



解説

ジッターフリーなレーザー駆動電子パルスを用いた 超高速電磁場イメージング

Ultrafast Electromagnetic Field Imaging with Jitter-Free Laser-Driven Electron Pulses

井上 峻介, 橋田 昌樹

INOUE Shunsuke and HASHIDA Masaki

京都大学 化学研究所

(原稿受付: 2021年12月19日)

エネルギーが数10 keV から数100 keV の高輝度短パルス電子は、超高速現象を観察するためのプローブパルスとして注目されている。より高速な現象を捉えるべく、パルス幅の短い電子パルスの開発が精力的に行われており、近年ではそのパルス幅が100 fs に迫りつつある。本解説では、近年の短パルス電子の発展を概説するとともに、筆者らが開発しているジッターフリーな短パルス電子発生装置を中心に解説する。また、これを用いた最新の成果である、超高速に変化する電磁場のイメージングについて紹介する。

Keywords:

electron pulse, ultrafast imaging, intense laser

1. はじめに

1590年に可視光による顕微鏡が発明されてから今日に至るまで、より小さいものを、より多くの情報を可視化すべく、X線や電子、中性子やレーザーなど、様々な量子ビームを用いた顕微鏡が発展してきた。近年では、より小さなものの可視化に加えて、より短い時間に起こる現象をとらえるための研究、すなわち、時間的な変化をとらえるための研究が盛んになっている。ある“とても短い時間”のうちに起こる現象（超高速現象）をとらえるためには、“それと同等の時間”だけ観察対象を照らすことのできる短パルスな量子ビームを用いる必要がある。そのため、超高速現象観察のための研究とともに、短パルスな量子ビームの開発が精力的に行われている。短パルス量子ビームの中でも、特にエネルギーが数10 keV から数100 keV の電子パルスは、溶解や凝固、化学結合の切断・結合といったピコ秒からフェムト秒の間に変化する内部構造変化や超高速に変化する電磁場など、様々な超高速現象を観測する研究への応用が期待されている[1]。例えば結晶化学分野への応用を考えた場合は、試料へのダメージや散乱断面積減少の問題があるため、一般的には数百 keV 以下の低エネルギーであることが望ましいと考えられている。また、電磁場測定のためのプローブとして用いる場合、測定対象となる電磁場の強さ、すなわち系の持つポテンシャルによって、プローブとなる電子の最適なエネルギーが異なってくる。強い場を測定したい場合は重い（エネルギーの高い）電子が必要となり、レーザー加工分野などに見られるアブレーション

プラズマ等の比較的弱い電磁場を観察したい場合には、軽い（エネルギーの低い）電子が必要となる。超高速現象のうち、非可逆な相転移[2,3]やレーザーアブレーション[4,5]といった現象を観察するためには、観察のたびにサンプルを換装する必要がある。このため、短いパルス幅だけでなく1パルスあたりの電子数も多い高輝度短パルス電子が求められている。一般にシングルショットでの超高速現象観察においては、電子の数が 10^5 個以上、良質な像を得るためには 10^6 個以上は必要とされている[6]。例えば、Meng Gaoらは、有機塩結晶(EDO-TTF)₂PF₆が相転移する様子を電子回折でとらえるため、 2.5×10^5 個/pulse の電子パルスを2500回繰り返して照射し、430 fs の時間分解能で観察した結果を報告している[7]。より高速な現象を鮮明にとらえるべく、短いパルス幅を持ち、さらに電子数の多い電子ビームの開発が2000年頃から急速に発展してきた(図1)。

パルス幅がナノ秒を下回る、高速現象観察のための短パルス電子はMourouとWilliamsonによって1982年に報告されたフォトカソード電子銃を用いた研究に端を発している[8]。彼らはパルス幅が100 ps 秒のレーザーを金属カソードに照射し、そこから発生した電子パルスを20 kV の電極で引き出すことで、パルス幅がレーザーパルス幅と同程度のパルス電子を発生させ電子回折像を取得することに成功した。その後、ストリーク電場を組み合わせ、約20 ps の電子パルスを用いた時間分解測定を報告している[9]。その後1990年代までは、ピコ秒レーザーを使った電子源の開発

Institute for Chemical Research, Kyoto University, KYOTO 611-0011, Japan

corresponding author's e-mail: inoue.shunsuke.o68@kyoto-u.jp

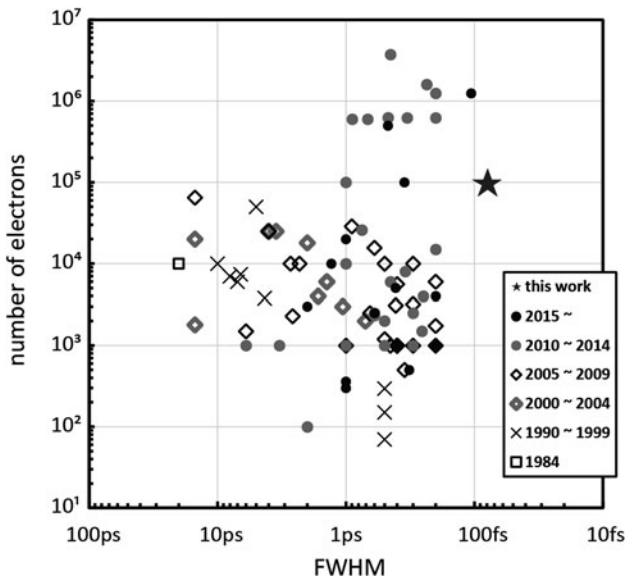


図1 高輝度短パルス電子開発の変遷。エネルギーがMeV未満、1パルスあたりの電子数が100個以上の短パルス電子を年代ごとに掲載(1984年[9], 1990-1999年[10-18], 2000-2004年[2], [19-26], 2005-2009年[3, 27-40, 41-47], 2010-2014年[4-6], [48-63], 2015年以降[64-77], 我々の結果[78])。

が行われていた。2000年代になると、レーザー技術の発展に伴うパルス幅の劇的な向上に伴い、電子パルス幅の大幅な短パルス化が達成される。フェムト秒レーザーとフォトカソード、DC電場を組み合わせたDC電子銃によって、電子のパルス幅が飛躍的に向上し、1パルスあたりの電子数が 10^4 個程度、パルス幅が数百フェムト秒の電子パルスが得られるようになったが、図1に示すように、1パルスあたりの電子数が 10^4 個程度で頭打ちとなっていた。この原因は、電子の持つ電場によって1パルスに含まれる電子同士が反発しあう空間電荷効果にある。空間電荷効果のためにDC電子銃は短パルス化と高輝度化の同時達成が難しいという欠点を抱えていた。2010年代に入ると、電子パルスに対するパルス圧縮法が開発され、1パルスあたりの電子数が飛躍的に向上する。DC電子銃によって引き出された電子パルスは自由空間を飛行する間に、エネルギー分散によって縦方向に伸長する。この電子パルスにRF電場を与えて位相回転させることで、空間電荷効果によるパルス幅伸長を回避しつつ、パルス幅を再圧縮することが可能となった。本手法によって、1パルスあたりの電子数が 10^6 個、半値全幅が数100fsの電子パルスが得られるようになった。

しかしながら、RF電場を用いたパルス圧縮法では、RF電場の位相とポンプとなるレーザーパルスとの間に存在するタイミングジッターを低減することが難しく、時間分解能向上に向けた大きな障壁となって立ちはだかっている。超高速現象を観察する際には、高速に変化する現象を誘起するためのポンプパルスと現象を観察するためのプローブパルスを用いたポンプ・プローブ法によって測定が行われる。時間分解能はポンプパルス(レーザーパルス)とプローブパルス(電子パルス)のパルス幅だけでなく、二つ

のパルスのタイミングの同期精度も同じように重要となる。例えば、F.B.Kiewietらの開発したタイミング同期装置は、3GHzの発振器によるRF電場の電場振幅と、75MHzのレーザーパルス発振器のタイミングを18fsrmsの精度で同期させることに成功しているが[79]、電子パルスの速度が遅いため、この精度でタイミング同期を図ったとしてもRF電場により圧縮された電子パルスとレーザーパルスのタイミング同期精度は400fs程度にまで悪化してしまう[48]。電子パルスのパルス幅を短くすることができてもタイミング同期が得られなければ高い時間分解能を得ることができないため、同期精度を高めるための様々な手法が開発されてきたが[64, 80, 81]、パルス圧縮のためにRF電場という時間的に変動する場を用いる限り本質的な解決が難しく、超高速に時間変化する様々な現象の可視化へ向けた大きな障害となっていた。我々はこれらの問題を解決すべく、時間変動する電磁場を排除した静磁場型のパルス圧縮装置を用いることで、ジッターフリーな超短パルス電子の開発に取り組んでおり、本稿ではその研究の概要を報告する[78, 82]。

2. 高強度短パルスレーザーを用いた短パルス電子発生装置

これまで開発されてきた短パルス電子発生装置においてタイミングジッターを発生させる大きな要因は、電子パルスを圧縮するために印加されるRF電場が振動するタイミングと、レーザーパルスが照射されるタイミングの同期精度に起因している。これを排除するために、我々は時間変動する電磁場の一切を排除した電子パルスの圧縮装置を開発した。本章ではこの短パルス電子発生装置について紹介する[78, 82]。

2.1 短パルス電子発生装置の原理

電子パルス圧縮装置の模式図を図2に示す。高強度短パルスレーザー(中心波長:810nm, エネルギー:100mJ, パルス幅:40fs(FWHM))をアルミニウム薄膜(厚さ11 μ m)に照射することで、電子パルスが駆動される。レーザーの電場によって微小な領域に瞬間的に高エネルギー密度状態のプラズマが生成され、高エネルギーの電子が加速される[83-85]。この時発生する電子パルスのパルス幅は、レーザーのパルス幅とほぼ同等であることが実験やシミュレーションから確認されている[86]。発生した電子パルスは、後段の電子光学系によって圧縮点(compression point)まで輸送される。それぞれの位置での電子の粒子の時間プロファイルと荷電粒子軌道の計算コード(GENERAL PARTICLE TRACER, GPT[<http://www.pulsar.nl/gpt/>])によってシミュレートした結果を図2(b)-(f)に示している。図2(b)はレーザーによって加速された直後の電子パルスの縦方向の位相空間分布で、初期値として40fsのパルス幅を与えた電子パルスを発生させた様子を表している。レーザーを固体に照射した際に発生する電子パルスは照射点を中心に全方向へ放射される。このため、そのままでは急速に電子数が減少してしまうので、電子レンズを用いて平行ビームへと整形し静磁場型の位相回

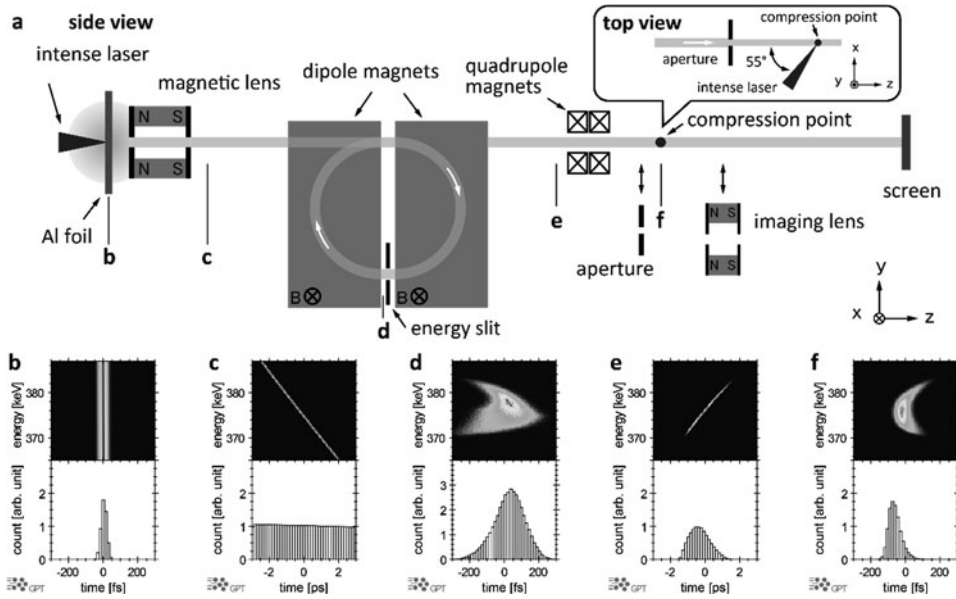


図2 (a)短パルス電子発生装置の模式図。(b-f)GPTコードにより計算された縦方向の位相空間での分布とヒストグラム。(b-f)の各図は(a)に示された場所での分布を表している。

転器へと転送する。電子パルスは位相回転器へ飛行する過程で速度の速い電子と遅い電子の速度差によってパルス幅が伸長する(図2(c))。位相回転器は二つの180度の偏向磁石から構成されており、磁石を一周することで速度の早い電子と遅い電子の前後関係が逆転する。二つの偏向磁石の間には幅1mmのエネルギー分別スリットが挿入されており、375 keV ± 5 keVのエネルギーを持った電子のみが選択される。位相回転器によって前後の位置関係が反転した電子の位相空間分布で表した図が図2(e)である。位相回転した電子は四重極磁石によって横方向の形状を成形された後、圧縮点において電子が圧縮される(図2(f))。数値計算によると、40 fsのパルス幅を持つ電子が本装置に入射した場合、圧縮点においては69 fsまで圧縮されると予想される。元のパルス幅よりも大きくなる理由は、電子レンズおよび位相回転磁石の収差が原因である。本実験装置は、電子パルスの加速から圧縮までにおいて、DC電場やRF電場などの電場駆動装置を一切用いず、安定な永久磁石のみを使用しているため、原理的にタイミングジッターを発生させる要素が存在しない、非常に頑強な構造となっている。ただし、永久磁石を用いている性質上、磁場強度を自在にコントロールすることが難しく、短パルス電子のエネルギーを調整することが難しいという欠点も持つ。

2.2 電子パルスのパルス幅測定

圧縮点における電子のパルス幅を、高強度短パルスレーザーを用いた散乱によって測定した[38, 82, 87]。レーザーと電子パルスは55度で交差させており、このときレーザーパルスのポンデラモーティブ力によって電子パルスがy軸方向へ散乱される。散乱された電子の数と距離の積を積分した形で表される関数Sは、二つのパルスの遅延時間をτとして、

$$S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\frac{\varphi}{2}}^{\frac{\varphi}{2}} dx \int_{-\infty}^{\infty} dz \times \exp\left(-\left(\frac{-z \sin \theta + x \cos \theta - ct + c\tau}{\sqrt{2}\tau_1}\right)^2\right) \times \exp\left(-\left(\frac{z \cos \theta + x \sin \theta}{w_z}\right)^2\right) \exp\left(-\left(\frac{z - vt}{\sqrt{2}v\tau_e}\right)^2\right) \quad (1)$$

と表される[78]。ここで、cは光速、φはアパーチャーの直径、θは二つのパルスの交差角、τ₁はレーザーのパルス幅、w_zはレーザー-xz平面における集光径、vは電子の速度、τ_eは電子のパルス幅をそれぞれ表している。また、レーザーパルスと電子パルスの時間分布はそれぞれガウス分布を仮定している。上式より、散乱された電子の分布S(τ)を実験的に求めることで、電子パルスのパルス幅τ_eを評価することができる。

実際にS(τ)を測定した結果を図3に示す。実験では圧縮点で直径が約500 μmの電子パルスの中心部分を直径50 μmアパーチャーで切り取り、直径12×6 μm (at 2σ)、

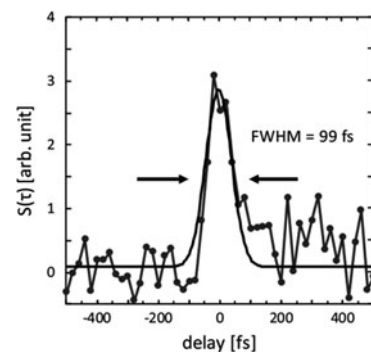


図3 S(τ)の測定結果。実線と式(1)より、高強度レーザーで散乱された部分の電子パルス幅は75 fsと求められる。

パルス幅 40 fs のレーザーパルスと交差させている。図中の実線は式 (1) で表される関数であり、これよりアパーチャーで切り取られた部分の電子パルスのパルス幅は FWHM で 75 fs と求められた。GPT による予想では初期の電子パルスが 40 fs であった場合、圧縮点では 69 fs と計算されており、予想より少し大きな値となっている。この原因は電子発生部分にあると考えており、40 fs ではなく 49 fs のパルス幅を持った電子が放出された場合、実験結果を再現する。この原因は、電子光学系の完全には再現されていない磁場分布による分散やミスアライメント、また、高強度レーザーにより生成されるレーザープラズマから電子が放出される際の電磁相互作用が原因でパルス幅が 9 fs ほど伸長した、といったことが考えられるが、原因の同定には至っていない。また、実験では直径 50 μm という限られた領域でのパルス幅測定となっており、実際には横方向に一樣ではないことが予想される。これらをすべて測定することは困難であるので GPT コードで評価すると、直径 500 μm の電子パルス全体としてのパルス幅は 89 fs と評価された。

2.3 電子パルスとレーザーパルスのタイミングジッター

電子パルスとレーザーパルスのクロスコリレーションにより、二つのパルスのタイミングジッターを測定した。図 4 (a) の圧縮点において、レーザーパルスと電子パルスを交差させる。交差させるレーザーパルスの強度は 10^{19} W/cm^2 となるように集光されており、そのポンデラモーティブ力によって電子パルスが y 軸方向へ散乱される。その結果、電子パルスの空間分布を観察するとレーザーにより排斥された場所が影となる。図 4 (b) はレーザーパルスによって電子パルスの一部が排斥され、スクリーン上に映された様子を示している。電子パルスとレ

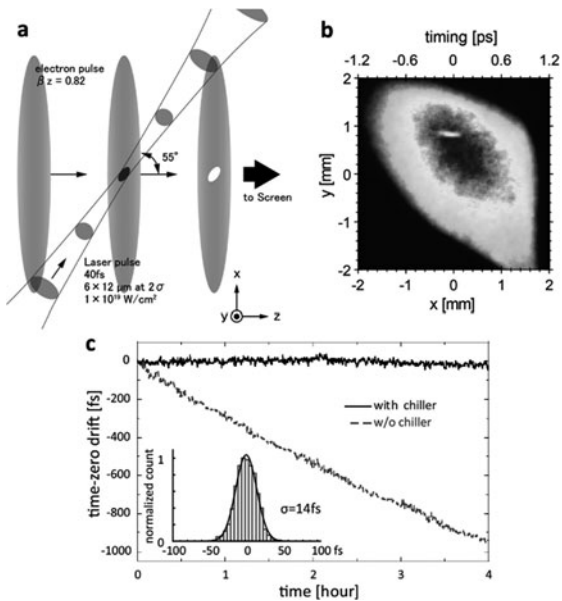


図 4 (a) タイミングジッター測定概念図。レーザーと交差した電子が y 軸方向へ散乱される。(b) 蛍光スクリーンに結像された電子パルスのビームパターン。[x, y] = [0.8 mm, -0.2 mm] の部分にレーザーパルスによる影が映っている。(c) タイミングジッターの測定結果。

ザーパルスが交差するタイミングが変化すると、変化した量に応じてスクリーン上に映し出されたレーザーパルスの影の位置が x 方向に変化する。この変化量の時間依存から、装置全体のタイミングジッターを測定することができる。

図 4 (c) に 4 時間にわたり電子パルスとレーザーパルスのタイミングを測定した結果を示す。破線に示す通り、電子パルスとレーザーパルスのタイミングが 1 時間あたり 200 fs 程度の割合でドリフトすることがわかった。このドリフトは真空槽や室温の温度変化、真空槽内の電動ステージの発熱などに起因しており、環境温度安定性の向上や真空槽内の熱除去を実施することで実線のようにタイミングドリフトを抑えることに成功した。タイミングジッターは 4 時間を通して 14 fsrms であり極めて安定な電子パルスの発生に成功した。現在残っているタイミングジッターの由来は蛍光スクリーンおよびこれを撮像する光学系の空間分解能に起因している。今後はこの分解能を向上させることでさらに高い同期精度の実証が可能と考えている。

3. 超高速に変化する電磁場のイメージング

本章では、我々の開発した短パルス電子発生装置を用いた応用として、超高速に変化する電磁場を観察した例を紹介する。

3.1 真空中を飛行する光パルスのイメージング

パルス幅が 100 fs を下回り、ジッターも十分に抑制された電子パルスの開発に成功した。その実力を評価するためのデモンストレーションとして、パルス幅が 40 fs の光パルスが真空中を飛行する様子を撮像した。実験のセットアップはタイミングドリフトを測定した時のものと同様で、レーザーパルスと電子パルスのタイミングを電動ステージによって任意の値に調整している。図 5 は蛍光スクリーンでの電子パルスによる発光を CCD カメラで撮像した結果を示している。楕円形に見える像が電子パルスのビームパターンを表しており、カラースケールは線形である。図 5 (a)-(e) が、電子パルスとレーザーパルスの交差するタイミングを 100 fs ステップでずらして撮影した写真である。レーザーパルスの強度はタイミングジッター測定の時と同様に 10^{19} W/cm^2 であり、レーザーパルスと電子パルスが交差するとレーザーのポンデラモーティブ力によって電子パルスが散乱され、レーザーパルスが存在する空間の電子パルスが散乱される。この散乱した部分が影となって電子パ

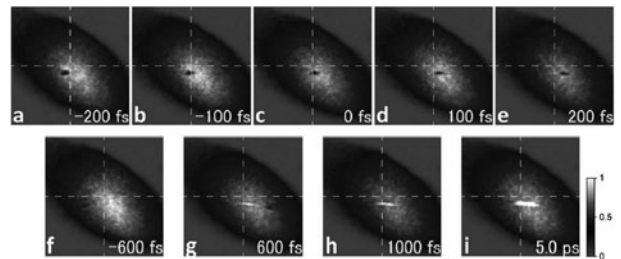


図 5 (a)-(i) 電子パルスでバックライトした光パルス。(a)-(e) では撮影するタイミングを 100 fs ステップでずらしており、光パルスが光速で左から右へ飛行している様子を表している。

ルスのビームパターンに現れる。タイミングを 100 fs ステップでずらしていくと、レーザーパルスの影が図中で徐々に右側にずれていく、つまり、レーザーが進行している様子がわかる。このように、光パルスの影絵を、電磁場との相互作用によってダイレクトに、100 fs ごとに可視化することに成功した。また、図 5 (f) - (i) はタイミングを大きく変えた時の様子を表している。-600 fs では左端から光が集光し始めている様子がわかり、600 fs では光が通り過ぎていく。このとき、レーザーが最も集光された場所には明るい線が見える。レーザーが真空中の残留ガスと相互作用することで残留ガスをプラズマ化し、そのプラズマが作る電磁場によって電子パルスの軌道が曲げられ、スクリーン上で集束することによって明るく見えている。このガスプラズマは 5 ps 後にはより強い電磁場を発生させており、図 5 (i) に示すように輝線の強度が強くなる。このように真空中に形成されるプラズマダイナミクスが観察されており、その強さや空間分布などを 100 fs の時間分解能で詳細に調べることが可能となった。

3.2 レーザーアブレーションプラズマのイメージング

短パルスレーザーによるアブレーションで加工が施される過程は、フェムト秒からマイクロ秒を超える広範な時間スケールで特徴づけられる物理現象が入り乱れる極めて複雑な現象であり、その物理機構はいまだ明らかではない。レーザーを照射した瞬間にそのエネルギーが物質中への電子へと移行することがトリガーとなり、その後のアブレーションの進展へとつながっていく。このため、アブレーション機構に対する明快な物理的描像を与えるためには、レーザー照射中から照射直後にかけての電子の挙動を、極めて高い時間分解能で観測し理解することが必須である。そこで本装置を用いて、短パルスレーザーによるアブレーションが発生した直後の電磁場分布を直接可視化し、アブレーションプラズマの時間発展を測定することをめざした。

本実験配置の模式図を図 6 に示す。本実験はポンプ・プローブ実験となっており、短パルスレーザーによるポンプでアブレーションプラズマを生成し、短パルス電子によるプローブでプラズマが作り出す電磁場の空間分布を測定する、という実験セットアップになっている。これら装置のすべては真空チャンバー内に設置されており、アブレーションプラズマの生成とプローブは真空中で実施している。短パルス電子発生装置の圧縮点 (図 2 (f) の位置) に

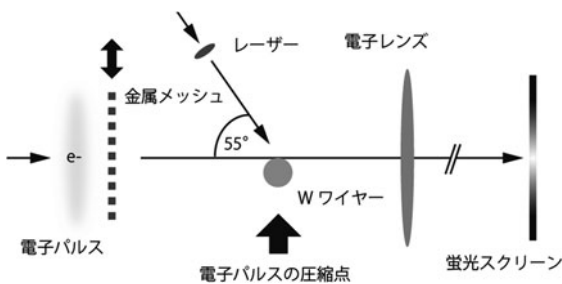


図 6 アブレーションプラズマの作る電磁場分布の短パルス電子による時間分解測定実験の模式図。

レーザー照射試料となるターゲットを設置し、その表面にポンプパルスとしてフェムト秒レーザーを照射する。ターゲットにはタングステンのワイヤー (直径 0.3 mm) を用いた。タングステンワイヤーに照射するレーザーは短パルス電子の加速に用いるレーザーから一部を分岐したもので、集光径 78 μm 、フルエンスが 1.5 J/cm^2 となるように調整した。タングステンのアブレーション閾値は 0.2 J/cm^2 程度であり、本実験でのレーザーフルエンスにおいてアブレーション率は 30 nm/shot 程度である [88]。アブレーションプラズマの作り出す電磁場を測定するために、ポンプパルスを照射した場所にプローブとなる短パルス電子を横切らせ、パルス電子は圧縮点から 40 mm 後方に設置されている電子レンズによって蛍光スクリーンへ結像される。この電子レンズは圧縮点より 15 mm 後方に形成される短パルス電子の像を転送している。短パルス電子がアブレーションプラズマ生成電磁場によって進行方向を曲げられると、その影響によってワイヤー後方に形成される短パルス電子の像が変化する。変化した像は電子レンズによって蛍光スクリーン上に結像され、CCD カメラによって二次元画像として取得される。この像の変化からワイヤー表面に形成される電磁場の大きさや方向などを測定することができる。また、短パルス電子がタングステンワイヤーを横切る直前には金属メッシュを挿入することが可能になっている。金属メッシュによって短パルス電子をマルチアレイ化することで、電磁場の向きや強度をより詳細にマッピングすることができる。本実験では #400 の正方格子の銅メッシュ (ピッチ 62 μm 、バーの太さ 8 μm) を用いた。

図 7 に実験結果の一例を示す。図 7 (a) がフェムト秒レーザーを照射せず、タングステンワイヤーのみを短パルス電子によって撮像したラジオグラフ (影絵) になる。図 7 (b) にフェムト秒レーザーを照射した 1 ps 後の短パルス電子の影絵を示す。これらの画像は 10 ショットを積算したものである。以下図 7 ~ 図 10 の影絵において、図 9 (b) の画像以外はすべて 10 ショットを積算した画像となっている。

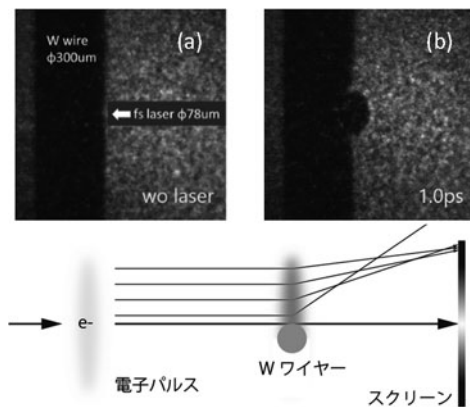


図 7 アブレーションプラズマ生成電磁場分布の時間分解測定結果の例。(a)フェムト秒レーザー未照射時のタングステンワイヤーの影絵。(b)フェムト秒レーザーを照射し 1 ps 経過した後の影絵。(c)ワイヤー表面から噴き出した電子によって短パルス電子の軌道が曲げられ、半球状の影が見える仕組みを表した模式図。

る。図7 (b)の画像中央に見られる半球状の影が電場によって形成された短パルス電子像の変調である。フェムト秒レーザー照射によってタングステンワイヤーから電子が真空中へと放出され、これによって形成される電場によって短パルス電子が排斥され、半球状の影として観察されている(図7 (c))。また、半球状の影のワイヤー近傍部分(上下の部分)に着目すると、ワイヤーの影が直線ではなく左側に曲がって見える。タングステンワイヤーから電子が放出された際、電子とワイヤー表面の間にキャビティのような電場が形成されることで、ワイヤーの表面付近を横切った短パルス電子がワイヤーの方へ引き付けられる力を受け、ワイヤー表面の形状がへこんだ形に見える。

さらに詳細な遅延時間でアブレーションプラズマの作る電磁場の空間分布を観察した結果を図8に示す。図8の各画像は、フェムト秒レーザーを照射したのち右上に記載されている時間だけ遅延を付けて短パルス電子を横切らせた時のプロファイルになっている。フェムト秒レーザー照射を照射した0.1 ps後から半球状の影が形成され始め、その大きさが次第に大きくなっていく様子がわかる。100 fsの時間分解能でアブレーションプラズマが進展していく様子をとらえることに成功している。電場によって形成された影は0.1 psの時にはフェムト秒レーザーの集光径と同程度になっており、レーザー照射領域から電子が飛び出していることがわかる。さらに時間が経過すると、0.5 ps程度までは急激に影の大きさが大きくなり、それ以降の大きさの変化は緩やかになる。この影の大きさの膨張する速度はほぼ光速と同程度の速度になっており、真空中へと飛び出した電子により形成される電場のフロントが光速で真空中へ伝搬し広がっている様子や、電子が短パルスレーザー照射後、短パルスレーザーが存在しなくても継続してワイヤーから噴き出している様子を表していると考えているが、現状のセットアップでは短パルス電子ビームプロファイルの拡大倍率が小さく、上記のどちらが支配的な要因として撮像されているのか判別ができない。詳細を理解するためにはより高い倍率、高い空間分解能で観察する必要がある、今後の課題となっている。

遅延時間が0.5 psになると、影の膨張速度はそれまでに比べて緩やかになり、5 ps程度までほぼ一様に影のエッジ

が膨張していた。その速度は 1.1×10^7 m/s程度で、エネルギーに換算すると360 eV程度であった。発生する電子の速度分布の中心が360 eV程度のエネルギーを持った電子がワイヤーから噴き出しているものと考えている。また、ワイヤーのエッジが作る影の部分は、次第にワイヤー側へと移動しており、10 psの像を見るとおわん型に歪んでいることがわかる。この歪みは、実際にワイヤーがこのような形状をしているというわけではなく、電子が上空に放出され、これとワイヤー表面の残留電荷によって作り出される電場によってワイヤー表面方向へ引き寄せられたために見られる形状である。

上述のような実験結果をより詳細に調べるため、短パルス電子を金属メッシュによってマルチアレイ化し、電場の向きや強度をより詳細に調べた。図9にその結果を示す。このメッシュの線の変位から、短パルスレーザー照射によって生成されたレーザープラズマによる電場の大きさを計算することができる。図9 (b)の画像は、SNを上げて見やすくするために8 psから8.9 psまでの画像を積算したものであり、100ショットの積算となっている。図9 (b)のA点とB点はそれぞれワイヤー表面から62 μm 、124 μm 上空の金属メッシュにより作られた線の交点の位置である。図9 (a)は、A点とB点がそれぞれ元の位置より変位した量から電場の大きさを求め、この遅延時間依存性を表したものである。Aの位置では4 ps程度までは交点が見えなくなっており、プローブとなる短パルス電子が遠くへ飛ばさ

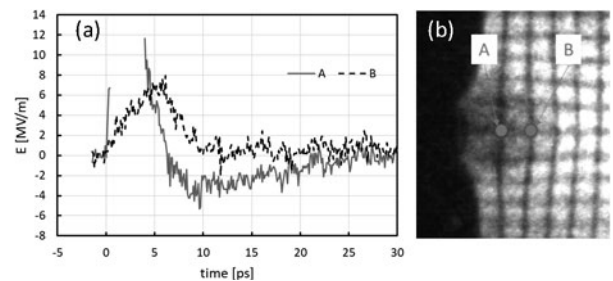


図9 (a)アブレーションプラズマ生成電場の時間分解測定結果。AとBはそれぞれ(b)の画像に示されたA点とB点に対応している。(b)8–8.9 psまでの100回分の測定結果を積算した画像。A点とB点はそれぞれワイヤー表面から62 μm 、124 μm 離れた場所である。

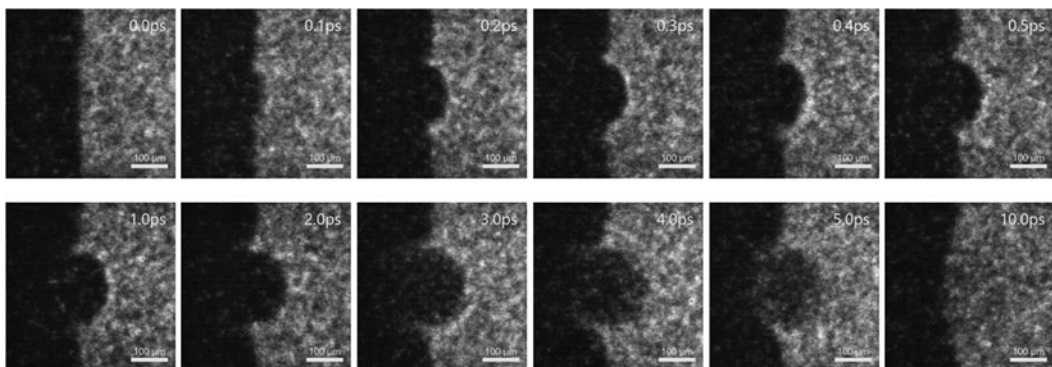


図8 アブレーションプラズマ生成電磁場分布の時間分解測定結果。各画像の右上にフェムト秒レーザーを照射してから短パルス電子が横切るまでの遅延時間を示している。

れるほど電場が強いことを示している。Bの位置では電場(斥力)を感じた後、10 ps 程度後で観察可能な電場がなくなっている。6-9 ps にかけて、Aの位置とBの位置で電場の向きが逆転しており、フェムト秒レーザー照射によってワイヤー表面から噴き出した電子群が、A点を横切っている様子を表している。この時、電子群が通過する速度を計算すると、 1.1×10^7 m/s となり、金属メッシュを用いずに評価していた放出電子の速度と同様の値となった。

最後に実験で観察された短パルス電子による電場の空間分布の影絵から、どの程度の電子が真空中へと放出されていたのかを評価するために、数値計算との比較を行った結果を示す(図10)。シミュレーションはGPTコードを使った。GPTではフェムト秒の時間スケールで電子が金属表面から放出される様子を詳細に計算することが難しいため、ここではワイヤーを模擬した金属と、その表面より10 μ m 上空に総電荷量が10 pCの電子を配置し、時間変動のない静電場分布を構成した。この電場分布の中を、金属メッシュによってマルチアレイ化された短パルス電子を横切らせてできるビームプロファイルを図10(b)に示している。図10(a)に示す、遅延時間が3 psの時の実験結果をよく再現することに成功している。実験結果を再現するためには電子の総電荷量とその空間分布が重要なパラメータであり、試行錯誤によって図10(b)を再現する電荷量と空間分布を決定している。電場の空間分布を一枚のシャドウグラフ画像から求める問題は不良設定問題であり、実験結果を再現するための解は一意には決まらない、という問題がある。影の大きさやメッシュの歪みといった特徴量を再現するにあたり、電荷量やその分布に対してどのような変化をするかといったパラメータ依存性の調査をより体系的に実施する必要がある。また、軸対称な場の仮定が許されれば、メッシュ歪みの空間分布から Abel inversion によって電場の空間分布を再構築することが可能である。今後は以上のような解析を発展させていきたい。

4. まとめ

よりパルス幅の短い超短パルス電子の発生をめざし、レーザープラズマ相互作用により発生する電子パルスに応用する研究を行っている。新たに提案している静磁場型の位相回転器を用いたパルス圧縮装置を用いることで、極めてパルス幅の短くジッターフリーな短パルス電子を発生させることに成功した。本電子パルスを用いて、100 fsの時

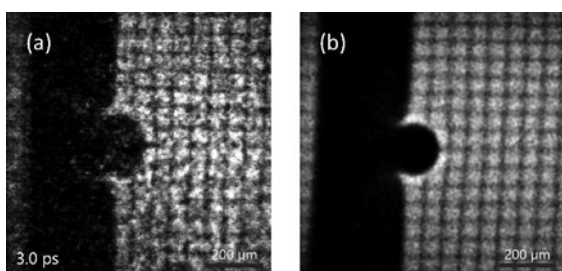


図10 (a)遅延時間が3 psの実験結果。(b)GTPによって再現された影絵。

間スケールで時々刻々と飛行する光パルスをダイレクトに撮影することに成功した。現在の装置は高強度レーザーを電子パルスに変換する媒質として固体薄膜を用い、レーザー電場によって電子をダイレクトに加速している。このため、電子のパルス幅はレーザーのパルス幅以下にすることが難しく、時間分解能はレーザーパルス幅によって制約を受ける。しかし、ターゲットに気体を用い、レーザーの偏向を制御することで、電子パルス幅がレーザーパルス幅を下回る、1 fsの電子源の実現が可能であることがシミュレーションにより予言されており、今後の発展に期待できると考えている[89]。このように、今回実現した短パルス電子のさらなる高品位化をめざすとともに、まだ見ぬ超高速現象の観察を実施していく予定である。

謝辞

本研究の一部は、公益財団法人 天田財団 (2019年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2019236-C2) ならびに科学研究費助成 (基盤研究 (C) 18K11918, H30-R3 年度文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP) JPMXS0118070187 の研究助成により行われました。

参考文献

- [1] W.E. King *et al.*, J. Appl. Phys. **97**, 111101 (2005).
- [2] B.J. Siwick *et al.*, Chem. Phys. **299**, 285 (2004).
- [3] M. Harb *et al.*, Phys. Rev. Lett. **100**, 155504 (2008).
- [4] M. Hada *et al.*, Nat. Commun. **5**, 3863 (2014).
- [5] J. Zhou *et al.*, Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear, Soft Matter Phys. **90**, 041102 (2014).
- [6] T. Van Oudheusden *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 264801 (2010).
- [7] M. Gao *et al.*, Nature **496**, 343 (2013).
- [8] G. Mourou and S. Williamson, Appl. Phys. Lett. **41**, 44 (1982).
- [9] S. Williamson *et al.*, Phys. Rev. Lett. **52**, 2364 (1984).
- [10] H.E. Elsayed-Ali and J. W. Herman, Rev. Sci. Instrum. **61**, 1636 (1990).
- [11] H.E. Elsayed-Ali and J. W. Herman, Appl. Phys. Lett. **57**, 1508 (1990).
- [12] M. Dantus *et al.*, J. Phys. Chem. **98**, 2782 (1994).
- [13] A.A. Ischenko *et al.*, J. Phys. Chem. **98**, 8673 (1994).
- [14] M. Aeschlimann *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **66**, 1000 (1995).
- [15] H. Ihee *et al.*, Chem. Phys. Lett. **281**, 10 (1997).
- [16] J.C. Williamson *et al.*, "Clocking transient chemical changes by ultrafast electron diffraction," Nature **386**, 159 (1997).
- [17] J. Cao *et al.*, Chem. Phys. Lett. **290**, 1 (1998).
- [18] J. Cao *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. **96**, 338 (1999).
- [19] H. Ihee *et al.*, Science (80-.). **291**, 458 (2001).
- [20] C.Y. Ruan *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. **98**, 7117 (2001).
- [21] V.A. Lobastov *et al.*, J. Phys. Chem. A **105**, 11159 (2001).
- [22] H. Ihee *et al.*, Chem. Phys. Lett. **353**, 325 (2002).
- [23] B.M. Goodson *et al.*, Chem. Phys. Lett. **374**, 417 (2003).
- [24] B.J. Siwick *et al.*, Science (80-.). **302**, 1382 (2003).
- [25] J. Cao *et al.*, Appl. Phys. Lett. **83**, 1044 (2003).
- [26] S. Xu *et al.*, J. Phys. Chem. A **108**, 6650 (2004).

- [27] H. Park *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **76**, 083905 (2005).
 [28] M. Centurion *et al.*, Nat. Photonics **2**, 315 (2008).
 [29] C.T. Hebeisen *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 081403 (2008).
 [30] C.T. Hebeisen *et al.*, Opt. Express **16**, 3334 (2008).
 [31] S.T. Park *et al.*, Angew. Chemie - Int. Ed. **47**, 9496 (2008).
 [32] X. Wang *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 121918 (2008).
 [33] D. Shorokhov *et al.*, Chem. Phys. Chem. **6**, 2228 (2005).
 [34] H. Park *et al.*, J. Phys. Chem. B **109**, 13854 (2005).
 [35] H. Park *et al.*, Phys. Rev. B-Condens. Matter Mater. Phys. **72**, 100301 (2005).
 [36] H. Park *et al.*, Solid State Commun. **136**, 559 (2005).
 [37] M. Harb *et al.*, J. Phys. Chem. B **110**, 25308 (2006).
 [38] C.T. Hebeisen *et al.*, Opt. Lett. **31**, 3517 (2006).
 [39] S. Nie *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 15 (2006).
 [40] A. Janzen *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **78**, 013906 (2007).
 [41] H.S. Park *et al.*, Nano Lett. **9**, 3954 (2009).
 [42] P. Reckenthaler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 213001 (2009).
 [43] G. Sciaini *et al.*, Nature **458**, 56 (2009).
 [44] M. Ligges *et al.*, Appl. Phys. Lett. **94**, 101910 (2009).
 [45] C. Y. Ruan *et al.*, Microsc. Microanal. **15**, 323 (2009).
 [46] M. Harb *et al.*, Phys. Rev. B-Condens. Matter Mater. Phys. **79**, 094301 (2009).
 [47] X. Wang *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **80**, 013902 (2009).
 [48] R.P. Chatelain *et al.*, Appl. Phys. Lett. **101**, 081901 (2012).
 [49] M. Gao *et al.*, Opt. Express **20**, 12048 (2012).
 [50] G.F. Mancini *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. **691**, 113 (2012).
 [51] A. Hanisch-Blicharski *et al.*, Ultramicroscopy **127**, 2 (2013).
 [52] P. Zhu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 231914 (2013).
 [53] V.R. Morrison *et al.*, Opt. Express **21**, 21 (2013).
 [54] R.P. Chatelain *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 235502 (2014).
 [55] M. Gulde *et al.*, Science (80-.) **345**, 200 (2014).
 [56] R.Z. Li *et al.*, New J. Phys. **16**, 103013 (2014).
 [57] R.Z. Li *et al.*, J. Appl. Phys. **115**, 183507 (2014).
 [58] P.F. Zhu *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **81**, 103505 (2010).
 [59] M. Eichberger *et al.*, Nature **468**, 799 (2010).
 [60] G.H. Kassier *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **81**, 105103 (2010).
 [61] G.H. Kassier *et al.*, Appl. Phys. B Lasers Opt. **109**, 249 (2012).
 [62] N. Erasmus *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 167402 (2012).
 [63] C.J. Hensley *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 133202 (2012).
 [64] M.R. Otto *et al.*, Struct. Dyn. **4**, 051101 (2017).
 [65] J. Yang *et al.*, Nat. Commun. **6**, 8172 (2015).
 [66] O. Zandi *et al.*, Struct. Dyn. **4**, 044022 (2017).
 [67] O. Zandi *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **88**, 063305 (2017).
 [68] J. Hu *et al.*, Chem. Phys. Lett. **683**, 258 (2017).
 [69] R. Li *et al.*, Struct. Dyn. **5**, 044501 (2018).
 [70] M.S. Robinson *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **86**, 013109 (2015).
 [71] J. Hu *et al.*, ACS Nano **9**, 6728 (2015).
 [72] M. Hada *et al.*, Sci. Rep. **5**, 13530 (2015).
 [73] L. Chen *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. **112**, 14479 (2015).
 [74] C. Gerbig *et al.*, New J. Phys. **17**, 043050 (2015).
 [75] T. Ishikawa *et al.*, Science (80-.) **350**, 1501 (2015).
 [76] D.S. Badali *et al.*, Struct. Dyn. **3**, 034302 (2016).
 [77] D.S. Yang *et al.*, Struct. Dyn. **3**, 034304 (2016).
 [78] S. Inoue *et al.*, Sci. Rep. **10**, 20387 (2020).
 [79] F.B. Kiewiet *et al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip. **484**, 619 (2002).
 [80] A. Gliserin *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 1 (2013).
 [81] M. Walbran *et al.*, Phys. Rev. Appl. **4**, 044013 (2015).
 [82] S. Tokita *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 215004 (2010).
 [83] W.L. Kruer and K. Estabrook, Phys. Fluids **28**, 430 (1985).
 [84] S.C. Wilks *et al.*, Phys. Rev. Lett. **69**, 1383 (1992).
 [85] F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
 [86] S. Inoue *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 185001 (2012).
 [87] B.J. Siwick *et al.*, Opt. Lett. **30**, 1057 (2005).
 [88] M. Shimizu *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 174106 (2013).
 [89] V. Marceau *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 224801 (2013).



いの うえ しゅん すけ
井上峻介

ソニーセミコンダクタソリューションズ株式会社。2013年に京都大学大学院理学研究科・博士後期課程を修了，博士（理学）。大学では高強度レーザープラズマ物理，量子ビーム発生とその応用，及びレーザープロセッシングの基礎研究に従事していました。2021年10月より現職。



はし だ まさ き
橋田昌樹

東海大学・総合科学技術研究所・特任教授。短パルスレーザーによる微細構造形成メカニズム解明とその応用に関する研究に従事しています。2021年10月1日に研究室が発足し，今は研究室の立ち上げに注力しています。新機能材料表面に付与し Society5.0 社会実現に貢献したいと考えています。趣味はソフトボール，テニス，読書。昨年より新車に乗り換えました。

<https://sites.google.com/view/tokai-univ-hashida-lab/>