

PHOTOCATHODE RF GUN BASED MeV ELECTRON MICROSCOPY

Jinfeng Yang^{#A)}, Takafumi Kondoh^{A)}, Koichi Kan^{A)}, Nobuyasu Naruse^{A)}, Yoshie Murooka^{A)}, Yoichi Yoshida^{A)},
Katsumi Tanimura^{A)}, Junji Urakawa^{B)}

^{A)} The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University
8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka, 567-0047

^{B)} High Energy Accelerator Research Organization
1-1 Oho, Tsukuba, Ibaraki 305-0801

Abstract

A time-resolved MeV electron microscopy (UEM) based on a femtosecond photocathode electron rf gun has been developed in Osaka University for the study of photon-induced dynamic of materials in femtosecond time region and nanometer real space. A new photocathode rf electron gun, developed with a new structure cavity and many improvements, was succeeded to produce directly a near-relativistic femtosecond electron beam with energy of 1-3 MeV. The beam dynamics in the rf gun was investigated to generate a low-emittance and femtosecond-bunch electron beam for UEM.

フォトカソード RF 電子銃を用いた MeV 電子顕微鏡の開発

1. はじめに

物質における多くの高速物理・化学現象（例えば、固体における構造相転移現象、分子系における化学反応、生態系における諸エネルギー変換・情報伝達などの高速現象）は、フェムト秒またはサブフェムト秒の時間スケールで進行している。フェムト秒時間領域での分子や原子集団の動力学研究とその高速反応機構の本質的な理解は、物理・化学・生物学などの多くの分野が関係する重要な研究であり、グリーンイノベーションならびにライフイノベーションの発展に寄与するナノ材料、高効率触媒や生体機能材料の設計・創製、新たな反応経路の設計などの応用科学分野においても極めて重要である。

物質内の高速物理化学反応の詳細は、主として、フェムト秒超短パルスレーザーを利用し、可視・紫外・赤外領域における光学スペクトルの解析を通じて得られてきた。物質系における構造変化の知見を獲得する手法として、Spring-8 を始めとする大型放射光施設から発生したピコ秒短パルス X 線を利用した時間分解 X 線回折法がある。最近になって、加速器から生成したエネルギーが数 MeV または数十 MeV のピコ秒とフェムト秒短パルス電子ビームは、荷電粒子性といった見地からレーザー・X 線と異なった短パルスビームとして注目され、物質内超高速反応現象の解明・構造変化の追跡などのさまざまな先端的研究に欠かせない道具となっている。それらの研究の典型的な対象例は、超高速時間分解電子線回折（Ultrafast Electron Diffraction, UED）法[1,2]である。電子線は X 線に比べて大きな弾性散乱断面積によって、回折効果の検出効率の大幅な増加と非弾性散乱による照射効果の低減が可能であるから、UED 法は構造変化ダイナミクスの知見を直接的に獲得する有力な実験手法として大きく発展した。最近では、

フェムト秒短パルス電子ビームを利用し、フェムト秒時間領域での光励起による種々の構造変化過程に関する詳細な知見が獲得されつつある。しかし、空間分解能がなく、イメージングの測定はできない。

そこで、我々はフォトカソード RF 電子銃と短パルス電子ビーム発生経験を生かして、時間分解機能を付加した次世代のフェムト秒時間分解・MeV 電子顕微鏡の開発をスタートした。昨年度には、本プロジェクトを遂行するために、高性能フォトカソード RF 電子銃を製作し、電子顕微鏡の入射系の開発を行った。また、フォトカソード RF 電子銃を用いたシングルショット MeV 電子線回折の測定とフェムト秒時間分解電子線回折の測定に成功した。

2. フォトカソード RF 電子銃を用いた MeV 電子顕微鏡システム

前年度の加速器学会の年會に紹介したように、時間分解電子顕微鏡[3]は、ナノスケールでの構造変化や高速現象を追跡することが可能であるから、広い学問分野で大きな注目を集めている。現在、時間分解電子顕微鏡の分解能は、加速電圧が 100 ~ 300keV の DC 電子銃からのナノ秒電子線パルスを利用した single-shot 測定法により、時間的に数ナノ秒から数十ナノ秒、空間的に 1 から 10nm まで到達しており、ナノ秒時間領域での構造変化やダイナミクスの解明が可能となっている。しかし、DC 電子銃においては、空間電荷効果の制約によりピコ秒またはフェムト秒の大強度電子線パルスの発生が難しいため、single-shot 測定にはピコ秒またはその以下の時間分解能が向上できないと考えられる。高時間分解を得るために、米国の California 技術研究所のグループは、フェムト秒レーザーパルス励起による MHz 高繰返しシングル電子パルス（パルス当たり 1 個または数個の電子）を発生し、ストロボスコープ法を利用した時間分解電子顕微鏡の開発を行ってきた。し

[#] yang@sanken.osaka-u.ac.jp

かし、空間分解能はマイクロメートルにしかない状況である。

図 1 に、我々が開発中であるフォトカソード RF 電子銃を利用した時間分解・MeV 電子顕微鏡の構成図を示す。本装置は、フェムト秒短パルス電子ビームを発生するレーザーフォトカソード RF 電子銃、高輝度電子ビーム入射部、電子顕微鏡イメージ像を高精度で結像可能にする電子レンズを含む結像部と微弱な回折ビームを高感度に検出する検出部から構成されている。各装置の特徴としては、1) 電子線パルス発生部には、高精度のフェムト秒フォトカソード RF 電子銃を用いた。2) 高輝度電子ビーム入射部は、電子ビーム輸送中空間電荷効果によるエミッタンス増大を補正するソレノイド電磁石、コンデンサレンズ (CL) 2 台とコンデンサ絞りから構成されている。電子銃から発生したフェムト秒短パルス電子ビームは、ソレノイドによりエミッタンス補正され、コンデンサ絞りによるコリメートされた後、CL によって厳密に制御されて試料に小さい収束角 θ で入射する。この収束角 θ は、観測されるイメージ像のシャープさを決定する最大要因の一つであり、典型的な透過型電子顕微鏡では $\theta = 3 \sim 10 \times 10^{-4} \text{rad}$ になっている。この特性は、発生した電子線パルスビームのエミッタンスと CL の特性の両者に

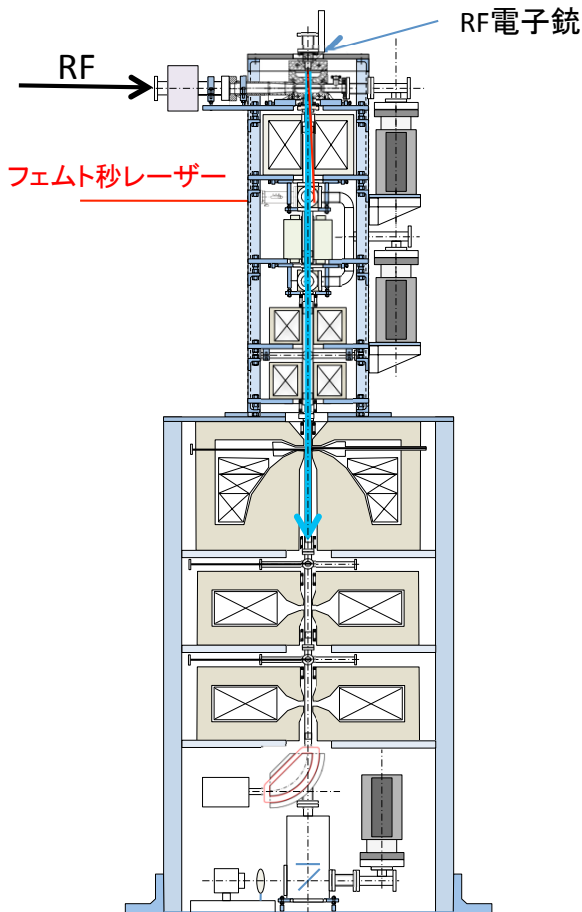


図 1: フォトカソード RF 電子銃を用いた時間分解 MeV 電子顕微鏡の概念図

よって決定される。我々のフォトカソード RF 電子銃を用いた MeV 電子線回折の実験 [2] では、 $\theta = 5 \times 10^{-5} \text{rad}$ に実現した。試料での目指すビームサイズは $10 \mu\text{m}$ である。3) 結像部には、最大磁場強度が 2.4T の対物磁気レンズ、中間磁気レンズと投影磁気レンズを用いた。色収差や非点収差などを最小化しており、電子レンズ系として十分な特性が実現されている。4) 超高速のイメージ測定には、検出器そのものの時間分解能に依存しないが、電子波の高感度検出は極めて重要である。特に、非可逆過程への測定を実現するためには、single shot でのイメージを測定する必要がある。それ以外にも、RF 電子銃開発の項で述べたように、相対論的電子ビームに対しても空間電荷効果は、パルス幅、エミッタンスおよびエネルギー分散に対して増大効果をもたらすため、可能な限りの測定が望まれる。そこで、我々が MeV 電子線回折測定に成功したパルスあたり少数の電子数でも測定可能な T1 をドープした CsI の柱状結晶化素子と浜松フォトニクス社製の Fiber Optic Plate を採用した。

3. フォトカソード RF 電子銃とフェムト秒短パルス電子ビームの発生

今の電子顕微鏡では用いられている電子ビーム源は、DC 的に加速する DC 電子銃が主流である。しかし、DC 加速方式では、100keV/cm 程度が限界であり、得られる電子のエネルギーは最大で 50KeV 程度になる。このエネルギー領域では、電子線パルス内での空間電荷効果が極めて大きくなり、ナノ秒より短い超短時間の時間分解能が得られない。また、ピコ秒以下の電子線パルスを得るためには、電子数がパルスあたり数千個に限定され、単一パルスによる回折像やイメージ像の測定が不可能であって、非可逆的相転移現象に適応できない、将来的に展開されるべき原子像イメージング達成への大きな障害になる。

我々は、これらの諸問題を克服するため、100fs またはそれを切る極短パルス RF 電子銃の開発を始めた。図 2 に、高エネルギー加速器研究開発機構と共同研究で開発した最新型フェムト秒短パルス RF 電子銃を示す。dark current (暗電流) や、加速する RF によるエミッタンスとエネルギー分散の増大を極限まで低減するために、加速空洞の高性能化を目指して、以下のような 5 つの改良を行った。

- 1) 加速空洞の形状については、従来の BNL 型形状ではなく、丸型キャビティを採用した。これにより、最も対称性が良い理想的な RF 加速電場をつくることができる。加速空洞の Q 値は従来の BNL 型加速空洞の 1.6 倍となった。
- 2) 従来のフルセルに取り付けられたピン挿入型のチューナーからセル壁面を変形させる新型チューナーに変更した。また、ハーフセルにも新型チューナーを取り付け、フルセルとハーフセルのカップリング調整を容易にして、フィールドバランスがより高精度で得られる。
- 3) 従来のハーフセルに設置された 67° のレーザー入射ポートを取り外した。2) と合わせ

た 2 つの改良によりハーフセルとフルセルの軸対称性が改善された。

- 4) ハーフセルとカソードプレートにロウ付けする構造を採用した。従来の RF 電子銃では、カソードプレートはハーフセルにヘリコフレックスで取り付けられ、カソードプレートとハーフセルの間に隙間ができ、放電や暗電流発生の原因となった。ハーフセルとカソードプレートのロウ付けにより、カソードプレートとハーフセルの間に隙間がなくなり、RF 電子銃からの暗電流を測定の限界 (0.1pC 以下) まで低減することができた。

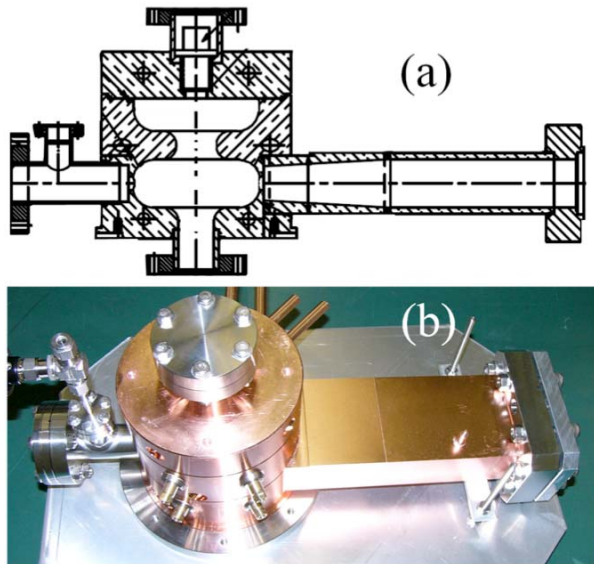


図 2: フェムト秒フォトカソード RF 電子銃

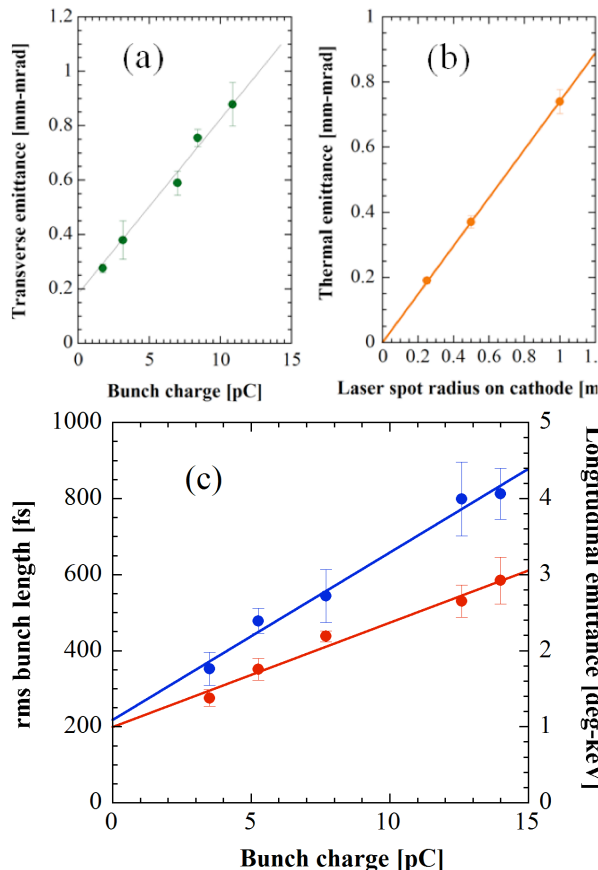


図 3: フォトカソード RF 電子銃から発生したフェムト秒短パルス電子ビームの特性

- 5) カソードプレートにカソードプラグの挿入機構を設けた。これにより、フォトカソードの交換が可能になり、透過型カソードなどの新しいフォトカソードの研究開発にもつなげた。

本 RF 電子銃の加速空洞をピークパワー1~5MW の RF で駆動した場合、電子ビームの加速エネルギーは 1~3MeV であった。本 RF 電子銃に、無酸素銅カソードを採用し、光源として、フェムト秒 Ti:Sapphire レーザーの 3 倍波 (266nm、時間幅 90fs) を用いた。表 1 に、RF 電子銃から発生する電子ビームパラメーターの目標値を示す。RF 電子銃におけるビームダイナミクスの研究では、カソードにダメージを与えない為に、200 フェムト秒の Ti:Sapphire レーザーの UV 光パルスを利用した。パルス当たりの電荷量を変えながら、発生した電子ビームのパルス幅や Transverse (横) と Longitudinal (縦) 方向のエミッタンス⁹⁾を測定し、空間電荷効果によるパルス幅の増大とエミッタンスの増大を定量的に評価した。

まず、空間電荷効果による電子ビーム横方向エミッタンスの増大量は、パルス電荷量が 15pC までの時、1pC 当たり 0.07mm-mrad であった。しかし、利用する電荷量が 10pC 以下の範囲では、空間電荷効果による横方向エミッタンスの増大はほぼ完全に無視できることが実験的に明らかになった。無酸素銅カソードにおける熱エミッタンスは、入射するレーザーのスポット径に依存し、図 3 に示す線形関係から、カソードでのレーザーのスポット半径が 0.1mm 以下であれば、設計目標の 0.1mm-mrad の極低エミッタンスが得られることが分かった。

電子ビームのパルス幅と縦方向エミッタンスについては、空間電荷効果によるそれぞれの増大量は、1pC 当たり 27.4fs と 0.22deg-keV であった。RF 電子銃から発生した電子ビームのパルス幅と縦方法のエミッタンスはカソードに照射するレーザーのパルス幅により決められている。ビームダイナミクスの研究では 200 フェムト秒のレーザー光パルスを用いたが、実際の電子回折測定装置の RF 電子銃においては、90 フェムト秒の UV レーザーを使用し、電荷量は高々 1~3pC であるため、より短パルス・低エミッタンスの電子ビーム (パルス幅<100fs、横方向エミッタンス 0.1mm-rad、エネルギー分散 $10^{-3} \sim 10^{-4}$) が得られている。

参考文献

- [1] J. Yang, et. al., *Radiat. Phys. Chem.* **78**, (2009) 1106.
 [2] Y. Muro'oka, et. al., *Appl. Phys. Lett.* **98**, (2011) 251903.
 [3] 楊金峰、他、第 7 回日本加速器学会年会 Proceedings 集、2010。