

研究種目：基盤研究（A）
研究期間：2006～2009
課題番号：18206006
研究課題名（和文） 高強度フェムト秒レーザー生成パルス高速度電子を用いた時間分解電子顕微鏡
研究課題名（英文） Ultrafast electron microscope with high energy electron pulses produced by an 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

研究成果の概要（和文）：集光強度 $2 \times 10^{18} \text{W/cm}^2$ の高強度フェムト秒レーザーパルスにより加速した 340keV 電子パルスを用いて、金の単結晶薄膜の電子線回折像を単一レーザーパルスショットで撮像することを世界で初めて実証した。測定した電子ビームの強度分布は電子軌道計算機シミュレーションにより再現でき、これにより、加速過程で生じる速度広がりにより電子パルスは自然に広がるが、不可逆的非線形の歪みはないことが証明された。この研究により、単一ショットフェムト秒電子線回折のためのパルス圧縮にレーザー加速は有効となることが示された。

研究成果の概要（英文）：We have demonstrated single-shot measurement of electron diffraction patterns for a single-crystal gold foil using 340 keV electron pulses accelerated by intense femtosecond laser pulses with an intensity of $2 \times 10^{18} \text{W/cm}^2$. The measured electron beam profile is faithfully reproduced by the numerical simulation of the electron trajectory, providing evidence that the electron pulse spontaneously expands in time owing to the velocity spread produced in the acceleration process, but is not distorted in an irreversible nonlinear manner. This study shows that the laser acceleration is promising for the development of pulse compression methods for single-shot femtosecond electron diffraction.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
2007年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
2008年度	14,800,000	4,440,000	19,240,000
2009年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
年度			
総計	37,500,000	11,250,000	48,750,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 薄膜・表面界面物性

キーワード：レーザープラズマ電子、高強度フェムト秒レーザー、電子線回折、パルス電子源、高輝度電子線源

1. 研究開始当初の背景

(1) 従来、輝度の高い放射線は大型装置でしか発生することができなかった。レーザープラズマ放射線も例外ではなく、一部の大型レーザー（核融合研究用レーザー）でしか実現できなかった。しかし、この数年の間に、テーブルトップ超高強度極短パルスレーザー技術が飛躍的に進歩したため、小型レーザーからでも高繰り返しで高強度の極短パルスを生成することができるようになった。パルスレーザーにより生成されるプラズマは温度（エネルギー密度）が高いので輝度の高いX線、電子、イオンを発生する。つまり、レーザー生成プラズマ放射線はパルス、点源、高輝度の特徴を有しており、加えて、レーザーと発生放射線とは完全に同期しているため、ポンプ&プローブ計測に極めて有効である。

(2) 他方、電子顕微鏡技術はこの10年に飛躍的に進歩し、高品位化や分析技術は現在も進化の途にある。例えば、顕微鏡レンズの球面収差補正法の開発、高分解能3次元トモグラフィなどであるが、超高速パルス電子顕微鏡に関しては、まだテーマに挙がっているだけで、そのための電子線量の考察や電子線の時間的な遅延などの評価が行われているのが、現状である。静的画像や静的分析の進歩に対して遅れている時間分解技術の開発が求められている。欧米でもまだ、この研究の端を切ろうかという段階である。電子線の加速電圧が30kV以下を低速度電子、30-200kVを中速度電子、200kV以上を高速度電子と考えると、低速度電子はSEMなどに利用される電子である。これまでのフォトカソード方式によるパルス電子源では低速度電子により構成される回折像の時間分解観察に用いられ始めている。しかし、汎用の透過型電子顕微鏡に用いられるパルス中速度電子源や高速度電子源は報告されていない。顕微鏡像を取得するためにはこれらの中速度・高速度電子源が必要である。

2. 研究の目的

本研究は、次世代の時間分解電子顕微鏡を念頭にパルス電子源となりうる超高強度極短パルスレーザー生成パルス電子の特性（レーザー強度依存性、ターゲット材料依存性、

ターゲット構造依存性）を明らかにし、これらの電子源を従来型の電子顕微鏡の電子源と加速管に換え、パルス電子顕微鏡を実現し、時間分解能力を有する電子顕微鏡を世界よりも一歩早く実証するための要素を実証することを目的とする。具体的には、レーザー生成プラズマ電子を用いて電子線回折像を撮像できることを実証する。

3. 研究の方法

(1) 電子発生用レーザーの高品位化
時間分解電子線回折の実証のためには安定な電子線源が必要であり、その線源を生成するレーザーの安定性が不可欠である。既存の高強度短パルスレーザー装置を解体し、出力が励起用レーザーの出力変動の影響を受けにくい光学配置を設計し、システムの再構築を行う。

(2) レーザー生成加速電子線源の特性評価

固体薄膜に高強度レーザーを集光照射することにより発生するパルス電子線源の特性測定を実施し、時間分解電子線回折に必要な線源を作るべく、ターゲット材料などの最適化を行う。

(3) 単一ショット電子線回折の実証

(2)の電子線源を用いて、レーザー単一ショットでも試料の電子線回折像が取得できることを実証する。

4. 研究成果

(1) 電子発生用レーザーの高品位化
1台の励起用レーザーを前置増幅器と主増幅器の励起に分離し、主増幅器内に適切な光学損失を入れる事により、励起用レーザーの変動が主増幅器の出力変動に影響しない方式を提案し、既存の高強度レーザーシステムを全面改良（完全解体、新規構築）した。その結果、第1主増幅器の出力変動を0.3%以下にすることに成功した。この安定性は世界最高水準である。

(2) レーザー生成加速電子線源の特性評価

各種金属薄膜、有機高分子薄膜などに高強度レーザーを集光照射することにより発生する電子の特性を詳細に調べた。その結果、金属薄膜は多くの電子を発生するが、線源が大きくなる。他方、高分子膜の場合、発生線量は少ないが、線源は小さく高輝度を実現でき

ることを明らかにした。

(3) 単一ショット電子線回折の実証

有機高分子薄膜を線源材料とし、電子線を観察試料に照射できる、電子レンズ光学系を構築し、蛍光スクリーンと増倍管付き CCD カメラにより電子回折装置を構築した。これにより、レーザープラズマ電子を用いた単一ショットによる電子線回折像の取得に世界で初めて成功した。

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 12 件) (全て査読有り)

- ① Shigeki Tokita, Shunsuke Inoue, Shinichiro Masuno, Masaki Hashida, and Shuji Sakabe, “Single-shot ultrafast electron diffraction with a laser-accelerated sub-MeV electron pulse”, Applied Physics Letters, Vol.95, 111911(2009).
- ② Shuji SAKABE, Masaki HASHIDA, Shigeki TOKITA, and Kazuto OTANI. “Laser Energy Scaling Law for the Yield of Neutrons Generated by Intense Femtosecond Laser-Cluster Interactions”, Plasma and Fusion Research, Volume 4, 041(2009).
- ③ M. Hashida, H. Mishima, S. Tokita, and S. Sakabe, “Non-thermal ablation of expanded polytetra-fluoroethylene with an intense femtosecond-pulse laser”, Optics Express Vol. 17, Issue 15 pp. 13116-13121(2009).
- ④ Takeshi Nagashima, Heijiro Hirayama, Kyoji Shibuya, Masanori Hangyo, Masaki Hashida, Shigeki Tokita, and Shuji Sakabe, “Terahertz pulse radiation from argon clusters irradiated with intense femtosecond laser pulses”, Optics Express Vol. 17, Issue 11 pp. 8907-8912(2009).
- ⑤ Shuji Sakabe, Masaki Hashida, Shigeki Tokita, Shin Namba, and Kiminori Okamoto, “Mechanism for self-formation of periodic grating structures on a metal surface by a femtosecond laser pulse”, Physical Review B 79, No.3 033409(2009).
- ⑥ S. Tokita, M. Hashida, S. Masuno, S. Namba, and S. Sakabe, “0.3% energy stability, 100-millijoule-class, Ti:sapphire chirped-pulse eight-pass amplification system”, Optics Express 16, No.19 14875-14881(2008).
- ⑦ M. Hashida, S. Shimizu, and S. Sakabe, “Carbon-nanotube cathode modified by femtosecond laser ablation”, Journal of Physics: Conference Series 59, 487-491(2007).
- ⑧ M. Hashida, “Ablation of metals with femtosecond laser pulse Science and technology created by ultra-short”, ultra-high-peak power lasers, 114-126 (2007).
- ⑨ S. Sakabe, M. Hashida, S. Shimizu, and T. Iida, “Energetic Ion Generation by Coulomb Explosion in Cluster Gas and a Low-Density Plastic Foam with an Intense Femtosecond Laser”, Laser Physics 16, 551-555(2006).
- ⑩ 橋田昌樹, 清水政二, 阪部周二, 「フェムト秒レーザーによる材料の表面機能性付与加工」、応用物理 75, 451-455(2006).
- ⑪ S. Sakabe, K. Shirai, M. Hashida, S. Shimizu, and S. Masuno, “Skinning of argon clusters by Coulomb explosion induced with an intense femtosecond laser pulse”, Phys.Rev. A 74, 043205-1-5(2006).
- ⑫ Y. Inubushi, H. Nishimura, M. Ochiai, S. Fujioka, T. Johzaki, K. Mima, T. Kawamura, S. Nakazaki, T. Kai, S. Sakabe, and Y. Izawa, “X-ray line polarization spectroscopy to study hot electron transport in ultra-short laser produced plasma”, J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 99,

305-313(2006).

〔学会発表〕(計 3 1 件)

[1-4] 日本物理学会 第 65 回年次大会(岡山大学・岡山市)2010.3.22

(1)「局所水素ドープターゲットを用いた超高強度極短パルスレーザーによるイオンビーム生成」大谷一人, 井上峻介, 二正寺敏彦, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

(2)「THz wave generation in plasmas produced by intense femtosecond laser interaction with clusters」Fazel Jahangiri, 長島健, 橋田昌樹, 時田茂樹, 萩行正憲, 阪部周二

(3)「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放射特性 I: 電子発生領域の強度分布」井上峻介, 時田茂樹, 二正寺敏彦, 大谷一人, 橋田昌樹, 阪部周二

(4)「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放射特性 II: 電子放射角度分布」二正寺敏彦, 時田茂樹, 田口俊弘, 井上峻介, 大谷一人, 橋田昌樹, 阪部周二

[5] 2010 年春季 第 57 回 応用物理学関係連合講演会(東海大学・平塚市)2010.03.20

(5)「非単色レーザー加速電子ビームの時間圧縮」時田茂樹, 井上峻介, 二正寺敏彦, 大谷一人, 橋田昌樹, 阪部周二

[6-10] レーザー学会学術講演会第 30 回年次大会(千里ライフサイエンスセンター・豊中市)2010.02.02-04

(6)「サブ MeV 非単色レーザー加速電子線パルスの時間幅圧縮」時田茂樹, 井上峻介, 二正寺敏彦, 橋田昌樹, 阪部周二

(7)「高強度短パルスレーザープラズマ相互作用領域内の電子線源構造の空間分解観測」井上峻介, 時田茂樹, 二正寺敏彦, 升野振一郎, 大谷一人, 橋田昌樹, 阪部周二

(8)「高強度短パルスレーザープラズマからの 100keV~1MeV 電子放射角度分布の測定」二正寺敏彦, 時田茂樹, 井上峻介, 升野振一

郎, 大谷一人, 橋田昌樹, 阪部周二

(9)「水素局所添加ターゲットによる超高強度短パルスレーザー生成高エネルギーイオンビーム」大谷一人, 井上峻介, 二正寺敏彦, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

(10)「THz radiation from argon clusters irradiated by intense femtosecond laser pulses (II)」Jahangiri Fazel, 長島健, 橋田昌樹, 時田茂樹, 萩行正憲, 阪部周二

[11-12] 2009 年秋季 第 70 回 応用物理学学会学術講演会(富山大学・富山市)2009.09.08-11

(11)「高強度短パルスレーザー生成電子線源空間分布の高分解能測定」井上峻介, 時田茂樹, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

(12)「高強度レーザー生成プラズマからの電子放射角度分布の測定」二正寺敏彦, 井上峻介, 時田茂樹, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

[13] The 8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/Pacific Rim 2009 (Shanghai, China)2009.09.01,

(13) "Pulse-energy stabilization method for high-energy multipass Ti:sapphire CPA systems", S. Tokita, M. Hashida, S. Masuno, S. Namba, and S. Sakabe

[14-16] The European Conference on Lasers and Electro-Optics CLEO/EUROPE 2009 (Munich・Germany)2009.06.14-19

(14) "Mechanism for Self-Organization of Periodic Structures on a Metal Surface by Femtosecond Laser Pulses", S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, S. Namba, and K. Okamoto

(15) "Feasibility of Compact Neutron Sources Generated by Intense Femtosecond Laser - Cluster Interactions", S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, and K. Otani

(16) "Long-term stabilization of pulse-to-pulse energy of a high-energy multipass Ti:sapphire

CPA system”, S. Tokita, M. Hashida, S. Masuno, S. Namba, and S. Sakabe

[17-19] 2009 年春季 第 56 回応用物理学関係連合講演会（筑波大学・つくば市）2009.03.30-4.2

(17)「高エネルギー粒子発生のための LIFT ターゲット(1)」升野振一郎, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

(18)「高強度レーザー生成プラズマを電子線源とする超高速電子線回折法の開発」時田茂樹, 井上峻介, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

(19)「高強度レーザー生成電子線源の電子発生領域の測定1」井上峻介, 時田茂樹, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

[20] The Second International Symposium on Laser-Driven Relativistic Plasmas Applied to Science, Industry and Medicine(関西光科学研究所・木津川市)2009.01.19-23

(20)「Feasibility of Compact Neutron Sources Generated by Intense Femtosecond Laser-Cluster Interactions」Shuji Sakabe

[21-25] レーザー学会学術講演会第 29 回年次大会(徳島大学・徳島市)2009.01.10-12

(21)「高強度レーザー生成電子パルスによる超高速時間分解電子線回折」時田茂樹, 井上峻介, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

(22)「電子イメージングによる高強度レーザー生成電子線源の空間分布測定」井上峻介, 時田茂樹, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

(23)「孤立微小薄膜実現のための LIFT ターゲット」升野振一郎, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

(24)「チタンサファイアマルチパス増幅器のパルスエネルギー安定化」時田茂樹, 橋田昌樹, 升野振一郎, 難波伸, 阪部周二

(25)「高強度フェムト秒光パルス照射アルゴン原子クラスタからのテラヘルツ波放射」長島健, Jahangiri Fazal, 橋田昌樹, 時田茂樹, 萩行正

憲, 阪部周二

[26] 4th Asian Symposium on Intense Laser Science 2008 (Gwangju, Korea) 2008.11.03-6,

(26)“Self-Organization of Periodic Grating Structure on Metal Surface by Femtosecond Laser Pulses”, S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, S. Namba, and K. Okamuro

[27-29] 2008 年秋季 第 69 回応用物理学学会学術講演会(中部大学・春日井市)2008.09.02-05

(27)「レーザープラズマ電子線源を用いた超高速電子線回折法」時田茂樹, 井上峻介, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

(28)「高強度レーザー生成電子線源の電子発生領域の測定」井上峻介, 時田茂樹, 升野振一郎, 橋田昌樹, 阪部周二

(29)「高エネルギー粒子発生のための LIFT ターゲット(1)」升野振一郎, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

[30-31] 2008 年春季 第 55 回応用物理学関係連合講演会（日本大学・船橋市）2008.03.27-30

(30)「Ti:sapphire マルチパス増幅システムにおけるパルスエネルギーの自己安定化」時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

(31)「高エネルギー粒子発生のための LIFT ターゲット」升野振一郎, 時田茂樹, 橋田昌樹, 阪部周二

〔産業財産権〕
○出願状況（計 2 件）

(1) 名称：「超高速電子線回折装置」
発明者：時田茂樹、橋田昌樹、阪部周二
権利者：京都大学
種類：特許
番号：特願 2010-020723
出願年月日：2010 年 2 月
国内外の別：国内

(2) 名称：「光増幅器」
発明者：時田茂樹、橋田昌樹、阪部周二
権利者：京都大学
種類：特許

番号：特願 2008-009260
出願年月日：2008 年 1 月
国内外の別：国内

[その他]

ホームページ：<http://laser.kuicr.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 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

(2) 研究分担者

磯田 正二 (ISODA SEIJI)
京都大学・化学研究所・教授
研究者番号：00168288
倉田 博基 (KURATA HIROKI)
京都大学・化学研究所・准教授
研究者番号：50186491
橋田 昌樹 (HASHIDA MASAKI)
京都大学・化学研究所・准教授
研究者番号：50291034
小川 哲也 (OGAWA TETSUYA)
京都大学・化学研究所・助教
研究者番号：40224109
時田 茂樹 (TOKITA SHIGEKI) H19 より
京都大学・化学研究所・助教
研究者番号：20456825