

## 超高速電子顕微鏡用の RF 電子銃の開発

### DEVELOPMENT OF RF GUN FOR ULTRAFAST ELECTRON MICROSCOPY

楊金峰<sup>#, A)</sup>, 菅晃一<sup>A)</sup>, 高富俊和<sup>B)</sup> 樊寬軍<sup>C)</sup>, 照沼信浩<sup>B)</sup>, 浦川順治<sup>B)</sup>, 吉田陽一<sup>A)</sup>  
Jinfeng Yang<sup>#, A)</sup>, Koichi Kan<sup>A)</sup>, Toshikazu Takatomi<sup>B)</sup>, Kuanjun Fan<sup>C)</sup>, Nobuhiro Terunuma<sup>B)</sup>, Jyunji Urakawa<sup>B)</sup>,  
Yoichi Yoshida<sup>A)</sup>

<sup>A)</sup> The Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR), Osaka University

<sup>B)</sup> High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

<sup>C)</sup> Huazhong University of science and Technology, China

#### Abstract

Ultrafast electron microscopy (UEM) with femtosecond temporal resolution is a “dream machine” that has been long envisioned for the study of ultrafast structural dynamics in materials. In this paper, we report a UEM with relativistic femtosecond electron pulses generated by a radio-frequency (rf) photoemission gun. The status of development of 1.6-cell rf guns with three kind different cavities is presented. Finally, we has proposed a new 1.4-cell rf gun to generate a low-emittance, low-energy-spread and femtosecond-pulsed electron beam for the relativistic UEM.

#### 1. はじめに

フェムト秒時間領域での原子や分子レベルの超高速構造ダイナミクスの観察は、物質科学研究者の長年の夢であり、新しい物質の創製・機能の発見に重要な役割を果たす。例えば、光誘起相転移では、アト秒スケールの電子励起がフェムト秒・ピコ秒スケールの原子移動を引き起こし、新たな物質相が形成されていく。このような新物質の創製・機能の発現には、実の時間と実の空間スケールでの構造変化の素過程を実験的に観察し理解することは必要不可欠である。電子顕微鏡は物質の微細構造を原子・分子レベルで直接観ることが可能な強力な装置であるが、汎用の電子顕微鏡では高時間分解能を有することがなく、フェムト秒・ピコ秒時間領域での構造変化の観察がまだ不可能である。

そこで、我々は、長年に開発しつづけた先端加速器技術であるレーザーフォトカソード高周波 (RF) 電子銃とこれを用いて低エミッタンスのフェムト秒電子線パルス発生技術と経験を活用し、世界に先駆けて相対論的フェムト秒電子線パルスを用いた超高速電子顕微鏡装置の開発を行ってきた[1,2]。現在、エネルギーが 3 MeV のフェムト秒電子線パルスを用いて、実証実験ではナノ粒子や微細構造体の透過電子顕微鏡像の観測に成功した[3,4]。また、電子線回折の測定では、単一のフェムト秒電子線パルスによる観察を実現し、フェムト秒・ピコ秒時間領域での結晶構造相転移の測定に成功した[5,6]。今後、エミッタンスやエネルギー分散の低減、ビーム強度の増強、拡大倍率の向上を行うことにより空間分解能を向上させ、時間分解構造解析法を通して、様々な物質における超高速で進行する構造相転移や物理化学反応素過程に関する応用研究を推進して行こうと考えている。そのために、我々は、まず、今までの製作し易い矩形型 RF 電子銃加速空洞から丸型空洞と楕円型アイリスを変更し、最適化した新しい加速空洞から構成された新型 1.6 セル RF 電子銃を設計・製作した。この RF 電子銃を

用いて、RF の非線形成分によるエミッタンスの増大を低減し、0.1mm-mrad の低エミッタンスフェムト秒電子線パルスの発生に成功した。

次に、エネルギー分散の低減、ビーム電流の向上の為に、新たに最高繰返し 1kHz の常伝導 1.4 セル RF 電子銃を設計し、高エネルギー加速器研究機構 (KEK) と共同で開発する事になった。今後、この新しい RF 電子銃を用いて、規格化エミッタンスが 0.02 mm-mrad、エネルギー分散が  $10^{-5}$ 、パルス幅が 100fs、ビーム電流が 100pA の電子ビームを発生し、超高速 MeV 電子顕微鏡の開発を推進する。

#### 2. RF 電子銃を用いた超高速電子顕微鏡の開発現状

近年、短パルス電子線を用いた超高速電子顕微鏡 (Ultrafast Electron Microscopy, UEM) の研究は、米国とヨーロッパを中心に行われ、固体-液体の相転移、核の形成、過渡的な分子構造等の観察が試みられてきた[7,8]。現在の UEM 実験では、汎用の 200kV クラス電頭の電子銃を直流 (DC) フォトカソード電子銃に置き換えることによって、電子を短パルス化する試みが行われている。しかし、200kV の電頭では加速電圧が低く、電子の走行中における空間電荷効果によるパルス時間幅、エネルギー幅およびビーム径が大きく広がるため、時空間分解能は 10ns と 10nm に留まっている[8]。この「空間電荷効果」の問題を解決する手法として、電子パルス密度を究極に 1 個まで下げる方法等が報告されている[7]。しかし、この方法は高時間分解電子顕微鏡のための電子源に求められる仕様からかえって遠ざかるものであり、また、この方法を用いた観察は可逆的な現象だけに限定される。一般的な物質生成過程や構造変化過程の殆ど

<sup>#</sup> yang@sanken.osaka-u.ac.jp

が不可逆的な過程であるので、単一パルスにより電子顕微鏡像を捉えなければ、構造変化過程の観測が困難である。

「空間電荷効果」の問題を克服する為に、我々が世界に先駆けてRF電子銃を用いたフェムト秒時間分解MeV電子顕微鏡実証機を製作した。図1に製作した世界初のRF電子銃を用いた電子顕微鏡実証機を示す。本装置は、相対論的エネルギー領域での低エミッタンス・フェムト秒短パルス電子ビームを発生する fotocathode RF電子銃、電子ビームの入射および制御を行う入射電子レンズ系と、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MeV電子ビーム透過像を高感度で測定する検出部から構成されている。

我々は、低エミッタンス・低エネルギー分散の電子ビームを得るために、今まで使用しているRF電子銃の空洞を最適化し、カソードに照射するレーザーの高度化を行い、規格化エミッタンスが0.12mm-mrad、パルス幅が100fs、電荷量が1pC、エネルギーが3.1MeVの電子線パルスの発生に成功した。この電子線パルスを用いて、直径1.1 $\mu$ mのポリスチレン微粒子と直径が400nmの金ナノ粒子の電子顕微鏡像の観測に成功した[3,4]。

### 3. RF電子銃の開発と現状

#### 3.1 1.6セルRF電子銃の開発現状

高倍率の電子顕微鏡像や高空間分解能を得るためには、極低エネルギー分散と極低エミッタンスの電子ビームが必要不可欠である。目標の1nmの空間分解能を実現させるには、電子銃から発生する短パルス電子ビームのエネルギー分散を $10^{-5}$ 、規格化エミッタンスを0.02mm-mradに抑えなければならない。そのために、まず、我々は今の1.6セルRF電子銃の加速空洞の形状を最適化し、RF効果によるエネルギー分散やエミッタンスの増大を極力抑えた。図2に、日本の多くの研究施設に使われている1.6セルRF電子銃の進化を示す。2007年までは、多くのRF電子銃には加工し易い、BNLタイプの矩形型加速空洞が用いられている。このタイプのRF電子銃の欠点として、 $\pi$ モードと0モードの共振周波数差( $\Delta f=3.5$ MHz)が小さく、Q値も小さいことがある。これらの欠点を改善する為に、2010年にKEKの浦川グループが丸型加速空洞を採用した。図2(b)に示す。これにより、 $\pi$ モードと0モードの共振周波数差を8.5MHzに広げることができ、Q値を20%に向上し、120MV/mの最



Figure 1: The prototype relativistic ultrafast electron microscopy using a photocathode rf gun.

大電場を達した。

超高速電子顕微鏡用の電子源には、短パルス、低エミッタンス、低エネルギー分散、高繰返し等の性能が求められている。そのために、我々は、今の1.6セルRF電子銃に丸型加速空洞を用いる他に、空洞と空洞の間に楕円形状のアイリスを採用し、アイリスの径も最適化した。図2(c)に、2014年に高エネルギー加速器研究機構(KEK)と共同研究で開発した電子顕微鏡用の最新型1.6セルRF電子銃を示す。このRF電子銃には、以下の3つの特徴を有する。

- 1) 丸型加速空洞と楕円形状アイリスの組合せにより、加速空洞内の電場の非線形成分を低減することができ、最も対称性が良い理想に近いRF加速電場が実現できた。
- 2) ハーフセルとフルセルの間のアイリス直径を29mmに大きくして、 $\pi$ モードと0モードの共振周波数差を15.2MHzまでに広げ、アイリスの表面電場強度を低減することができた。従来のRF電子銃ではアイリスの表面電場強度がカソード表面より1割高くなっているが、本電子銃ではカソード表面より1割低くなった。これにより、空洞温度変化によるfield balanceなどの影響(温度の敏感さ)が受けにくく、tuningやtoleranceの敏感さが緩和され、低繰返しから高繰返しでの安定な運転につながる。また、RF加速位相によるエミッタンスの変化が小さくなり、パルス内のエネルギー分散の低減も期待できる。
- 3) ハーフセルとフルセルにセル壁面を变形させる新型チューナーを取付け、ハーフセルとカソードプレートに金ロウ付けする構造を採用した。カソードプレートにカソードプラグの挿入機構を設け、 fotocathodeの交換が可能になった。将来に透過型カソードなどの新しい fotocathodeの研究開発にもつながる。

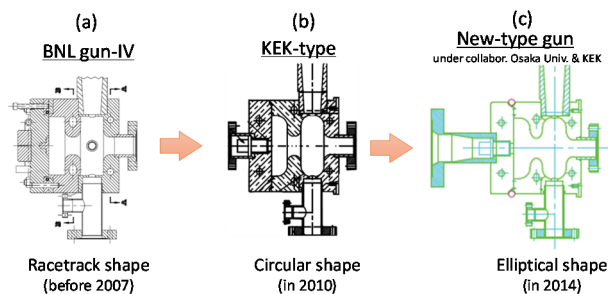


Figure 2: Status of 1.6-cell RF guns.

電子顕微鏡の原理実証実験では、無酸素銅カソードに、パルス幅が 100fs のフェムト秒 Ti:sapphire レーザーの 3 倍波(266nm)を照射することにより、規格化エミッタンスが 0.12 mm-mrad、エネルギー分散が  $10^{-4}$ 、パルス幅が 100fs、電荷量が 1pC の電子ビーム発生に成功した。

### 3.2 1.4 セル RF 電子銃の設計と製作

1.6セル RF 電子銃の最大欠点は、低エネルギー分散と低エミッタンスの電子ビームを発生する最適な RF ガン位相( $\sim 30^\circ$ )が低いことである。この位相下の運転では、カソード表面での実際に寄与する加速電場は最大電場の 1/2 であり、 $E_0 \sin \phi = 0.5 E_0$ 、空間電荷効果の低減や高繰返し化に対して不利の条件である。ここで、本研究では、1.4 セルの RF 電子銃を提案し、超高速電子顕微鏡の新しい電子源として設計・製作を試みた。

新たな 1.4 セル RF 電子銃では、丸型加速空洞と楕円形状アイリスを採用し、加速空洞内の電場の非線形成分の低減と、最も対称性が良い理想に近い RF 加速電場の実現を目指した。Q 値とシャントインピーダンスが従来の 1.6 セル RF 電子銃と同じ性能を維持する事ができ、 $\pi$  モードと 0 モードの共振周波数差を 10.9MHz までに広げ、アイリスの表面電場強度を低減することが期待できる。図 3 に、1.4 セル RF 電子銃の構造と 1.6 セル RF 電子銃の性能比較を示す。また、導波管にも冷却機構を設計し、高繰返し化に貢献する。

図 4 に、1.4 セルと 1.6 セル RF 電子銃における GPT シミュレーションコードを用いて計算した電子ビームパラメーターを示す。レーザー入射条件として、パルス幅が 100fs、カソードでのスポットサイズは 30 $\mu$ m であった。最大加速電場は、1.4 セルと 1.6 セルと共に、 $E_0 = 120$  MV/m であった。パルス当たりの電荷量は 0.1pC であった。1.6 セル RF 電子銃では、加速位相が  $\phi = 25^\circ$  の時、エネルギー分散 ( $\Delta E/E = 5.5 \times 10^{-5}$ ) が最小となり、ビームエネルギーは 5.7MeV、エミッタンスは 0.017mm-mrad、パルス幅が 144fs であった。一方、1.4 セル RF 電子銃では、エネルギー分散 ( $\Delta E/E = 5.7 \times 10^{-5}$ ) が最小の加速位相は  $60^\circ$  であり、ビームエネルギーは 4.6MeV、エミッタンスは 0.019mm-mrad、パルス幅が 104fs であった。1.4 セル RF

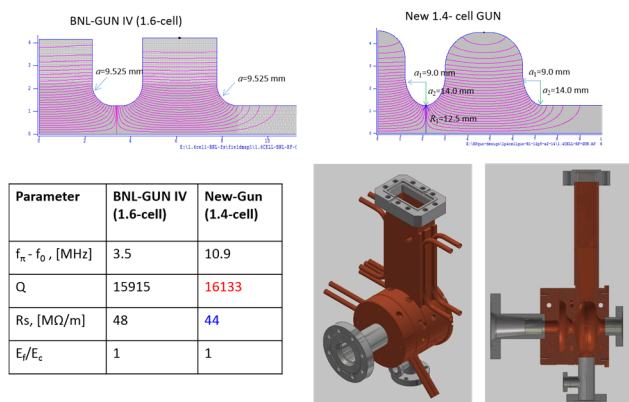


Figure 3: 1.4-cell RF gun and simulation results comparing with 1.6-cell RF gun.

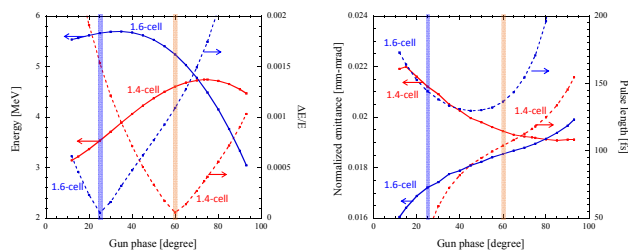


Figure 4: GPT simulation results in 1.6-cell and 1.4-cell RF guns.

電子銃では、ビーム平均エネルギーが少し低いであるが、高い加速位相の運転でも、同等な低エミッタンスと低エネルギー分散の電子線パルスが得られることがわかった。また、パルス幅が 1.6 セルより短いことは、1.4 セル RF 電子銃ではカソードでの実効的な電場が高く、空間電荷効果を抑えた証拠である。

## 4. 結論

以上、我々が世界に先駆けて推進している RF 電子銃を用いた高速電子顕微鏡の研究、RF 電子銃の開発を報告した。加速器から生まれたフォトカソード RF 電子銃は有力な小型の相対論的フェムト秒電子線パルス発生ソースであり、自由電子レーザーやレーザーコンプトン X 線発生などの先端加速器への応用だけではなく、高速電子回折や電子顕微鏡の最先端計測分野への利用が期待できることがわかってきた。勿論、更になるビームの低エミッタンス化、単色化や安定化などの課題が残されているが、今後、これらの課題を解決して分解能を Å にまで高めれば、本稿の題目である「時空を細かく観る 100fs-1nm 分解能 MeV 級電子顕微鏡」の実現が可能である。

## 謝辞

ここで紹介した研究の一部は、科学研究費補助金(基盤研究(A): 22246127(H22~24)、26246026 (H26~28)、17H01060(H29~31) と挑戦的萌芽研究: 16K13687(H28~29))の支援を受けて行われた。電子顕微鏡の建設においては大阪大学超高压電子顕微鏡センターの保田英洋教授と谷村克己教授、産業科学研究所吉田研究室の教員・学生、量子ビーム科学研究施設の教員と技術職員の方々にも最大限の協力をいただいた。関連する方々に深く感謝したい。

## 参考文献

- [1] J. Yang, Y. Yoshida, H. Shidata, IEEJ Trans. Electronics, Information and Systems, **134**, 515 (2014)
- [2] 楊金峰、顕微鏡、50、156-159(2015)
- [3] J. Yang, Y. Yoshida, H. Yasuda, Microscopy, in press (2018)
- [4] 楊金峰, 吉田陽一、放射線と産業、144、29-32(2018)
- [5] Y. Murooka *et al.*, Appl. Phys. Lett. **98**, 251903 (2011)
- [6] Y. Giret *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 253107 (2013)
- [7] A. H. Zewail, Science, **328**, 187 (2010).
- [8] G. H. Campbell *et al.*, J. Electron Microsc. **59**, S67 (2010).