

本研究を実施した結果、次のような研究成果も上げる事ができた。

新高指向性電子線源の発見：

上述の電子線源材料開発の結果、アルミニウム薄膜など電気伝導性の高い材料を標的とした場合、絶縁体では面垂直方向に放射していた電子が、面方向に強い放射をすることが明らかになった。この結果から、金属ワイヤーを照射すればワイヤーの方向に電子が誘導され指向性の高い電子線が得られると考え検証した。数 10mm の金属ワイヤーで薄膜ターゲットに比べて 30 倍程度の電子線量の増大を確認し、 μm 級の金属細線でも、また、湾曲細線でも電子が誘導されることが実験的に明らかとなった。細線を用いることにより、極めて指向性の高い電子線が得られる事を発見した。

UED 装置の電子偏向法への応用：

の物理現象を解明するために、高強度レーザーと金属細線との相互作用により加速電子を誘導するワイヤー周辺の過渡電場を測定しなければならなかった。それに、本研究で開発した UED 装置に用いた短パルス電子線を用いた。高強度短パルスレーザー生成・加速・圧縮した電子パルスが物質等の近傍の電磁場の高速ダイナミクス測定のための電子偏向法にも極めて有効であることを実証した。

新たなテラヘルツ波源の発見：

の測定の結果、ワイヤーに表面電磁波が走ることを発見した。金属ワイヤーが電磁波の導波路になることは良く知られているが、導波路に直接レーザーを照射することにより、線源と導波路を一体化でき、これは高強度 THz 源の効率的な応用にもなりうるもので、高強度レーザー生成放射線の新たな潜在

能力を発掘した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 9 件)

(以下は全て査読有原著論文)

- (1) S. Inoue, S. Tokita, M. Hashida, and S. Sakabe, "Transient changes in electric fields induced by interaction of ultraintense laser pulses with insulator and metal foils: Sustainable fields spanning several millimeters," *Physical Review E* **91**, 043101(2015). (DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevE.91.043101>).
- (2) S. Tokita, S. Sakabe, T. Nagashima, M. Hashida, and S. Inoue, "Strong sub-terahertz surface waves generated on a metal wire by high-intensity laser pulses," *Scientific Reports* **5**, 8268(2015). (doi:10.1038/srep08268).
- (3) 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**(15), 155001 (2013). (DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.155001>).
- (4) S. Inoue, S. Tokita, K. Otani, M. Hashida, M. Hata, H. Sakagami, T. Taguchi, and S. Sakabe, "Autocorrelation measurement of fast electron pulses emitted through the interaction of femtosecond laser pulses with solid target," *Physical Review Letters* **109**(18), 185001 (2012). (DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.185001>).
- (5) 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**(3), 031501-3(2011). (doi: 10.1063/1.3612915).

[学会発表](国際会議)(計 29 件)

(以下の抜粋は全て招待講演)

- (1) S. Sakabe et al., "Ultrafast electron diffraction and deflectometry with laser accelerated electrons," OPIC(HEDS)2016, 17-20 May, 2016, Pacifico Yokohama (Yokohama, Kanagawa).
- (2) S. Sakabe, S. Tokita, M. Hashida, S. Inoue, and K. Teramoto, "Generation of Sub-THz Surface Waves on a Metal Wire by Intense Femtosecond Laser Pulses," High-Brightness Source and Light-Driven Interactions Congress, 20-23, March, 2016, Long Beach, California (US).
- (3) S. Sakabe, S. Tokita, M. Hashida, S. Inoue, and K. Teramoto, "Ultrafast electron diffraction and deflectometry with laser accelerated electrons," 7th AFAD2016 (Asian Forum for Accelerators and Detectors) 1-3 February, 2016, Kyoto University (Uji, Kyoto).
- (4) S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, and S. Inoue, "Strong Electromagnetic Wave Generation and Electron Guidance on a Metal Wire Interacted with Intense Femtosecond Laser Pulses," CLEO-PR2015, 24-28 August, 2015, Busan (Korea).
- (5) S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, S. Inoue, and K.

Teramoto, "Guidance and Transport of Laser-Accelerated Electrons with a Thin Metal Wire," OPIC(HEDS2015), 22-24 April, 2015, Pacifico Yokohama (Yokohama, Kanagawa).

- (6) S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, and S. Inoue, "Intense femtosecond laser accelerated electron pulses for single-shot ultrafast electron diffraction and electron deflectometry," Femtosecond Electron Imaging and Spectroscopy (FEIS2013), 9-12 December 2013, Keywest, Florida (USA).
- (7) S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, and S. Inoue, "Single-shot Ultrafast Electron Diffraction and Electron Deflectometry Using Electrons Accelerated by an Intense Femtosecond Laser pulse", 8th International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (IFSA2013), 8-13 September, 2013, Nara-Kokaido (Nara, Nara).
- (8) S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, and S. Inoue, "Emission Characteristics of Electrons Accelerated in a Thin Foil and a Metal Wire by Intense Femtosecond Laser Pulses," 10th Conference on Laser and Electro-Optics Pacific Rim, 1-3, July 2013, Kyoto International Center (Kyoto, Kyoto).
- (9) S. Tokita, et al., "Single-Shot Ultrafast Electron Diffraction Using Electrons Accelerated by an Intense Femtosecond Laser Pulse," Banff Meeting on Structural Dynamics, 17-20 January, 2013, Banff (Canada).
- (10) S. Sakabe, et al., "Ultrafast Electron Sources Based on Plasmas Produced by Intense Femtosecond Laser Pulses," The Workshop on Ultrafast Electron Sources for Diffraction and Microscopy Applications, 11-16 December, 2012, Los Angeles (USA).

〔学会発表〕(国内学会)(計 53 件)
(以下の抜粋は全て招待講演)

- (1) 阪部周二, 橋田昌樹, 井上峻介, 「高強度フェムト秒レーザー加速電子線源とそれを用いた超高速電子線回折・偏向法」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015.9.16-19, 関西大学(大阪府・吹田市).
- (2) 井上峻介, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二, 「高強度短パルスレーザーと金属薄膜・細線との相互作用により電子発生・加速」, レーザー学会学術講演会第 35 回年次大会, 2015.1.11-12, 東海大学高輪キャンパス(東京).
- (3) 阪部周二, 時田茂樹, 橋田昌樹, 「高強度パルスレーザーによるパルス電子線生成とその時間分解回折への応用」, レーザー学会学術講演会第 33 回年次大会, 2013.1.28-30, 姫路商工会議所(兵庫県・姫路市).

〔産業財産権〕

取得状況(計 1 件)

名称: 超高速電子線回折装置

発明者: 時田茂樹, 阪部周二, 橋田昌樹

権利者: 京都大学

種類: 特許

番号: 8633438

取得年月日: 2014 年 1 月 21 日

国内外の別: 米国

〔その他〕

(ホームページ)

<http://laser.kuicr.kyoto-u.ac.jp/index.html>

(受賞)

- ・電気学会優秀論文発表賞 寺本研介
- ・Plasma Conference 2014 若手優秀発表賞 井上峻介
- ・第 8 回日本物理学会若手奨励賞 井上峻介
- ・2013 京大化研学生研究賞 井上峻介
- ・第 7 回日本物理学会若手奨励賞 時田茂樹
- ・レーザー学会第 32 回年次大会優秀論文発表賞 井上峻介
- ・第 5 回大阪大学近藤賞 時田茂樹

6. 研究組織

(1) 研究代表者

阪部 周二 (Shuji Sakabe)
京都大学・化学研究所 教授
研究者番号: 50153903

(2) 連携研究者

橋田 昌樹 (Masaki Hashida)
京都大学・化学研究所 准教授
研究者番号: 50291034

井上 峻介 (Shunsuke Inoue)
京都大学・化学研究所 助教
研究者番号: 40724711

時田 茂樹 (Shigeki Tokita)
大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター 講師
研究者番号: 20456825