

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月21日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21750005

研究課題名（和文） 電子非弾性散乱実験のための超短パルス電子銃の開発

研究課題名（英文） Development of a pulsed electron gun for ultrafast electron inelastic scattering experiments

研究代表者

山崎 優一（YAMAZAKI MASAKAZU）

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：00533465

研究成果の概要（和文）：本研究では、化学反応を実時間で追跡可能な超短パルス電子線技術を、電子非弾性散乱実験一般へと適用するため、時間幅のみならずエネルギー幅も小さな新しいパルス電子銃の開発を行った。その結果、エネルギー幅が単純分子の電子励起エネルギー（～5 eV）よりも小さい超短パルス電子線の発生に成功した。また、電子非弾性散乱実験に適用可能な電子線強度も得られ、所期の性能を満足した電子銃の開発に成功した。

研究成果の概要（英文）：In this study, in order to apply ultrashort pulsed electron beam techniques to electron inelastic scattering experiments, we have developed a new pulsed electron gun having a small kinetic energy distribution, while keeping its duration applicable to a real-time observation of chemical reactions. As a result, the developed electron gun is successful in producing electron pulses whose energy width is less than electronic excitation energies (c. a. 5 eV) of typical simple molecules. The electron gun has shown the expected performance in its intensity as well as in the energy width.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学

キーワード：電子状態

1. 研究開始当初の背景

近年の超短パルスレーザーの目覚ましい発展により、化学反応を実時間で観測することが現実のものとなりつつある。現在では、超高速電子線回折実験によって、反応途中の原子の動きを可視化することさえ可能となっている。しかしながら、物質の様々な性質や、反応中の原子の運動を支配するのは電子

であり、化学反応を最も根源的なレベルで理解するためには、物質の電子構造に対する実時間観測が必要となる。そのような過渡系電子状態を調べる研究は主にレーザーを用いて展開されており、電子線を利用した研究は皆無である。

電子非弾性散乱は最も基本的な反応素過程の一つであり、物質の電子構造に関して光

吸収とは異なる情報をも提供する。例えば、角度分解電子エネルギー損失分光では、幅広い損失エネルギー領域と幅広い移行運動量領域に亘る測定から、光や荷電粒子と物質との電磁的相互作用の理解を統括的に与える一般化振動子強度分布を得ることができる。一方、(e, 2e)電子運動量分光によれば、大きなエネルギー損失と大きな運動量移行を伴う高速電子衝撃イオン化で生成する非弾性散乱電子と電離電子を同時計測することにより、イオン化遷移毎の電子運動量分布、すなわち、分子軌道の形そのものを運動量空間波動関数の二乗振幅として観測できる。

以上の背景を踏まえ、電子非弾性散乱実験一般の時間分解分光測定に適用可能な、超短パルス電子線源が実現すれば、電子衝突のユニークな特性を利用して、光吸収実験とは異なる視点から動的素過程の新しい研究が展開できると期待される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、電子非弾性散乱実験一般に適用可能な、エネルギー広がり小さい、超短パルス電子銃の開発である。開発する電子銃は、超高速電子線回折の分野で広く用いられている、フェムト秒レーザーを励起源とするフォトカソード型をベースとする。しかしながら、この型の電子銃を、電子のエネルギー分析が必要となる電子非弾性散乱実験へ適用するためには、パルス幅のみならずエネルギー広がりも同時に抑制しなければならないなど、開発要素は格段に増える。そこで、本研究計画期間の3年で達成可能な次の3つを当初の具体的目標とした。

- (1) サブナノ秒のパルス時間幅
- (2) 10 keVの入射電子エネルギー
- (3) 10 eV以下のエネルギー幅

3. 研究の方法

超短パルス電子線源として、フェムト秒レーザーを励起源とするフォトカソード型パルス電子銃の設計・製作を行う。フォトカソード用の金属やその薄膜厚の精査、およびカソードおよびアノード電極形状の設計・製作を行い、研究代表者の所属する研究グループで所有するフェムト秒レーザーシステムを使用して、超短パルス電子線を生成させる。パルス電子の発生を確認したら、電子線のエネルギー幅の改善を試みる。最終的に、開発した電子銃を時間分解電子運動量分光装置に実装し、パルス電子線による(e, 2e)実験を試みる。具体的な研究項目をまとめると、下記の通りである。

- (1) 超短パルス電子銃試作機の製作およびその性能評価

- (2) パルス電子特性（時間幅およびエネルギー幅）のシミュレーションプログラムの開発と電子線発生条件の最適化
- (3) パルス電子銃の(e, 2e)電子運動量分光への適用

4. 研究成果

(1) フォトカソード型パルス電子銃の試作機（一号機）を製作し、その性能評価のための真空チャンバー（評価用チャンバー）の整備を行った。フォトカソードはサファイア基板に銀薄膜を蒸着したもので、膜厚が30, 40, および50 nmの3パターンを用意した。電子銃設計のポイントは、電子パルス中の空間電荷効果によってパルスの時間幅 Δt およびエネルギー幅 ΔE が広がってしまう前に、できるだけ速やかに電子を標的へ衝突させることである。そのため、フォトカソードから標的までの距離 L が短くなるように、フォトカソード、アノード、ディフレクター、およびピンホールからなる簡便な電子銃を製作した（ $L = 94$ mm）。また、将来的に時間分解能の向上（サブピコ秒）を視野に入れて、強い静電場（ ~ 10 kV/mm）をカソードアノード間に生成できるように、放電防止対策を施した。すなわち、カソードホルダーは丸い形状とし、カソードホルダーとアノード表面に電解研磨を施して表面粗さを極力低減した。

作成した電子銃は整備した評価用チャンバーへ実装し、電子パルス発生の確認および Δt の簡易測定を試みた。まず、フェムト秒レーザー（中心波長800 nm、パルス幅120 fs、繰り返し周波数5 kHz）からの光を266 nmに波長変換した後、フォトカソード（銀薄膜厚40 nm）に照射して、発生したパルス電子をチャンネル型電子増倍管で検出したところ、レーザーと同期したパルス電子線の発生を確認した。図1は、検出された信号の立ち上がり時間をカソードに印加する電圧に対してプロットした図である。カソード電圧を上げるにつれて、立ち上がり時間は短くなり、

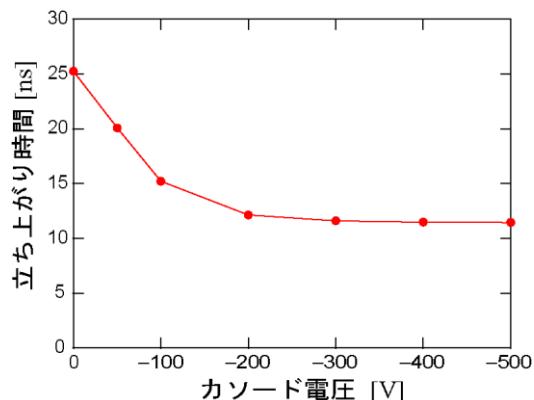


図1 パルス電子信号の立ち上がり時間のカソード電圧依存性

-300 V 程度で約 10 ns に収束する様子が見て取れる。この結果は、カソード電圧を上げるとパルス電子の平均速度が上がり、より早く衝突点に到達するため、空間電荷効果による Δt の広がり小さいまま、検出器に到達する様子を反映している。本評価実験により、カソード電圧-300 V 以上で発生したパルス電子の時間幅 Δt は、少なくとも本検出系の測定限界 (約 10 ns) よりも短いことが分かった。

以上により、作成した電子銃の試作機は、10 ns 以下の Δt のパルス電子線を発生することを確認したため、次にそのエネルギー幅 ΔE の測定を試みた。 ΔE の測定には、研究代表者が所属するグループで開発中の時間分解電子運動量分光 (TREMS) 装置を用いた電子弾性散乱実験データを利用した。準備段階として、TREMS 装置の信号処理回路の製作や、高感度二次元検出器の立ち上げなどを行い、熱電子銃によるアナライザの動作確認を行った後、作成したパルス電子銃一号機を TREMS 装置へ実装した。図 2 は入射電子エネルギー E_0 を 590, 600, および 610 eV に変化させて得られた、弾性散乱スペクトルである。

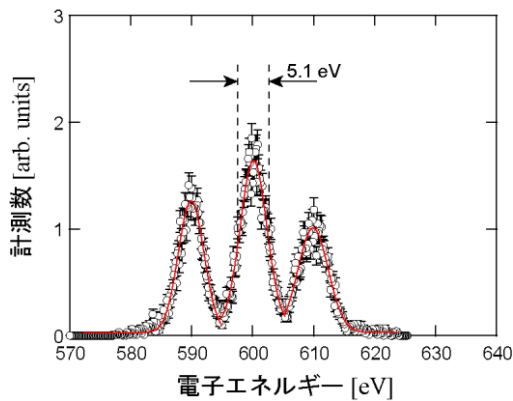


図 2 パルス電子銃一号機による弾性散乱スペクトル ($L = 94$ mm, $I_0 = 3$ pA)

スペクトルのエネルギー幅 (半値全幅) は $E_0 = 600$ eV の時、約 5.1 eV である。アナライザの分解能 (理論値で 2.7 eV) を考慮すると、パルス電子のエネルギー幅は 4.3 eV と推定される。この結果は、 ΔE としては所期の性能は満足する。しかし、その強度 I_0 は約 3 pA と非常に弱く抑えなければならないことが分かった。フォトカソードへ照射するレーザー強度を上げて I_0 を上げると、たちまち空間電荷効果により ΔE は広がってしまうので、電子非弾性散乱実験一般へ本電子銃を適用するためには、 ΔE を広げることなく、 I_0 を増大させる必要がある。

(2) パルス電子銃一号機の性能評価実験と並行して、空間電荷効果を考慮したシミュレーションプログラムを作成し、目標とする性

能を持つパルス電子の生成条件の検討を行った。図 3 は、ドリフト領域においてエネルギー幅 ΔE とパルス幅 Δt がどのように変化するかを、飛行距離に対して表したシミュレーション結果である。なお初期条件は、ビーム

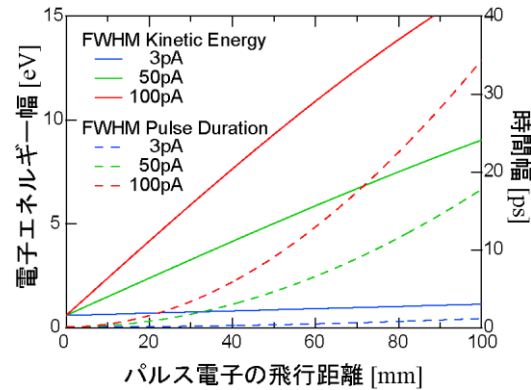


図 3 パルス電子の時間幅とエネルギー幅の飛行距離に対する依存性

径 $d_0 = 2$ mm、初期パルス時間幅 $\Delta t_0 = 120$ fs、入射エネルギー $E_0 = 1.2$ keV、初期パルスエネルギー幅 $\Delta E_0 = 0.6$ eV とし、レーザーの繰り返し周波数を 5 kHz として電子銃強度 I_0 が 3, 50, および 100 pA について計算を行った。図 3 から、飛行距離 $L = 94$ mm の電子銃一号機では、 ΔE が電子銃強度の増大に伴って、電子分光への適用が不可能なほど広がってしまうことが分かる。 ΔE を小さく保ちつつも、 I_0 を向上させるには、 L を短くする方法が有効であることが分かる。そこで、一号機の評価実験において不要と判断したディフレクターを取り除くなどして、飛行距離の極限的な短縮を図り、フォトカソードから標的までの距離が 10 mm のパルス電子銃二号機を製作するに至った。

図 4 は、電子銃二号機を用いて得られた弾性散乱スペクトルである。特筆すべきは、 I_0

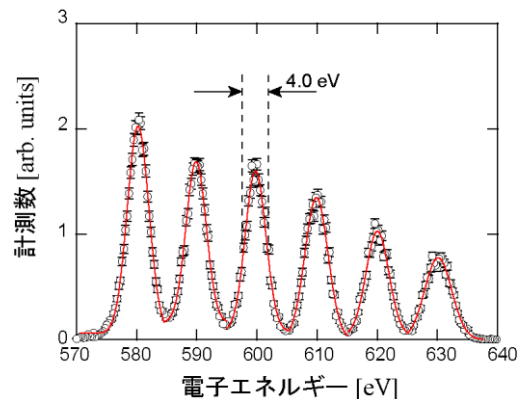


図 4 パルス電子銃二号機による弾性散乱スペクトル ($L = 10$ mm, $I_0 = 50$ pA)

を 50 pA と、一号機に比べ 16 倍以上に上げても、 ΔE (推定値は 3.1 eV) がむしろ改善されている点である。これにより、電子非弾性散乱実験へ本電子銃を適用する見通しを立てるに至った。

(3) (e, 2e) 電子運動量分光が対象とする反応は、電子衝撃イオン化において大きなエネルギー損失と移行運動量を伴うため、その反応断面積が極めて小さい電子非弾性散乱過程である。したがって、本電子銃で電子運動量分光 (EMS) 実験が可能となれば、多くの電子非弾性散乱実験への適用性が期待できる。そこで本研究では、開発した電子銃を用いた EMS 実験を試みた。EMS では、高速電子衝撃イオン化で生成する非弾性散乱電子と電離電子を同時計測するため、反応前後のエネルギー保存則から、電子の束縛エネルギースペクトルを得ることができる。図 5 は、電子銃二号機を用いた EMS 実験で得られた Ar 原子の電子束縛エネルギースペクトル (BES) である。なお、フェムト秒レーザーパルス (266

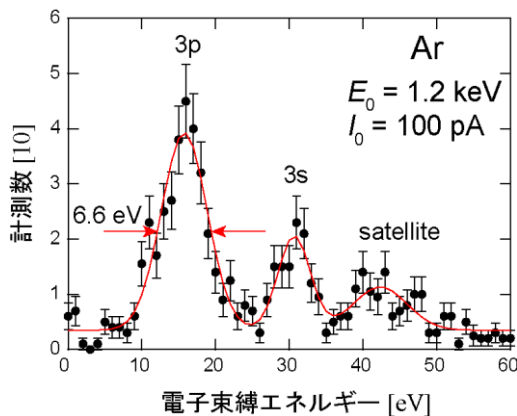


図 5 電子銃二号機による EMS 実験で得られた Ar の束縛エネルギースペクトル

nm) を分割・合流させて実効的な繰り返し周波数を上げることで、 $I_0 = 100$ pA を達成している。統計はまだ改善の余地があるが、BES には Ar 3p および 3s 軌道からのイオン化とサテライト状態への遷移に対応するバンドが明瞭に観測されており、開発したパルス電子銃による EMS 信号を検出することに成功した。なお、束縛エネルギーに対する分解能 ΔE_{bin} は 6.6 eV であり、Ar (3p)⁻¹ と (3s)⁻¹ 状態のエネルギー差 (約 13.4 eV) は十分に分離可能で、一般の電子状態を調べるのにも有効である。

本研究では電子非弾性散乱実験に適用可能な超短パルス電子銃の開発を行った。開発した電子銃は、入射エネルギー 1.2 keV で、エネルギー幅を 5 eV 以下に抑えつつも、反応断面積の小さな EMS 信号を検出可能な強度 (100 pA) を得ることができる。パルス電子

の時間幅については、10 ns より短いことは確認できたが、その詳細な測定は今後の課題である。研究計画立案当初に目標として掲げた 10 keV の入射電子エネルギーは、所期の時間幅 (サブナノ秒) を達成するために設定したものであるが、電子銃の改良を進める過程で、入射エネルギー 1.2 keV でもサブナノ秒以下の時間幅を優に達成できる (シミュレーションでは約 0.3 ps) ことが分かった。したがって、エネルギー分解能の改善を優先させて、入射エネルギーは 1.2 keV で研究を行った。本電子銃の性能をまとめると、
 (1) 10 ns 以下のパルス幅 (計算値は 0.3 ps)
 (2) 1.2 keV の入射電子エネルギー
 (3) 5 eV 以下のエネルギー幅 (繰り返し周波数が 10 kHz で電子線強度が 100 pA のとき) となる。以上の結果から、本研究により、所期の性能を満足した電子銃の製作および最適化に成功したと結論できる。

(4) 超短パルス電子線技術は、国内外においてもつばら電子弾性散乱を対象とした電子線回折実験に利用されている。そこで用いられる電子銃は、パルス電子の時間幅の短縮を優先するため、エネルギー幅に対して最適な条件でない。本研究で開発した電子銃は、パルス電子のエネルギー幅を小さくするように最適化しており、散乱電子のエネルギー分析と組み合わせることで標的の電子状態について調べることが可能となる。今後、開発した電子銃の時間幅について、ピコ秒オーダーのより詳細な測定を行い、時間分解電子非弾性散乱実験を実現することで、電子線をプローブとした新規分光法の開拓へと繋がることを期待される。

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 13 件)

① M. Yamazaki, H. Satoh, M. Ueda, D. B. Jones, Y. Asano, N. Watanabe, A. Czasch, O. Jagutzki, M. Takahashi, A highly sensitive electron momentum spectrometer incorporating a multiparticle imaging detector, Meas. Sci. Tech., 査読有, Vol. 22, 2011, pp. 075602-1-13

② 山崎優一、分子座標系での光電子角度分布測定による光イオン化ダイナミクスの研究、原子衝突研究協会誌、査読有、8 巻、5 号、2011、6-17

③ D. B. Jones, M. Yamazaki, N. Watanabe, M. Takahashi, Electron-impact ionization of the water molecule at large momentum transfer above the double-ionization threshold, Phys. Rev. A, 査読有, Vol. 83,

2011, pp. 012704-1-8

④ M. Yamazaki, J. Adachi, Y. Kimura, M. Stener, P. Decleva, A. Yagishita, N. Is photoelectron angular distributions from fixed-in-space NO_2 molecules: Stereodynamics and symmetry considerations, J. Chem. Phys., 査読有, Vol. 133, 2010, pp. 164301-1-9

⑤ 山崎優一、渡邊昇、高橋正彦、(e, 2e) 電子運動量分光の過去、現在、そして未来、原子衝突研究協会誌、査読有、7 巻、2 号、2010、4-26

[学会発表] (計 39 件)

① 山崎優一、波動関数の立体特性を解明する多次元電子分光法の開発とその分子科学への応用、第 11 回東北大学多元物質科学研究所研究発表会、2011 年 12 月 8 日、仙台

② 山崎優一、佐藤弘典、渡邊昇、Darryl B. Jones、高橋正彦、 H_2 の電子運動量分布の精密観測：核間距離を反映した干渉効果、第 5 回分子科学討論会、2011 年 9 月 20 日、札幌

③ 山崎優一、分子座標系光電子角度分布測定による内殻光イオン化ダイナミクスの研究、原子衝突研究協会第 36 回年会、2011 年 8 月 18 日、新潟

④ 山崎優一、川瀬裕也、葛西裕治、高橋正彦、時間分解電子運動量分光法の開発による物質内電子移動の可視化、第 10 回東北大学多元物質科学研究所研究発表会、2010 年 12 月 1 日、仙台

⑤ 山崎優一、佐藤弘典、D. B. Jones、浅野佑策、渡邊昇、A. Czasch、O. Jagutzki、R. Doerner、高橋正彦、電子運動量分光の超高感度化：波動関数形の精密分光を目指して、第 4 回分子科学討論会、2010 年 9 月 16 日、大阪

⑥ M. Yamazaki, M. Takahashi, Future prospects of EMS in Sendai, International Workshop on Frontiers of Electron Momentum Spectroscopy 2010, 2010 年 9 月 9 日、仙台

⑦ M. Yamazaki, 3D mapping of core-level photoemission from a single oriented H_2O molecule, 11th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure, 2009 年 10 月 6 日、奈良

[図書] (計 1 件)

① J. Lower, M. Yamazaki, M. Takahashi, Cambridge University Press, (e, 2e) spectroscopy using fragmentation processes in “Fragmentation Processes”, 2012, pp. 158-177

[その他]

ホームページ等

<http://www.tagen.tohoku.ac.jp/modules/l>

laboratory/index.php?laboid=42

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山崎 優一 (YAMAZAKI MASAKAZU)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号：00533465

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：