「パルス電子線による光励起ダイナミクス研究の最前線」 解説小特集によせて

板倉 隆二

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター (〒619-0215 京都府木津川市梅美台8-1-7)

Preface to Topical Papers on Frontier of Pulsed Electron Beam for Research on Photoexcited Dynamics

Ryuji ITAKURA

Quantum Beam Science Center, Japan Atomic Energy Agency, 8-1-7 Umemidai, Kizugawa, Kyoto 619-0215

(Received December 5, 2014)

近年、高強度のパルスX線や中性子がX線自由電子レーザー(XFEL, SACLA)や大強度陽子加速施設(J-PARC)などの加速器ベースの大型施設によって実現され、たんぱく質などの構造解析について大きな進展が期待されている。X線や中性子と同様に構造解析における有力なビームである電子線についても、超短パルスレーザーと融合した短パルス化の進展には目を見張るものがあり、装置開発の段階から利用研究の段階へと移行しつつある。特に、大型加速器が不要であることから実験室レベルのコンパクトな装置にできるため、コストや実験時間の確保などの運用上の面で大きな利点がある。X線、中性子、そして電子線散乱の物理的な違いについては、後の解説論文をご参照頂きたい。従来の電子顕微鏡の歴史についてもご紹介頂いているのでご一読頂きたい。

パルス電子線装置は、SACLAやJ-PARCのように大々的に宣伝されることがないため、専門家以外に知られる機会に乏しいが、もっと多くの方に認知されて然るべき計測装置である。ピコ〜フェムト秒のパルス幅をもつパルス電子線を発生させるには、超短パルスレーザーの存在なしには実現できず、利用研究においても超短パルスレーザーを励起源として使う。超短紫外レーザーパルスを金属表面に照射し、光電効果によって超短電子パルスを発生させる方法を提案し、時間分解電子線回折を最初に実現したのが¹⁾、超短パルスレーザーの増幅に不可欠となっているチャープパルス増幅法(CPA)を提案したG. Mourou教授であることから、超短パルスレーザーとパルス電子線が密接な関係にあることがわかる。ここ数年の間に、日本国内でも世界をリードするパルス電子線の利用研究がいくつか出てきており、本誌にて特集を組むのに時機を得ていると考え、企画を立案した。

電子線を構造解析に利用するには、いくつかの方法が

あるが、まずは、回折法による利用が挙げられる。複数の原子で弾性散乱されたそれぞれの球面電子散乱波の干渉が回折像として現れ、干渉パターンから構造を決めることができる。電子線回折は、規則正しく原子が配置された固体結晶だけでなく、向きがランダムな気体分子集団にも適用でき、分子内の原子間距離を決めることができる²⁾。

標準的な電子線発生法では、光陰極に超短紫外レーザーパルスを入射し、光電効果によって超短電子パルスを発生させる。その後の加速や電子線の伝送においてパルス電子線の時間分解能を悪くする大きな要因は、(1)パルス電子内の電子同士のクーロン反発と(2)エネルギー(速度)広がり³⁾の2つが挙げられる。(1)のクーロン反発は電子密度が上がるほど影響が大きくなるため、電子数を減らす方法³⁾やレーザー増幅のCPAと同様にエネルギー広がり⁴⁾を逆に利用し、電子パルスを広げ電荷密度を下げて、電子バンチを輸送し、再度、磁石をうまく使って、試料点で最短パルスが実現するように速度毎の伝播距離を調整する方法⁴⁾などが提案されている。

高強度レーザーによる加速については、本誌でも2012年11月号に特集が組まれてきており、興味のある方はご参照頂きたい。今回の小特集では、京大化研の阪部先生のグループによる解説論文において、レーザー加速によって得られた高エネルギー電子パルスを実際に電子線回折に適用した例をご紹介頂いた。レーザー加速が利用段階に入ったという点で、極めて重要な進展である。

加速器で使われるRF加速を利用しているのが阪大産研の谷村先生のグループである。MeVオーダーのエネルギーを持つ超短電子パルスを安定に発生させることに成功している。多くの場合に使われる数10〜100 keVの電子に比べ、はるかに大きなエネルギーであるMeV級の相対論的電子パルスを使う利点についてご解説頂い

た。実測例として、金単結晶のレーザー誘起固液相転移に関する時間分解測定の結果をご紹介頂いている。

静電場加速を用いた装置については、東工大応セラ研(JSTさきがけ)の羽田先生にご解説頂いた。時間分解能を上げるために加速領域を短くした結果、装置が小型化され、まさにテーブルトップの電子線回折装置が実現されている。この装置を利用した実験例として、超短パルスレーザー照射されたアルカリハライド結晶の融解・アブレーション現象の時間分解回折像が示された。電子線回折だけでなく、時間分解反射率測定やアブレーションによって生成したイオンの測定といった別の計測手法も駆使することによって多面的な議論がなされ、全体像が浮かび上がってくることがわかる。

これまで電子線回折による原子構造配置の観測について述べてきたが、非弾性散乱、すなわち入射電子のエネルギー損失に着目し、物質中の電子構造を明らかにしようとする試みも、東北大多元研の高橋先生、山崎先生のグループで行われてきた。高速電子を入射し、非弾性散乱された電子と電離された価電子の2つの電子の運動量を同時に観測し、電離前の価電子の運動量分布を求める電子コンプトン散乱実験である。超短パルス電子線を用いれば、フェムト秒レーザーによって励起された電子状態の時間変化を運動量空間で見ることが可能となる。実験は極めて困難なものであるが、化学反応の遷移状態を電子状態という根源から明らかにできる夢の実験についてご紹介頂いた。

これまで述べてきた手法では、時間分解能はあくまで電子線パルスに依存するが、観測する電子散乱の時間幅をレーザーパルスで制御しようという大胆な試みも東大院理の山内先生、帰家先生のグループにて行われてきた。電子と分子との散乱にさらに高強度レーザーを照射することによって、電子、分子、光子の3体衝突が起こる。レーザーパルスを光ゲートとみなすことができ、観測される散乱の時間幅はレーザーパルスの幅で決まる。理論の詳細は解説論文をご参照頂くとして、すでに、この3体衝突から電子線回折像を抽出することに成功しており、レーザーアシステッド電子回折と呼ばれる新しい手法の有効性が実証されている。注意して頂きたいのは、この実験の入射電子は観測対象の分子とは独立に別途用意されている点である。レーザー電場によって原子・分子から放出された光電子が再び戻ってきて散乱する自己散乱とは別の現象である。

今回の小特集では取り上げていないが、レーザー電場1サイクルの中で起こるトンネルイオン化による自由電子生成、レーザー電場による再加速、そしてイオンとの再衝突という3段階モデル⁵⁾によって説明される電子の

自己散乱を利用した電子線回折⁶⁾や再結合による高次高調波発生を利用した分子軌道のトモグラフィ⁷⁾なども提案・実証され、注目を集めている。

超短パルス電子線とは少し趣が異なるが、走査型電子顕微鏡の分解能と光学顕微鏡の操作性を融合させた新しい顕微鏡が登場していることも紹介したい。本小特集では、装置の要である電子線を光へ変換する蛍光薄膜に関するオリジナル論文を掲載しているのでご一読頂きたい。

本小特集に掲載された解説論文の多くで述べられているように、短パルス電子線を使った構造解析は、現状では、原子集団を見る回折が主流となっているが、さらなる高みを目指した研究が進められていることを強調したい。回折はあくまで、集団の周期構造(気体の場合は多数分子の同じ核間距離)の観測であるため、局所構造もしくは1分子の観測は難しい。結晶構造の中の本当に1個の原子、もしくは、数個の局所的な構造や1分子を見ようと思ったら、電子顕微鏡による実空間観測が必要となる。「フェムト秒分光を用いた化学反応の遷移状態研究」に対してノーベル化学賞を受賞したカルフォルニア工科大のZewail教授は、電子顕微鏡の持つ空間的な3次元高分解能像に加え、新たなる時間軸を加えた4次元電子顕微鏡というコンセプトを提唱しており⁸⁾、国内外で時間分解電子顕微鏡の開発が精力的に進められている。

パルス電子線を利用した光励起ダイナミクスの研究は、時間分解能、輝度など多くが発展途上にあり、伸び代が大きく、今後の進展が楽しみな分野である。顕微鏡による原子の実空間測定や電子コンプトン散乱による電子軌道分布測定、さらには、レーザーアシステッド電子散乱による電子および分子構造の同時測定など、フェムト秒ナノスケールの実時間実空間で原子もしくは電子のムービーを作るという夢は、現実に近いきてきている。

最後に、本小特集の企画にご賛同頂き、ご寄稿頂いた先生方に深く感謝致します。

参考文献

- 1) G. Mourou and S. Williamson: Appl. Phys. Lett. **41** (1982) 44.
- 2) 山内 薫: 分子構造の決定(岩波書店, 2001) p. 205.
- 3) P. Baum: J. Phys. B **47** (2014) 124005.
- 4) 中新 信彦, 益田 伸一, 細貝 知直: レーザー研究 **40** (2012) 819.
- 5) P. B. Corkum: Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 1994.
- 6) M. Meckel, D. Comtois, D. Zeidler, A. Staudte, D. Pavicic, H. C. Bandulet, H. Pepin, J. C. Kieffer, R. Dörner, D. M. Villeneuve, *et al.*: Science **320** (2008) 1478.
- 7) 板谷 治郎: レーザー研究 **39** (2011) 910.
- 8) A. H. Zewail: Science **328** (2010) 187.