



(0) 研究分野

分科会: 化学

キーワード: パルス電子線、超短パルスレーザー、
分子科学、アト秒科学、電子顕微鏡

(1) 研究背景と研究目標

当チームでは、最先端のレーザー光と電子線技術を組み合わせることで、極限的なアト秒（1アト秒は100京分の1秒）の精度で時間構造を制御された電子線を発生させ、化学反応の観測と制御に応用する。具体的には、以下の2つの目標達成を目指す。(1)物質内の電子密度分布がアト秒の超高速で変化する様子を動画撮影できる手法を開発する。物質内の電子の運動が撮影されれば、電子の運動がどのようにして原子の運動を誘起し、そして最終的に化学結合の生成あるいは切断に繋がるかが明らかになると期待される。更に、(2)電子線照射によって開始される原子や分子の反応確率を、電子線のアト秒時間構造によって制御することにも挑戦する。電子線の時間構造によって化学反応が制御できれば、電子顕微鏡での試料損傷の低減や電子線の医学応用に繋がる可能性がある。このように、アト秒精度で整形された電子線を用いることで、化学反応機構、光物性、原子分子衝突過程を探求する。

(2) 2024年度成果と今後の研究計画

(A) 電子線エネルギー分析器の設計と製作

上述した目的の実験で使用するアト秒電子ビームの発生や検出には、高速電子線（我々の装置では30から40 keV）のエネルギーを数eVの分解能で測定する必要がある。また、そのようなエネルギー分析器は、電子エネルギー損失分光に適しており、我々のパルス電子線技術と組み合わせることで、超高速分光に用いることもできる。我々は文献を参考にしながら静磁場90度偏向型のエネルギー分析器を設計および製作した。

分析器は周囲に銅線が巻かれたパーマロイ板2枚が平行に設置された構造をしており、その間を電子ビームが飛行する。電子ビームが飛行する箇所は超高真空である。我々は磁場計算ソフトウェアを用いて電子ビームが飛行する空間の3次元的な磁場分布を計算し、それを入力とした自作の計算コードで電子の飛行軌道シミュレーションを行うことで、エネルギー分析器の形状の最適化と性能評価を行った。特に、エネルギー分散面とそれに垂直な面の両方向でビームの集束が起こる二方向集束型の最適な設計を得た。エネルギー分散の大きさは、30 keV電子に対して8 $\mu\text{m}/\text{eV}$ であり、エネルギー分解能は0.53 eV（半値全幅）と見積もられた。この値は、我々が設計した分析器が、本課題の目的の達成に十分な性能を有することを示している。

次に、エネルギー分析器を実際に製作した。パーマロイはその性能を最大限生かすために、加工後に磁気焼鈍を施した。コイルも自ら製作した。また、エネルギー分散された電子を検出器上に拡大投影するための8極子レンズも製作した。検出器として、マイクロチャンネルプレートを採用した。その後、自作のパルス電子線装置と組み合わせ、性能評価を実施し、20 eV（FWHM）の分解能を得た。また、炭素薄膜を試料に使用することで、プラズモンロスピークを観測した。

今後の計画 1)得られたエネルギー分解能は静磁場を発生させるための直流電源の安定性で制限されているため、高安定な電源の導入やノイズ対策を施すことで、設計通りの1 eV以下の分解能を得る。2)パルス電子線を光で変調し、そのエネルギースペクトルを測定することで、アト秒電子線の発生を確認する。その後、超高速現象の観測や電子散乱現象への応用実験を実施する。

(B) アト秒電子ビームの散乱を記述するためのS行列理論

電子顕微鏡技術の進展により、オングストロームを下回るスポット径とアト秒の時間幅を有する電子ビームの発生が可能になろうとしている。しかしながら、これまでの電子散乱理論の大

半では、電子を平面波として仮定し、散乱断面積が計算されている。我々は、電子ビームを3次元的な波束として取り扱い、かつ、電子と標的原子の間の相互作用を非摂動的に取り扱えるS行列理論を導出し、真空中の孤立原子を標的としてアト秒電子ビームの散乱確率を計算した。

水素原子およびアルゴン原子に散乱されたアト秒電子波束の散乱角度分布を計算したところ、標的原子の位置がビーム中心からずれると、強い方位角方向の非対称が現れた。方位角方向の非対称には、180度で符号が反転する1回対称性と90度ごとに符号が変化する2回非対称性が存在し、水素原子の場合には2回非対称性が強く、アルゴン原子の場合には1回対称性が支配的であることが分かった。詳細な解析により、2回非対称性は電子ビームの量子性の一つである空間的なコヒーレンス、つまり、標的原子ではなく電子線の性質に由来することが判明した。他方で、1回非対称性は標的原子によって散乱される際に電子の位相が変化することに由来していることが分かった。アルゴン原子は水素原子よりも原子番号が大きく、電子の位相をより大きく変化させるため、1回非対称性が2回非対称性よりも強く表れた。

また、S行列理論から、電子ビーム流束の保存則を与える光学定理を導いた。そして、数値計算によって、導出した一般化された光学定理が、流束の保存を実際に表現していることを確認した。

今後の計画 1) 今回の理論計算では、基底状態にある原子標的を対象に実施した。今後は、分子や固体結晶に研究対象を拡大する。また、標的の電子状態や振動状態が時間と共に変化する非平衡状態である系にも研究対象を拡大し、アト秒電子回折やアト秒電子顕微鏡の理論的な予測を与える。2) 今回の理論計算では、アト秒電子ビームとして最も単純なガウス型の波束を仮定した。最新の実験技術を用いることで、様々な時間、空間、運動量分布を有する波束を生成できるため、異なる波束形状を有する電子ビームにて計算を実施し、アト秒電子ビームと物質の間の衝突過程に、波束の特徴を反映した変化が見られるかを確認する。

(3) 研究室メンバー

(2024年度)

(理研白眉研究チームリーダー)

(テクニカルスタッフI)

森本裕也

山下由衣

(基礎科学特別研究員)

立花佑一

Marie Ouillé

(4) 発表論文等

1. Y. Morimoto and P. Baum, "Field-induced rocking curve effects in attosecond electron diffraction", *Phys. Rev. Lett.* **132**, 216902 (2024).
2. Y. Morimoto and L. B. Madsen, "Scattering of ultrashort electron wave packets: optical theorem, differential phase contrast and angular asymmetries", *New J. Phys.* **26** 053012 (2024).
3. L. Brückner, T. Chlouba, Y. Morimoto, N. Schönenberger, T. Shibuya, T. Siefke, U. Zeitner and Peter Hommelhoff, "Mid-infrared dielectric laser acceleration in a silicon dual pillar structure", *Opt. Exp.* **32**(16), 28348-28355(2024).
4. 立花佑一、森本裕也、「静磁場型電子エネルギー分析器の設計指針」、*しょうとつ* **21**(2) R003 (2024).
5. 森本裕也、「光変調ビームを利用した超高速透過電子顕微鏡」、*顕微鏡* **59**(2), 57-61 (2024).

Laboratory Homepage

<https://epulse.riken.jp>

https://www.riken.jp/research/labs/hakubi/m_ultrashort_electron_beam_sci/index.html