

## 10兆分の1秒以下のコマ撮りが可能な 電子線分子動画撮影装置の開発に成功

— 光が駆動する 20兆分の1秒の結晶変化を観測 —

### 【要点】

- 新たなパルス電子線発生技術により、光励起で起きる 10兆分の1秒（100フェムト秒）以下の変化を観測するテーブルトップサイズ装置を世界で初めて開発
- 典型的半導体材料である単結晶 Si の 20兆分の1秒（50フェムト秒）程度の原子の動きを初めて観測することに成功
- 小型で試料損傷がほとんどないため、光メモリー、光エネルギー変換材料など幅広い材料開拓への貢献を期待

### 【概要】

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学 未来材料・システム研究所の桑原真人准教授は、東京工業大学 理学院 化学系の田久保耕特任助教、Samiran Banu（サミラン・バヌー）大学院生（博士後期課程3年）、腰原伸也教授らは、筑波大学 数理物質系の羽田真毅准教授、矢嶋渉大学院生（博士前期課程2年）らと共同で、光励起で起きる 10兆分の1秒（100フェムト秒）以下の構造変化を観測するテーブルトップサイズ電子線回折（用語1）装置を世界で初めて開発した。

本装置は大型の加速器を用いず、レーザーと小型加速器の精密制御による新たなパルス電子線発生技術を利用することで、約 50フェムト秒（1フェムト秒は 1,000兆分の1秒）以下という、結晶材料中の原子や分子が振動する速さでの変化を高精度でコマ撮りできる。実際にこの装置を用いて、典型的半導体である単結晶 Si に光があたると Si 原子がどのように動くのかという、光デバイス開発の最も基本的な情報を得ることに初めて成功した。本装置では、従来よりも加速電圧を抑えた（10万ボルト）電子線を用いているため、試料損傷もほとんどなく、無機物質から有機物質まで広がる光エネルギー変換材料や光メモリー、トポロジカル材料など幅広い材料開拓への貢献が期待される。

本研究成果は 5月31日（現地時間）に、「*Review of Scientific Instruments*」にオンライン掲載された。

## ●背景

光が当たる（光励起と呼ばれる）ことによって、材料の構造が変わって色合いや電気特性、磁気特性が変化する光メモリー材料や光スイッチ材料の研究は、さまざまな情報処理分野の発展のカギを握るものとして、世界中で研究が競われている。最近ではその高速化を目指すなかで、トポロジカル物質の光による構造制御も注目を集め始めている。さらに人工光合成材料の開発でも、光励起での固体結晶や分子の構造変化が、動作原理のカギを握っていると推測されている。

現在では、こういった光励起で起きる原子分子レベルでの変化の最初の部分は、10兆分の1秒以下で起きていることが分光学的研究や理論計算から推測されている。それを具体的に観測するためには、構造を観測するX線や電子線装置にも、この時間スケールより短いパルス特性を持たせることが必要になる。これまでの研究ではそうした技術の実現に向けた挑戦が続けられてきたが、以下の3つの大きな問題があった。

(1) パルス幅の圧縮方法。従来の技術では、巨大加速器を用いる方法以外に、10兆分の1秒以下というきわめて短いパルス幅を持つX線や電子線を発生させる方法がなかった。従来の研究でも、巨大加速器の利用を前提としていた。

(2) 試料損傷による制限。従来の加速器による方法では、高エネルギーのX線や電子線を用いざるを得ないため、試料損傷によって対応できる物質が限定されてしまう。

(3) 装置の巨大化。加速器は巨大な装置であるため、利用が限定され、世界中の多くの研究室で行われている材料開発に対応できない。

これらの問題点を解決するために、小型のパルス電子線発生技術と、それを用いたテーブルトップサイズの電子線回折装置の開発が世界中で急がれている。特に、原子分子サイズの構造観測に広く用いられているX線や高速電子線（加速電圧100万ボルト級）よりも加速電圧が低い（10万ボルト以下の）電子線を使って、試料損傷を抑えながら、種々の有用材料の光構造変化の最初の過程となる10兆分の1秒以下の変化を捉える装置の開発が一つの夢（重要目標）となっていた。

## ●研究の経緯

東京工業大学の研究グループでは、微弱な光励起によって、10兆分の1秒以下の超高速で特性（光学特性、磁性、誘電性）が劇的に変化する光誘起相転移材料を約35年間研究している。この過程でパルス電子線技術の先駆的研究者であるカナダ・トロント大学のDwayne Miller教授との10年を超える共同研究を行い、加速電圧が比較的低い（10万ボルト）電子線で、種々の有用材料の光構造変化を実際に捉えることに成功した。しかしこれらの研究では、1~2兆分の1秒の時間スケールで原子や分子の運動を捉えることはできたが、光誘起相転移機構の解明のカギとなる10兆分の1秒以下の変化を捉えることはできなかった。

そこで、この技術課題に挑戦するために、Miller 教授の下で技術を学んだ日本の若手研究者である筑波大学の羽田准教授と、日本の電子顕微鏡技術開発の若手研究者である名古屋大学の桑原准教授を加えた集中的な共同研究チームを構成した。このチームでの議論を基盤に、2 年前には第一段階として、上記の問題 (2) と (3) を解決できる、10 万ボルト加速電圧の電子線を用いた、試料損傷のほとんどないテーブルトップサイズの装置の開発に成功した (図 1、写真 1)。しかしこの装置では、どうやって電子線のパルス幅を圧縮するか (問題 (1)) については未解決だった。

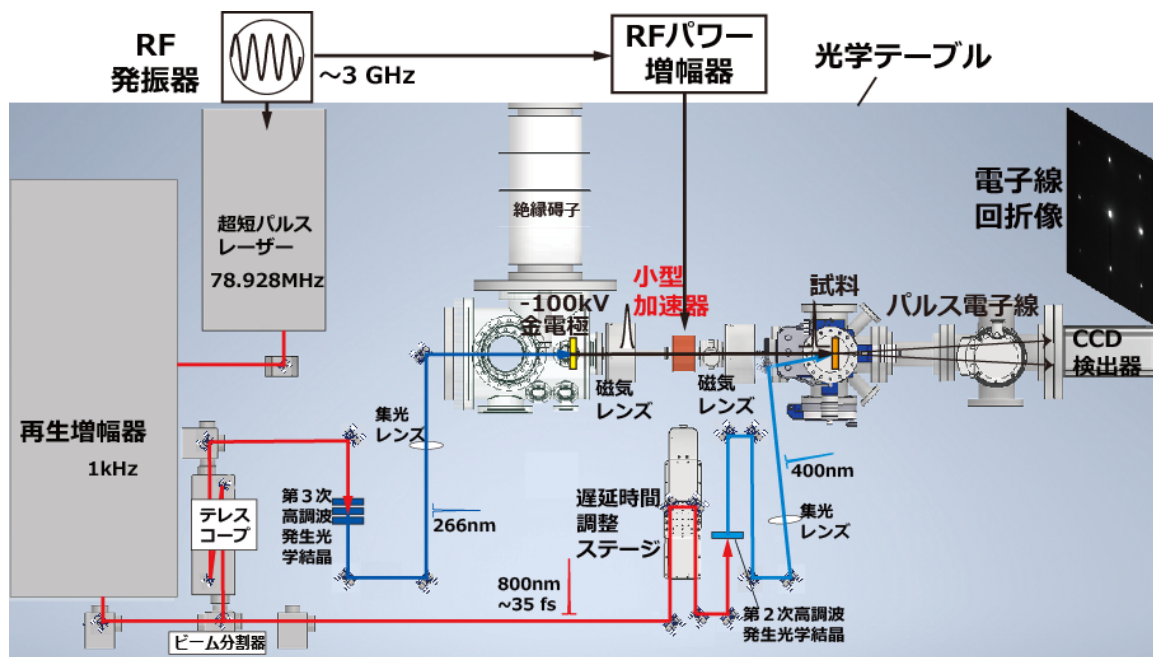


図 1 装置全系概要図

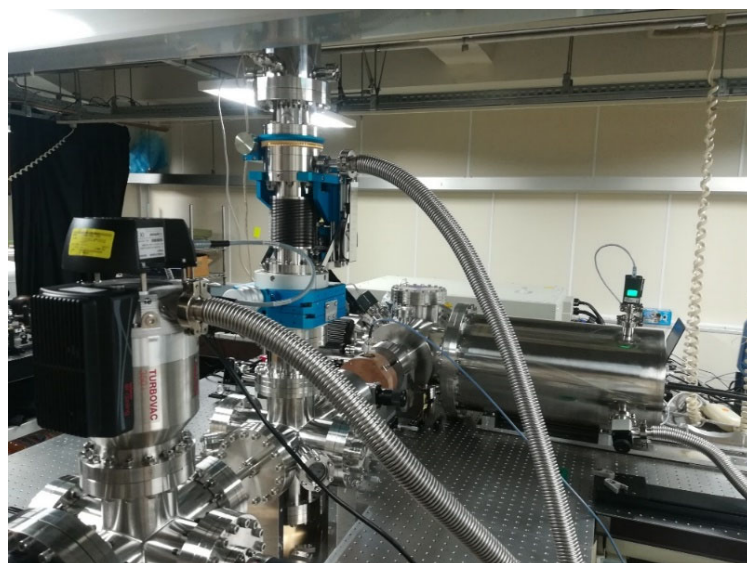


写真 1 テーブルトップ電子線回折装置写真

## ●研究成果

本研究では、残されていた電子線のパルス幅圧縮の問題を解決し、光励起で起きる 10 兆分の 1 秒（100 フェムト秒）以下の変化を観測する、テーブルトップサイズで試料損傷もほとんどない電子線回折装置の開発に、世界に先駆けて成功した。

超短パルスレーザーで発生させる電子線パルスは、光電面からの放出後、ただちに電子間の反発力でパルス幅が 1 兆分の 1 秒以上に広がってしまう。そのため、外部から加える電場を使って、広がろうとするパルスの前半部の速度を抑え、逆に後半部は加速することが必要不可欠である（図 2）。田久保特任助教と Banu 大学院生は、矢嶋大学院生のシミュレーション計算結果などをもとに、約 30 cm 角に収まる超小型加速器技術を利用する方法を検討した。具体的には、この超小型加速器の温度を 0.01℃の正確さで制御しつつ、そこに入力する電子パルス制御用 RF 電磁波の強度と位相を、電子線パルスの形に合うように精密に制御すれば、10 兆分の 1 秒以下の変化を捉える装置という夢が達成できると確信した。

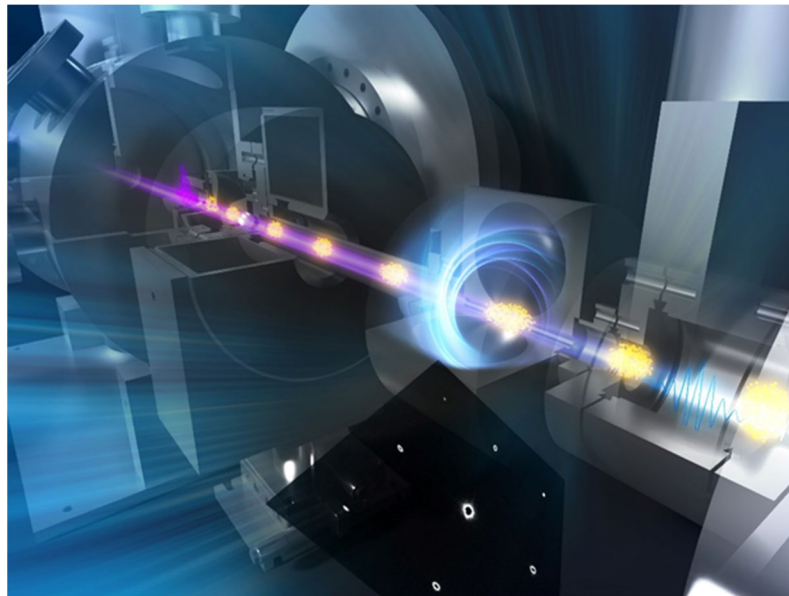


図 2 パルス電子線の飛行とパルス幅圧縮概念図。左側の光電面から射出された電子パルス（電子に対応する黄色粒の塊）が前後に広がり、長い時間幅のパルスとなる。中心部の超小型加速器（中央の水色部分）を使って、電子パルスの前半部を減速、後半部を加速することで、前後の長さ（パルス幅）が圧縮された極短電子パルスとなり、試料(Si)に入射する。

そこで、昨今急速に進展した 5G 技術（ギガヘルツ域の RF の発生・制御技術）を活用し、超高精度 RF 発振器の電磁波によって、レーザーと超小型加速器の双方を精密制御する装置を開発し、パルス幅 10 兆分の 1 秒以下（実際には 75 フェムト秒以下程度と推定）のパルス電子線発生に成功した。

この装置の性能の確認とデモンストレーションのために、光電デバイス材料と



しても活用されている、典型的な半導体である Si の単結晶を対象とした観測を行った。Si 単結晶では、光学的に 50 フェムト秒以下程度の超高速構造変化が光励起で起きていると予測されている。観測では、構造変化が実際に予測通りの時間スケールで起きていることを初めて確認した (図 3)。

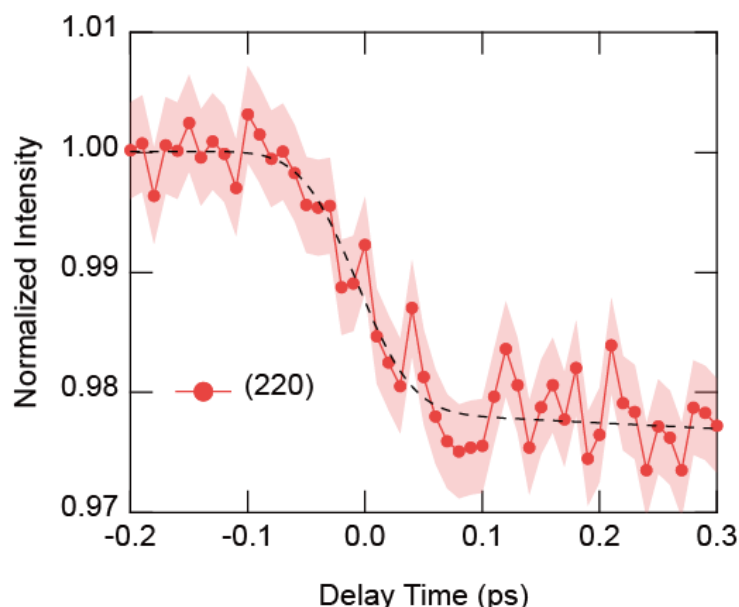


図 3 シリコン単結晶の(220)回折点強度の時間変化。点線は電子線パルス幅 75 フェムト秒を仮定したシミュレーション。

### ●今後の展開

本研究で開発した技術は今後、光メモリー、光エネルギー変換 (人工光合成) など各種光デバイスの超高速化・高効率化対応材料開発に貢献することが期待される。

今後の研究では、本研究チームが開発した装置を、物質開発者にとって使いやすく、世界的開発競争の中で独自性を維持した装置にするために、以下の取り組みを共同で継続する予定である。

1: 超短パルスレーザーを用いて発生させる **THz (テラヘルツ) 光** (用語 2) を用いて、パルス幅を直接監視する常設的な装置を開発し、**RF 電磁波**の更なる精密制御化によって、より短い電子線パルスの発生を目指す。

2: この **THz 光**によって誘起される、新しい物質状態 (フロッケ状態) の構造変化の確認を行うことで、新しい光電材料、特に誘電体の光制御の可能性を追求する。

3: 電子線パルスのスピン状態を制御し、それが磁性体の光誘起磁性変化 (光磁石) 研究に実際に使えるのかどうかを調べる、世界で初めての試みに挑戦する。

## ●付記

本研究は、日本学術振興会の科学研究費補助金特別推進研究「光と物質の一体的量子動力学が生み出す新しい光誘起協同現象物質開拓への挑戦」（研究代表者：腰原伸也、課題番号：18H05208）の支援を受けて実施された。

### 【用語説明】

- (1) **電子線回折**：真空中で高電圧により加速した電子ビーム（電子線）を物質に照射すると、透過・反射した電子線が干渉によって様々なパターン（回折図形）を生じることを用いて、物質の結晶構造の対称性の情報を取得する手法。超短パルスレーザーを金の電極等に照射すれば、光電効果により数千億分の1秒程度のパルス幅の電子ビームが容易に作成できることは、多くの先行研究により確認されていた。
- (2) **THz（テラヘルツ）光**：光と電波の中間の周波数領域にある電磁波で、典型的周波数が1テラヘルツ（1秒間に1兆回、波長約300 $\mu\text{m}$ ）前後の光。

### 【論文情報】

掲載誌：*Review of Scientific Instruments*

論文タイトル：Generation of sub-100 fs electron pulses for time-resolved electron diffraction using a direct synchronization method

著者：Kou Takubo, Samiran Banu, Sichen Jin, Misaki Kaneko, Wataru Yajima, Makoto Kuwahara, Yasuhiko Hayashi, Tadahiko Ishikawa, Yoichi Okimoto, Masaki Hada, and Shinya Koshihara

DOI：10.1063/5.0086008

URL：<https://aip.scitation.org/doi/10.1063/5.0086008>