

第16回高輝度・高周波電子銃研究会、KEK、2019.11.21-22

RF電子銃を用いた超高速電子顕微鏡の開発

楊 金峰

大阪大学・産業科学研究所



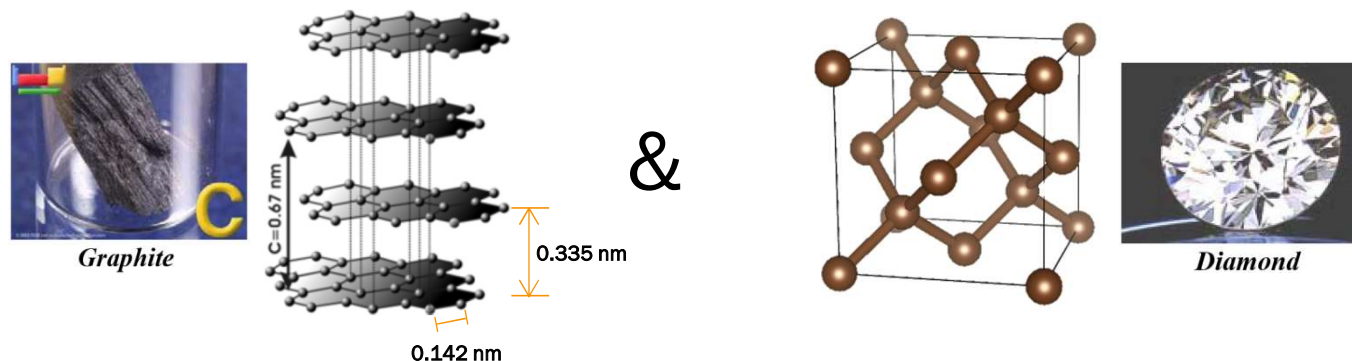
Materials Science: in the 20th century

物質の機能は、構造と密接不可分の関係にある。

- **Ultimate goal:** 構造を明らかにし、その制御による新規物質の創製と新しい機能の開拓



20世紀では、電子顕微鏡が発明され、それを用いて安定した物質構造を原子レベルの分解能で解明し、物質とその機能を理解してきた。



Materials science: New Breakthrough

近年、超高速の測定手法と理論的解析法が大きく進展し、物質科学の新展開へ

【実験的手法】短パルスレーザーを利用した分光法、

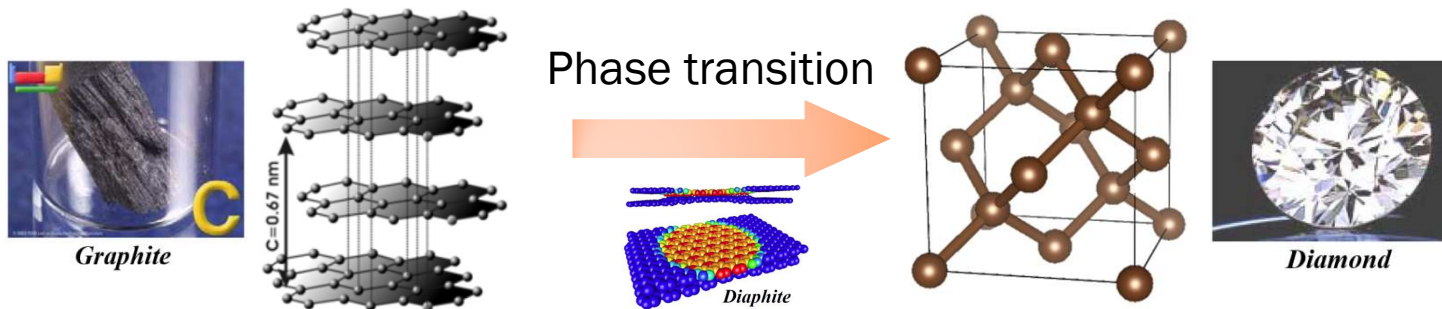
短パルスX線・電子線を用いた時間分解回折・イメージング法

【理論的手法】高い定量性を有する分子動力学計算と第一原理量子シミュレーションは、

実験的にはアクセスしにくい時間・空間スケールでの素過程をモデル化



【物質科学の新展開】物質の構造決定が安定した物質のみ実現可能という限界が打破され、超高速で変化する物質の構造が時間分解的に決定可能な段階に突入。

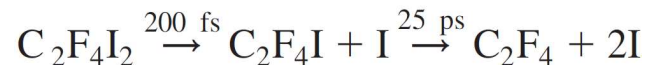
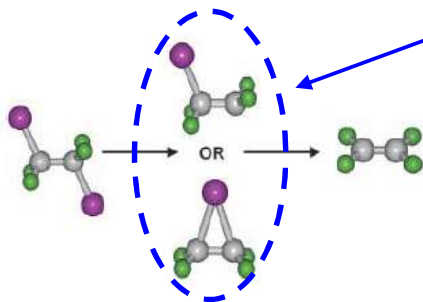


⇒ 構造ダイナミクスへの展開

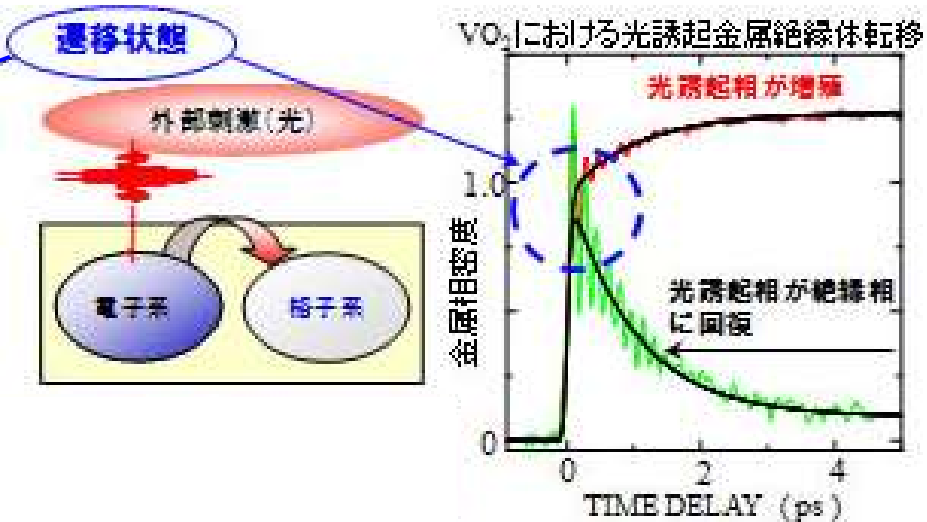
構造ダイナミクス：研究課題

- ① 化学反応の原子レベル直接観察 → 新物質の創製
- ② 構造相転移過程の可視化 → 新物性・新機能の開拓
- ③ 生体物質の構造ダイナミクスの解明 → 医療や創薬に貢献

光化学反応：気相超高速原子過程
(Zewail, N.P. in 1999)



光誘起構造相転移：凝縮相超高速原子過程



物質構造変化を支配する遷移状態の構造決定

⇒ 超高速時間分解原子レベルの構造解析：物質科学の重要な課題

物質構造解析手法

◆ 物質構造解析手法の発明と展開 (安定物質に対して)

- X線構造解析 (Laue, Bragg, N.P.in 1914,1915) → シンクロトロン放射・X線FELの実現
- 電子顕微鏡 (Ruska, N.P.in 1986) → 超高空間分解能の実現 (~40pm)
- 走査型プローブ顕微鏡 (Binning, Rohrer, N.P.in 1986) → 表面構造の原子像観察・操作

◆ 時間分解構造解析法の開発と展開

- ・ 高速分光技術 → 短パルスレーザーによる高時間分解能の実現 (間接的知見)
- ・ 時間分解X線構造解析 → X線自由電子レーザーの運用 (フェムト秒の実現)
- ・ 超高速電子回折法 → 超短電子線パルスによるフェムト秒構造動力学研究の展開

時間分解X線・電子回折 → 周期構造を有する結晶等の物質の研究に限定
得られた情報は運動量空間における構造平均量

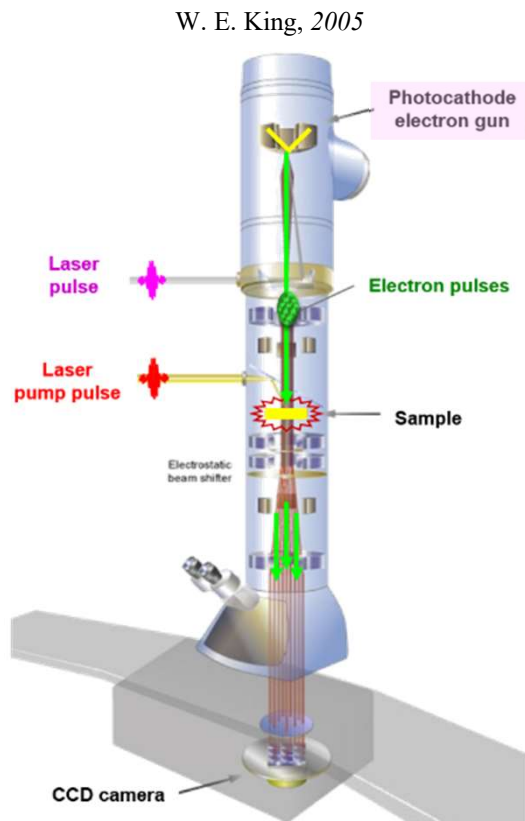
- ・ 超高速電子顕微鏡法 → 時間分解原子イメージングの創始

個々の原子の実空間での変位に関する知見を時間分解的に直接獲得：革新的測定法

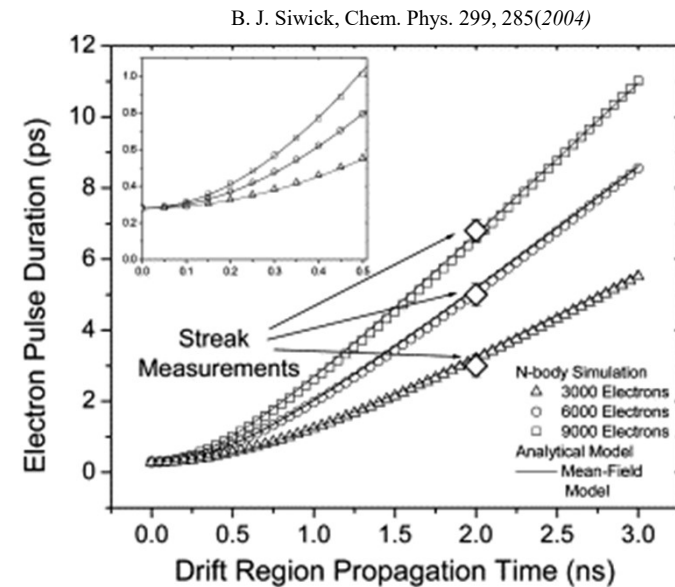
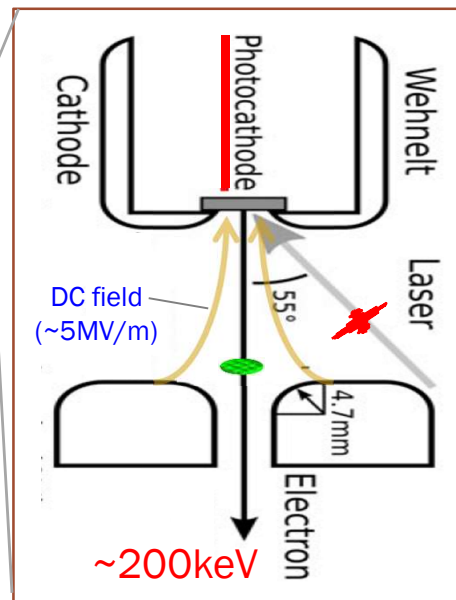
What is Ultrafast Electron Microscopy (UEM)?

2004年4月の“Ultrafast electron microscopies”(National Laboratory & University Alliance Workshop)

その後、欧米で研究開発が大きく展開。



超高速電子顕微鏡の概念図



✓ 光電子のDC加速エネルギー： $E \leq 200 \text{ keV}$

✓ 大きな制約：空間電荷効果

→ 大強度のフェムト秒電子線パルスが実現できない

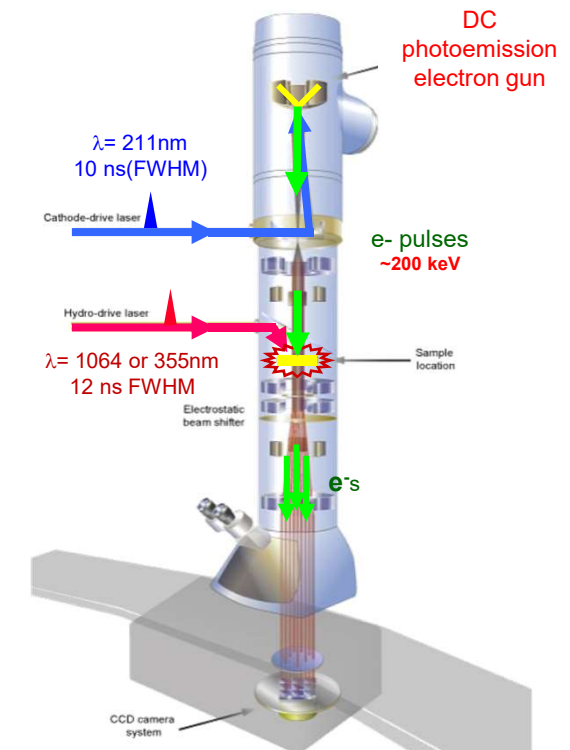
Two approaches in UEMs:

(1) High-intensity nanosecond electron pulse for single-pulse imaging (single shot)

- 10-ns electron pulse with 10^7 e⁻/pulse
- Limitation: resolution of **10ns**
[Ultramicroscopy 170, 86, 2016]

(2) “single” electron pulses with high repetition rate (100 MHz), 10^7 pulses/image

- Resolution: **300 fs**
[Science 322, 1227-1231, 2008]
- Limitation: reversible processes

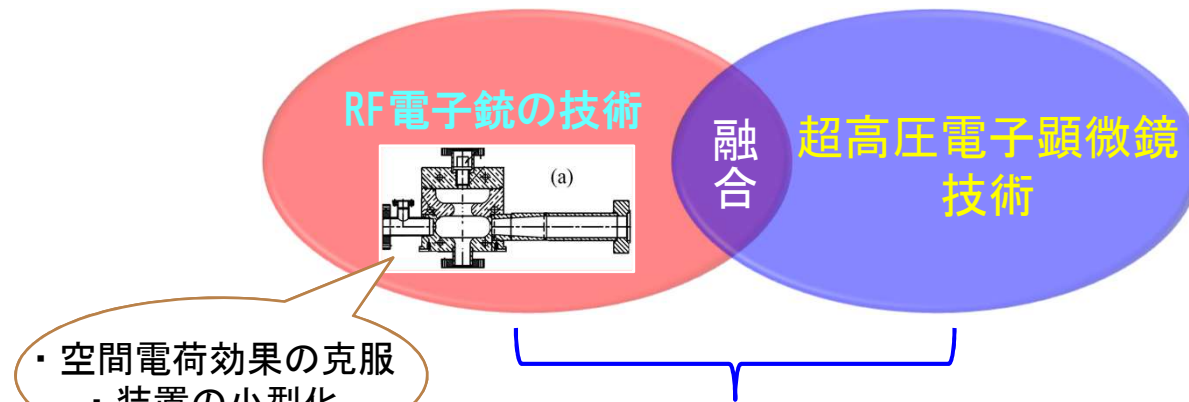


B. W. Reed, Workshop on UESDM, 2012

我々の研究目標 :

先行グループの制限を突破して、
 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」を開発し、
 femtosecond single-shot imagingを実現！

我々のアプローチ：高周波電子銃を活用した超高速電子顕微鏡



小型・超高压・時間分解電顕の開発

実時間・実空間での観察

*** フェムト秒原子レベルのイメージング技術 ***

(物質科学者の長年の夢)



RF電子銃を用いた フェムト秒超高速電子顕微鏡の開発

— 実証機から実用機へ —

世界初のRF電子銃を用いた電子顕微鏡の実証機

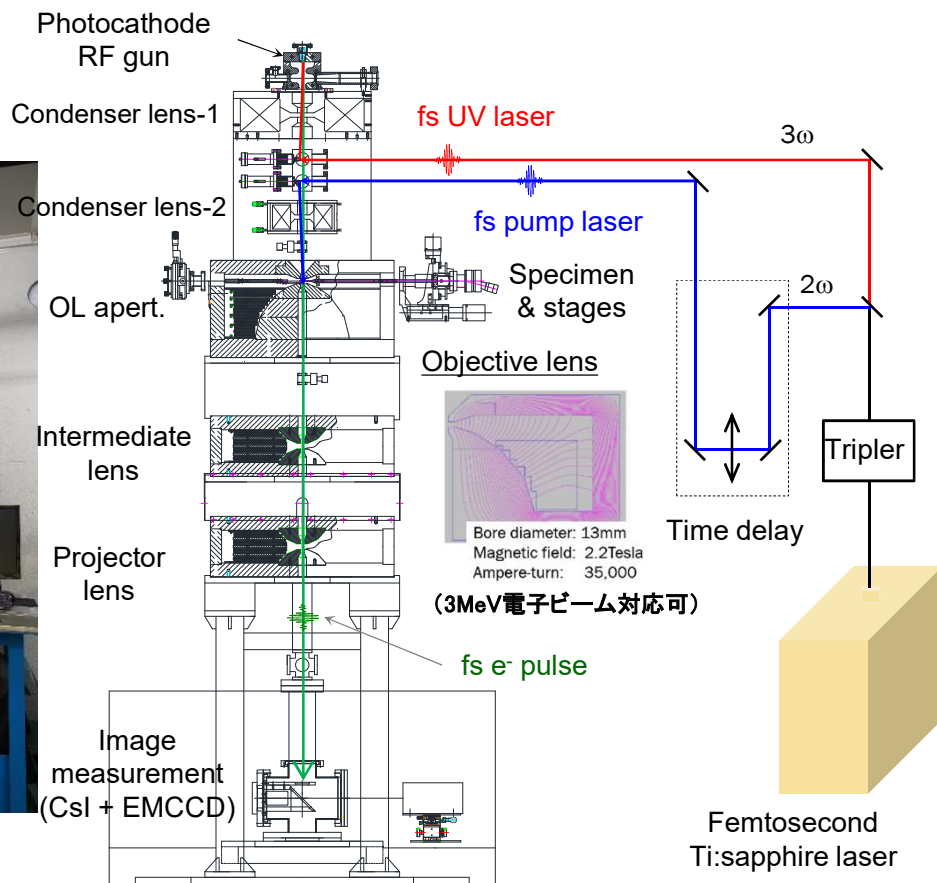
(2011年~2013年)

実証機の写真

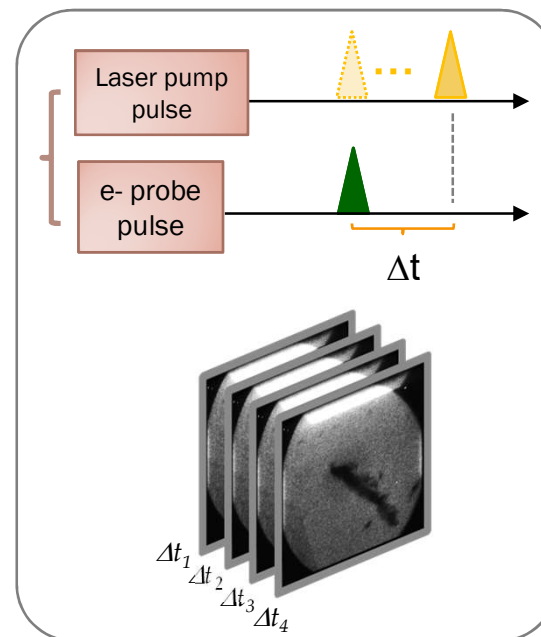


Size: 3.0 m(H) x 0.7 m(D)

(すべて自作)



Schematic of time-resolved experiment



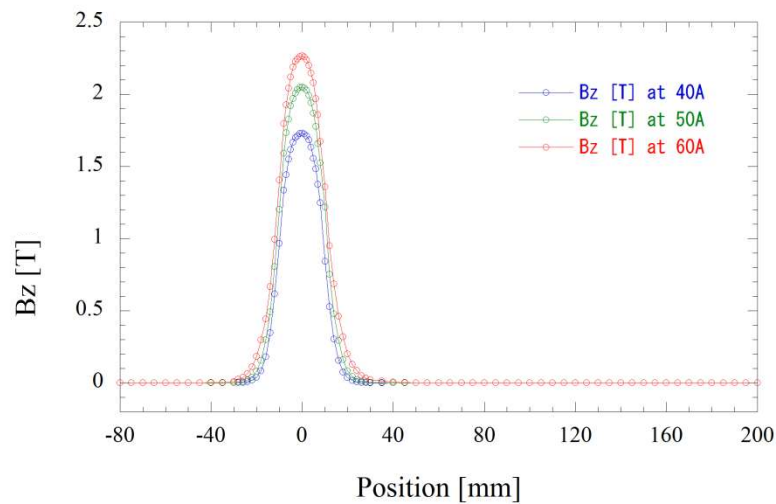
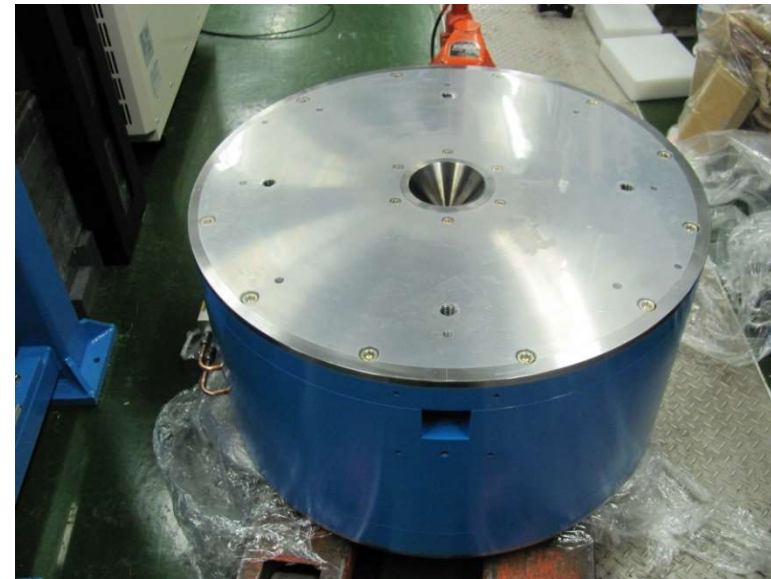
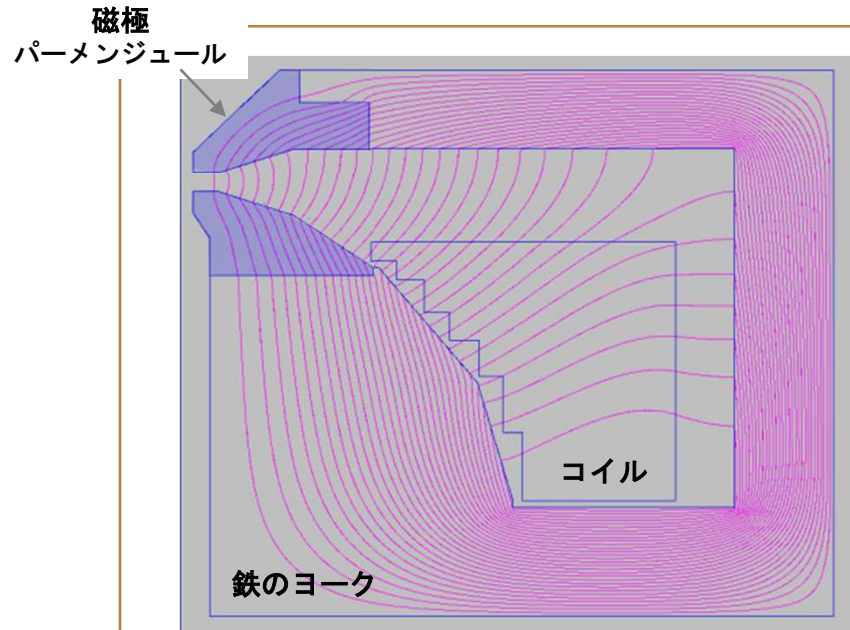
時間分解能:

$$\delta t = \sqrt{\sigma_b^2 + \sigma_l^2 + \Delta t_j^2}$$

$$= \sqrt{0.1^2 + 0.1^2 + 0.1^2} \approx 173 \text{ fs}$$

J. Yang, UEM, In: M. Arita, N. Sakaguchi, editor. Electron microscopy - Novel microscopy trends, 2019.
J. Yang et al, Microscopy, 67, 291-295(2018)

Design of 2T objective lens

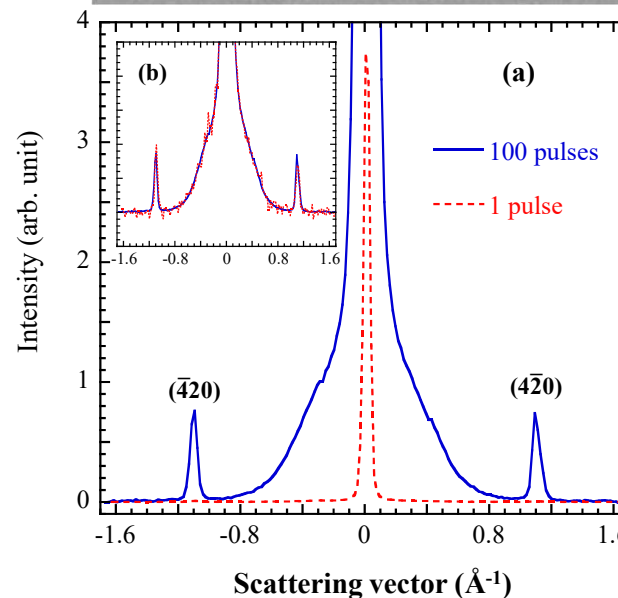
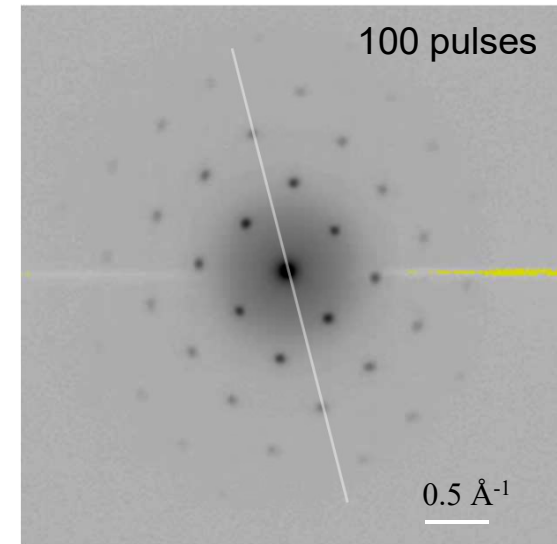
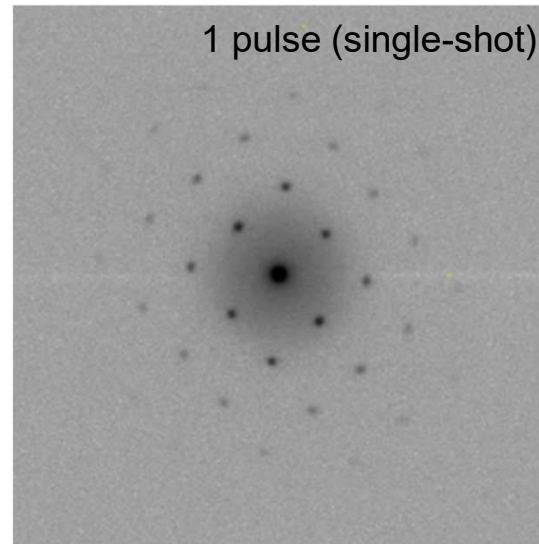
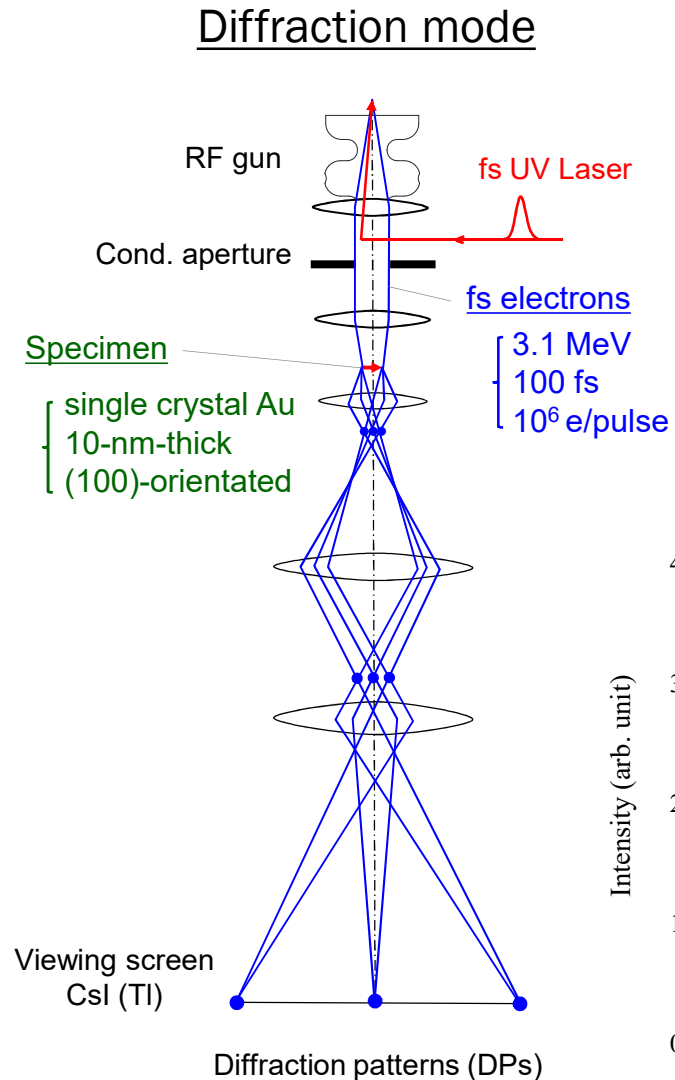


磁極口径 $\phi 13^{+0.05}$ mm
磁極長 350mm
磁場強度 2.2T
起磁力 35000 AT

$$f_0 = 5 \text{ mm for } 2\text{MeV } e^-$$
$$C_s (C_c) \sim 4 \text{ mm}$$

70 cm (D) x 35 cm (H)

実証の成果: ① Single-shot Diffraction Imaging



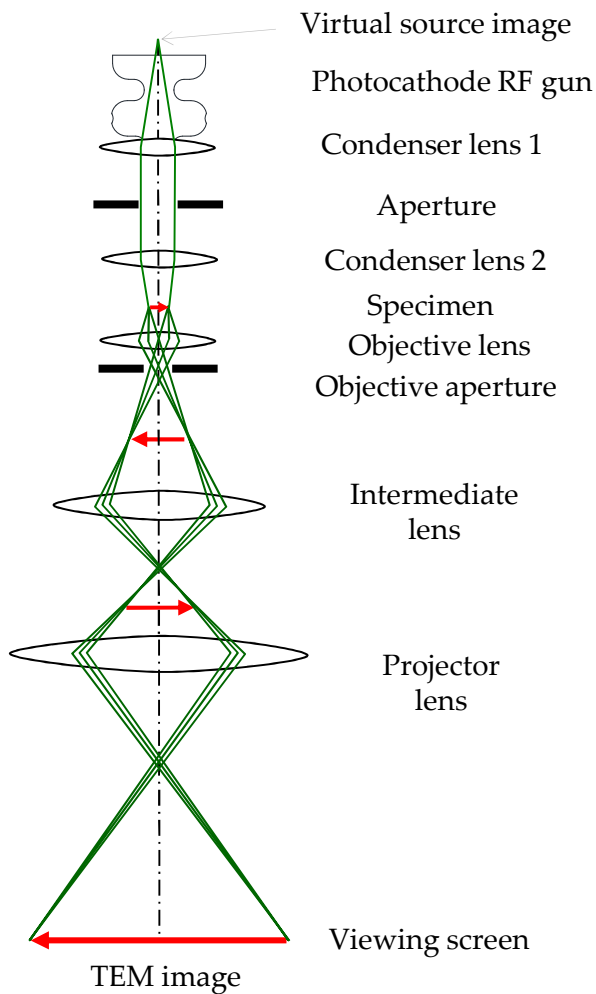
- ✓ RMS width of (000) spot: 0.018 Å⁻¹
(an excellent spatial resol.)
- ✓ Beam convergence angle: 31 μrad
- ✓ *Single-shot observation*

不可逆の構造変化の観察が可能となる！

実証の成果: ②TEM Imaging with fs e- pulses

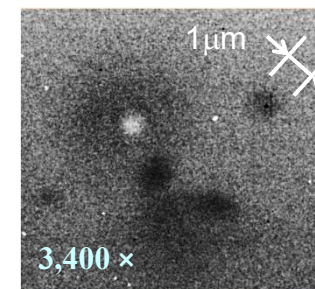
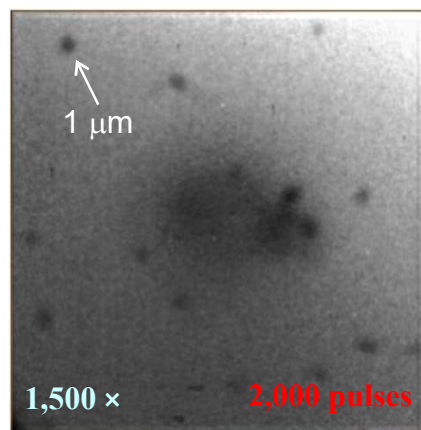
Electron pulses:

100 fs, 3.1 MeV,
 10^6 e/pulse



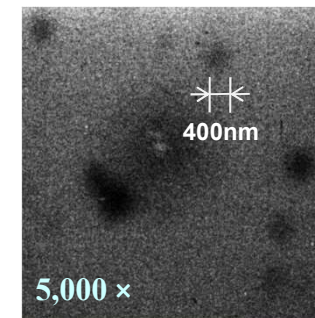
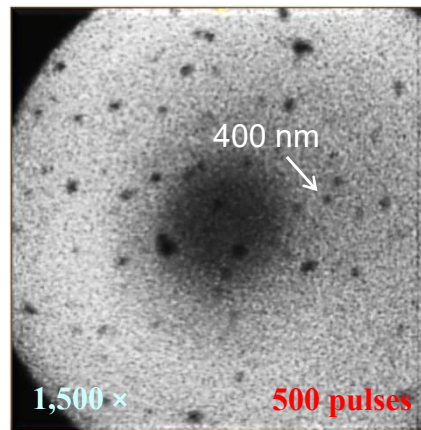
TEM images using fs e- pulses

1.09- μ m-diameter polystyrene latex particles



10,000 pulses
27nm/pixel

400-nm-diameter gold nanoparticles

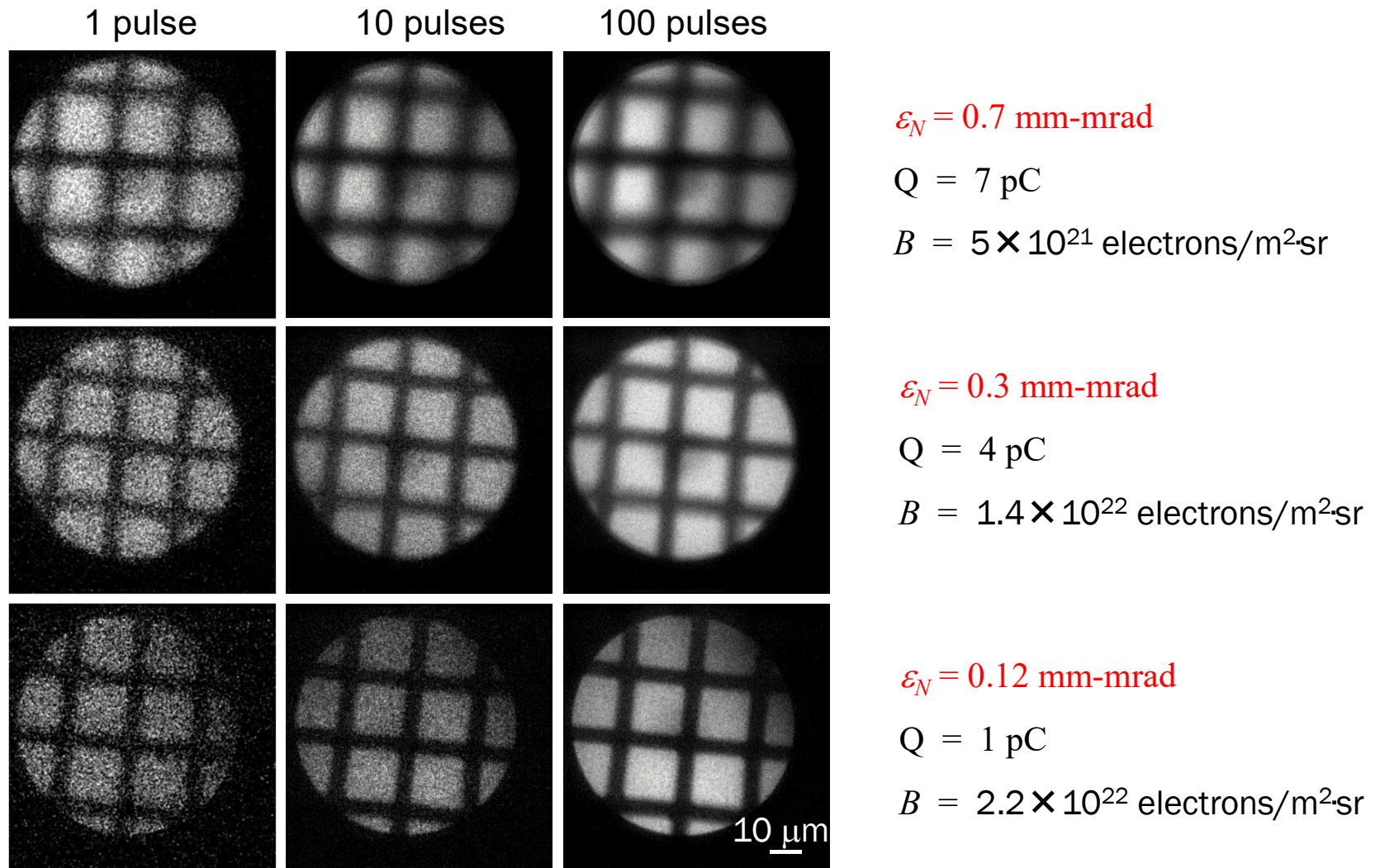


10,000 pulses
19nm/pixel

J. Yang et al, *Microscopy*, 67, 291-295(2018)

イメージング測定では、フェムト秒電子線パルスの積算によるTEM像の観察が可能！

実証の成果: ③ Dependence of emittance



極低エミッタンスの電子線パルス発生が必要不可欠！

本格のフェムト秒パルス電子顕微鏡の開発

相対論的フェムト秒電子線パルスを用いた超高压電子顕微鏡を製作 (Since 2018)

- 電子源には、フォトカソードRF電子銃を用いる。
- レンズ系には、1970年に日立製作所にて製作された超高压電子顕微鏡レンズを活用する。



HV-2000の写真
(1970年に建設)

大阪大学超高压電顕センター



据付後の写真
3.5m(H)、0.8m(D)

大阪大学産業科学研究所

Relativistic UEM: New Breakthrough

Relativistic UEM
with femtosecond electron pulses



- Femtosecond single-shot imaging
- Ultimate Goal: 100fs, 1Å
- Compact High-Voltage EM
- Options: femtosecond EELS, In-situ, ...

まとめ

- 超高速電子線回折では、
RF電子銃が強力な電子源である。
フェムト秒時間分解能でSingle shotの測定が可能



仕様:

電子エネルギー	1 ~ 5 MeV
時間分解能	170 fs
空間分解能	0.02 Å ⁻¹
測定機能	Single-shot, Time-resolved

- 超高速電子顕微鏡では、
RF電子銃は利用可能である。
低倍率の観察では、Femtosecond Single-shot Imagingが可能。
但し、目標の分解能 (Å) を達成するために、電子ビーム性能の向上等が必要。

謝辞

RF電子銃の製作： (KEK)高富俊和, 照沼信浩, 浦川順治

超高压電顕レンズ： (阪大)保田英洋、安田哲也、(NIMS)三石和貴

据付、調整と実験： (研究室のメンバー)菅晃一、吉田陽一、学生



基盤研究(A): 22246127(H22~24)、26246026(H26~28)、17H01060(H29~R1)

挑戦的萌芽研究: 16K13687(H28~29)