

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 15 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15174

研究課題名（和文）超高速コヒーレント電子ビーム生成による時間分解位相イメージング

研究課題名（英文）Time-resolved phase imaging based on the generation of pulsed coherent electron beams

研究代表者

畑中 修平（Hatanaka, Shuhei）

大阪大学・超高压電子顕微鏡センター・技術職員

研究者番号：30838503

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：熱電子銃、電界放出電子銃、およびフォトカソードは電子顕微鏡の電子源として用いられている。これらの電子源の違いが顕著にあらわれるのが、電子ビームのコヒーレンスおよび輝度である。電子源比較のため、まず熱電子銃および電界放出電子銃について、ビームのコヒーレンスを定量評価した。また異なる電子源を透過電子顕微鏡のレンズ系に依存せず比較するため、コヒーレンス評価に基づいて位相空間分布の再構成を実現し、輝度の波動光学的な測定を実現した。フォトカソードについてコヒーレンス評価のため、フォトカソードを備えた超高速電子顕微鏡を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子ビームの空間コヒーレンスは、透過電子顕微鏡において高分解能電子顕微鏡法や位相イメージングといった測定で特に重要である。熱電子銃について、これまで困難だった電子ビームのコヒーレンスの定量評価を実現し、電界放出電子銃との定量比較を実現した。本手法を、フォトカソードを備えた超高速電子顕微鏡に適用し、位相イメージングの一つである回折イメージングの実現が期待される。ピコ秒オーダーの時間分解能による位相イメージングは、時間変化する電磁場の直接イメージングなど、新しい応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：Thermionic emission guns, field emission guns, and photocathodes driven by laser irradiation are used as electron sources in electron microscopes. Most remarkable differences among them are coherence of electron beams and brightness. As the first step for the comparison between various electron guns, we quantitatively measured the spatial coherence of electron beams emitted from a lanthanum hexaboride thermionic emission gun. In general, the spatial coherence at the specimen plane in transmission electron microscopes depends on not only electron sources but illumination lenses. To compare the intrinsic nature of electron sources, we reconstructed the phase space distribution of electron beams based on coherence measurements. From the phase space distribution, we precisely estimated the brightness. We developed an ultrafast electron microscope, and then applied the coherence measurement to electron beams emitted from photocathodes.

研究分野：電子ビーム、電子顕微鏡

キーワード：コヒーレンス 輝度 電子顕微鏡

### 1. 研究開始当初の背景

電子顕微鏡の電子源として、熱電子銃および電界放出電子銃 (FEG) が広く用いられている。また近年では、超高速電子顕微鏡に光電効果で電子ビームを生成するフォトカソードが使用されるようになってきた。これらの電子源の違いが顕著にあらわれるパラメータがコヒーレンスである。

コヒーレンスは空間的、時間的に離れた 2 点間の波動の可干渉度を示す指標である。透過電子顕微鏡 (TEM) では、空間コヒーレンスが電子線ホログラフィー[1]や回折イメージング[2]といった位相イメージングに重要となる。フォトカソードからコヒーレントなビーム生成を実現できれば、時間分解位相イメージングにつながり、その実現が期待されている。

一般に、コヒーレンスは電子源サイズおよび電子生成過程で決まることが知られている。しかしながら、これまでに異なる電子源によるビームの空間コヒーレンスの違いは正確に評価されていない。これは一部の電子源を除いて、空間コヒーレンスが定量評価されていないことが原因である。

### 2. 研究の目的

本研究では、熱電子銃、FEG、およびフォトカソードについて、TEM を用いて電子ビームの空間コヒーレンスを定量評価および比較し、フォトカソードから生成した光電子ビームを用いて位相イメージングの実現を目指した。

電子源の比較に向けた最初のステップとして、熱電子銃について空間コヒーレンスを定量評価する。また、TEM 試料面におけるコヒーレンスは電子源だけでなくレンズ系にも依存するため、位相空間分布を再構成し、レンズ系に依らない電子源比較法を確立する。この手法で熱電子銃と FEG について比較を実現する。コヒーレンス評価および比較法のフォトカソードへの適用に向けて、まずフォトカソードを備えた超高速電子顕微鏡の開発し、光電子ビームについてコヒーレンスを評価する。

### 3. 研究の方法

電子ビームの空間コヒーレンス評価に最も一般的な手法は電子線バイプリズムによる干涉縞の鮮明度を評価する手法[1]である。この手法を用いて、FEG や一部のフォトカソードについてコヒーレンスが評価されている[1,3]。しかしながら、この手法は試料面のバイプリズム直径よりも長い距離で、ある程度のコヒーレンスを持つ必要があり、コヒーレンスに劣る熱電子銃への適用は難しい。そこで本研究では、コヒーレンス評価法に、Airy パターンの強度分布を解析する手法を用いる[4]。TEM の SA 絞りからの Airy パターンは、絞り内のビームのコヒーレンスや収差の影響を受ける。これらをパラメータとして、実測の Airy パターンに合う強度分布をフィッティング計算により求める手法である。

電子源の性質を TEM のレンズ系に依らず比較するため、保存量である軸上輝度をコヒーレンス測定から算出する手法を開発し、異なる電子源を比較する。コヒーレンス測定に基づいて、絞り内のビームの位相分布、強度分布、コヒーレンス関数を求め、それらの情報から位置と運動量で張られる位相空間の分布を再構成する。軸上輝度は位相空間の原点の電流として算出可能である[5]。

フォトカソードのコヒーレンス評価に向けて、超高速電子顕微鏡を開発する。装置の時間分解測定のテストとして、五酸化チタンの光誘起相転移について時間分解イメージングを行う。その後、Airy パターンの強度分布解析の手法を用いて光電子ビームのコヒーレンス評価を行う。

### 4. 研究成果

(1) 熱電子銃についてビームコヒーレンスの定量評価

熱電子銃はコヒーレンスに劣るため、その定量評価は困難で、これまで実現されていなかった。一般に、Airy パターンを得るには、コヒーレンス長が少なくとも絞り直径と同程度である必要がある。コヒーレンスの劣るビームで Airy パターンを得るため、集束イオンビーム装置を用いて、極小の単孔絞りを作製した。図 1(a) は作製した絞りからの Airy パターンであ

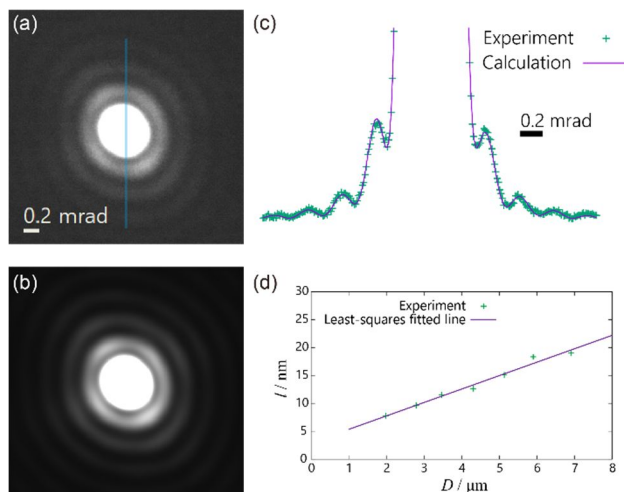


図 1: 熱電子銃についてのコヒーレンス評価。(a) 実測、および (b) 計算で再現した Airy パターンの一例。(c) (a) 中の実線に沿ったプロファイル比較。(d) ビーム径とコヒーレンス長の関係。

る。図 1(b) はフィッティング計算によって求めた Airy パターンで、図 1(c)は図 1(a)中の実線に沿った、実測と計算のプロファイルの比較である。これらの結果から計算によって強度分布が再現できていることがわかる。Airy パターンの解析結果からコヒーレンス関数を算出し、ビーム径に対するコヒーレンス長を示した (図 1(d))。熱電子銃についてコヒーレンスの定量測定に初めて成功した成果で、Journal of the Optical Society of America A 誌に報告された[6]。

## (2) コヒーレンス測定に基づいた軸上輝度測定

電子銃の輝度は、位相空間の電流密度で定義される。輝度は幾何光学に基づいた手法で測定されることが一般的である。しかしながらこの測定方法では、測定に用いる絞りのサイズやレンズ設定によって、位相空間の面積の取り方が変わり、輝度の値が変わるといった問題が起きる。位相空間原点の電流は軸上輝度と呼ばれ、光軸上で保存量であるため、このような問題は起きないが、その正確な測定は困難である。

本研究では、軸上輝度を求めるため位相空間分布である Wigner 関数を再構成する手法を開発した。コヒーレンス測定により求めた、ビームの位相分布、強度分布およびコヒーレンス関数から、密度演算子を計算し Wigner 関数の再構成が可能であることを示した。Wigner 関数の再構成により軸上輝度の算出する本手法は、波動光学に基づく手法で、従来の幾何光学に基づいた手法よりも正確に軸上輝度を求めることができる。実際に、熱電子銃および Schottky FEG について、軸上輝度を算出し、従来よりも正確に軸上輝度を求められることを示した。本研究成果に関する投稿論文を準備中である。

## (3) 超高速電子顕微鏡の開発と時間分解イメージングの実現

超高速電子顕微鏡は、フォトカソードと試料への光照射機能を備えた TEM である。図 2(a)に示すように、フェムト秒レーザーをフォトカソードに照射することで、パルス電子を生成する。このパルス電子と試料を励起する pump 光とのタイミングを変えながら撮影することで、時間分解測定が実現できる。

開発した超高速電子顕微鏡を用いて、五酸化チタンの光誘起相転移を対象に、電子回折で時間分解測定を行った。五酸化チタンはナノ結晶において、相と相の間で光誘起相転移が起きることが知られている [7]。本研究では、単結晶片を用いた時間分解イメージングで、ナノ結晶以外で相から相への光誘起相転移の直接観察に初めて成功した (図 2(b), (c))。実験結果から、五酸化チタンの光誘起相転移にとって結晶サイズや粒界の存在が本質的ではないことを明らかにした。本研究成果に関する投稿論文を準備中である。

## (4) パルス電子顕微鏡のコヒーレンス評価

フォトカソードに量子効率のよい半導体フォトカソードを用いて、コヒーレンス測定を行った。Airy パターンを取得し、熱電子銃、FEG で用いた手法が実験的に適用できることを確認した。一方、電子源比較に必要な計算モデルには、熱電子銃や FEG と異なり、フォトカソードが部分干渉性光源であることを考慮し、計算モデルの拡張が必要であることが分かった。今後の研究により、光電子ビームによる位相イメージングへの応用が期待される。

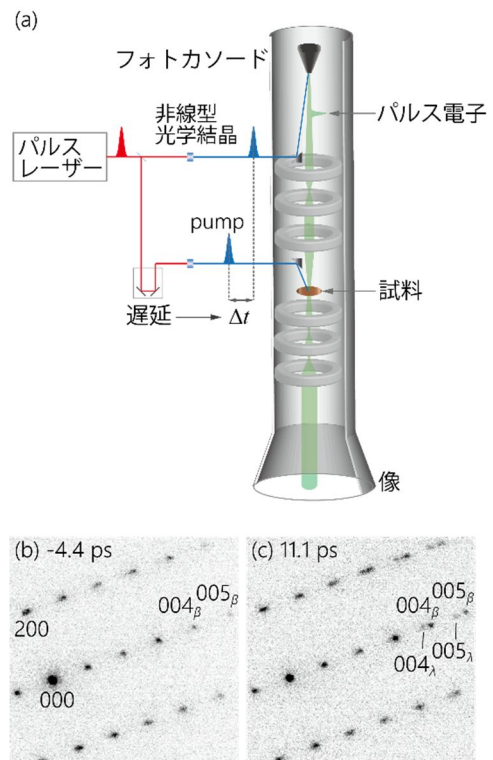


図 2: 超高速電子顕微鏡による時間分解測定。(a) 超高速電子顕微鏡の概略図。五酸化チタンの (b) 光励起前 (-4.4 ps) と (c) 光励起後 (11.1 ps) の電子回折図形。

## 参考文献

- [1] H. Tomita et al., Jpn. J. Appl. Phys. 11, 143 (1972).
- [2] J. Yamasaki et al., Appl. Phys. Lett. 101, 234105 (2012).
- [3] M. Kuwahara et al., Appl. Phys. Lett. 105, 193101 (2014).
- [4] J. Yamasaki et al., Microscopy 67, 1 (2018).
- [5] A. Lubk and F. Röder, Ultramicroscopy 151, 136 (2015).
- [6] S. Hatanaka and J. Yamasaki, J. Opt. Soc. Am. A 38, 1893 (2022).
- [7] S. Ohkoshi et al., Nature Chemistry 2, 539 (2010).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Shuhei Hatanaka, Jun Yamasaki	4. 巻 38
2. 論文標題 Quantitative measurement of spatial coherence of electron beams emitted from a thermionic electron gun	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Optical Society of America A	6. 最初と最後の頁 1893 ~ 1900
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/JOSAA.437843	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hidehiro Yasuda, Tomohiro Nishitani, Shuhei Ichikawa, Shuhei Hatanaka, Yoshio Honda, Hiroshi Amano	4. 巻 5
2. 論文標題 Development of Pulsed TEM Equipped with Nitride Semiconductor Photocathode for High-Speed Observation and Material Nanofabrication	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 5 ~ 5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/qbs5010005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 畑中修平, 土屋汰朗, 市川修平, 佐藤和久, 山崎順
2. 発表標題 超高速電子顕微鏡を用いたTi305の光誘起相転移その場観察
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畑中修平, 土屋汰朗, 市川修平, 山崎順, 佐藤和久
2. 発表標題 パルス電子顕微鏡によるTi305の光誘起相転移の時間分解観察
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Shuhei Hatanaka, Taro Tsuchiya, Shuhei Ichikawa, Jun Yamasaki and Kazuhisa Sato
2. 発表標題 Time-resolved observation of photoinduced phase transition of trititanium pentoxide by ultrafast electron microscopy
3. 学会等名 14th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials and Devices '22 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畑中修平, 山崎順
2. 発表標題 電子ビームの干渉性測定に基づいたWigner関数の再構成
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 土屋汰朗, 畑中修平, 市川修平, 佐藤和久
2. 発表標題 パルス電子顕微鏡を用いたTi305光誘起相転移の時間分解その場観察
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第64回シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shuhei Hatanaka, Jun Yamasaki
2. 発表標題 Precise evaluation of spatial coherence of thermionic-emitted electron beams based on the analysis of Airy patterns
3. 学会等名 13th International Symposium on Atomic Level Characterization for New Materials and Devices '21 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畑中修平, 山崎順, 保田英洋
2. 発表標題 熱電子銃とFEGによる電子ビームの空間干渉性比較
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第77回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畑中修平, 山崎順, 保田英洋
2. 発表標題 熱電子ビームの空間干渉性定量評価
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第76回学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 畑中修平, 山崎順, 保田英洋
2. 発表標題 熱電子ビームの空間干渉性定量計測
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------