

原子衝突学会誌「しょうとつ」
2021年11月15日発行
第18巻第6号

原 子 衝 突 学 会 誌

しょうとつ

Journal of Atomic Collision Research

Vol.18 Issue6

2021

解説（第21回若手奨励賞受賞研究）

レーザー光による電子線制御技術の開発とアト秒イメージングへの応用：
アト秒電子パルスの発生と検出

森本裕也

原子衝突学会賛助会員（五十音順）

アイオーピー・パブリッシング・リミテッド（IOP 英国物理学会出版局）

Institute *of* **Physics**

<http://iopscience.iop.org/>

アドキャップバキュームテクノロジー株式会社



<http://www.adcap-vacuum.com>

有限会社イーオーアール



Electronics Optics Research Ltd.

<http://www.eor.jp/>

イノベーションサイエンス株式会社



<http://www.innovation-science.co.jp/>

株式会社オプティマ



<http://www.optimacorp.co.jp/>

クリムゾン インタラクティブ・ジャパン



<http://www.enago.jp/>

<http://ulatus.jp/>

<http://www.voxtab.jp/>

コスモ・テック株式会社



<https://www.cosmotec-co.jp/>

株式会社サイエンス ラボラトリーズ



株式会社サイエンス ラボラトリーズ

<http://www.scilab.co.jp/>

真空光学株式会社



<http://www.shinku-kogaku.co.jp/>

スペクトラ・フィジックス株式会社



A Newport Company

ソーラボジャパン株式会社

<http://www.spectra-physics.jp/>



<http://www.thorlabs.jp/>

株式会社東京インスツルメンツ



<http://www.tokyoinst.co.jp/>

株式会社ナバテック

真空機器の未来と歩む



<http://www.navatec.co.jp/>

仁木工芸株式会社



<http://www.nikiglass.co.jp/>

伯東株式会社



<http://www.g5-hakuto.jp/>

原 子 衝 突 学 会 誌

しょうとつ

第 18 卷 第 6 号



THE ATOMIC COLLISION
SOCIETY OF JAPAN

目 次

解説(第 21 回若手奨励賞受賞研究) レーザー光による電子線制御技術の開発とアト秒イメージングへの応用: アト秒電子パルスの発生と検出	森本裕也 ...125
原子衝突学会第 46 回年会報告	行事委員会委員長 ...142
第 22 回若手奨励賞受賞者決定のお知らせ	顕彰委員会委員長 ...143
第 23 回原子衝突学会若手奨励賞 募集要項	顕彰委員会委員長 ...143
2021 年度原子衝突学会学生発表奨励賞 募集要項	顕彰委員会委員長 ...144
2021 年度第 2 回運営委員会報告	庶務委員会委員長 ...145
2021 年度第 3 回運営委員会報告	庶務委員会委員長 ...145
2021 年度第 4 回運営委員会報告	庶務委員会委員長 ...146
第 48 回定期総会報告	庶務委員会委員長 ...146
2021 年度原子衝突学会次期会長・運営委員選挙について	2021 年度選挙管理委員会委員長 ...146
「しょうとつ」原稿募集	編集委員会事務局 ...146
ユーザー名とパスワード	...147

レーザー光による電子線制御技術の開発と アト秒イメージングへの応用: アト秒電子パルスの発生と検出

森本 裕也

フリードリヒ・アレクサンダー大学エアランゲン=ニュルンベルク Stadtstr. 1, 91058, Erlangen, Germany

理化学研究所 〒351-0198 和光市広沢 2-1

yuya.morimoto@fau.de

令和 3 年 7 月 30 日原稿受付

アト秒レーザーの開発により、物質内の電子の動きを実時間で計測することが可能となった。しかし、波長の制限によって、原子レベルの空間分解能でのアト秒計測は未だ困難である。本稿では、電子線が有する高い空間分解能に、アト秒の時間分解能を与える、アト秒電子線制御技術を解説する。特に、光電場による電子線の時間圧縮と、光周期ストリークによる電子パルスの時間形状測定を詳説する。アト秒電子パルスは、化学反応や原子衝突過程の超高速イメージングへの応用が期待される。

1. はじめに: なぜアト秒電子パルスが必要か?

光や荷電粒子などの照射に対して、物質内電子は原子の動きよりも十分速い時間スケールで応答する。例えば、光が物質に照射されている、まさにその瞬間に起こる光電磁場によって駆動される物質内の電荷の動きは、光と物質の相互作用における最も重要な過程の一つである。そして、その直接観測には原子レベルの空間分解能とアト秒の時間分解能が必要である。アト秒レーザーの登場によって、アト秒時間軸での分光測定が可能となり、光電子放出に要する時間や物質内の電子ダイナミクスに関する様々な知見がもたらされた[1]。しかしながら、アト秒レーザーの波長は数 nm 程度のため、原子レベルの空間分解能は未だ困難である。

電子線は、高い空間分解能での測定が可能なプローブの代表例である。加速された電子線の波長は極めて短く、例えば、運動エネルギー 100 keV の電子のドブロイ波長は 4 pm である。短い波長のため、電子線は、顕微鏡法による原子レベルの材料イメージング[2]、回折法による分子の構造決定[3, 4]、さらには原子核の構造研究[5]にまで用いられている。電子線は試料内の電子雲と原

子核の両方と相互作用するため、原子の位置のみならず、電子密度分布も精密に決定することができる[6–8]。その一方で、電子線を用いたイメージングの時間分解能は、超短パルス発生 of 困難さ(3.1 節参照)、レーザー光との速度不整合(4.4 節参照)の 2 つの要因によって、数百フェムト秒程度で制限されていた。

筆者らは、電子線イメージングの時間分解能を高めるため、2 つのアプローチを取った。1 つ目は、レーザー光を超高速の時間ゲートとして用いる手法であり、気相試料などの体積が大きく速度不整合が重要な場合に極めて有効である[9–11]。この手法の詳細に関しては、解説論文[12]を参照されたい。2 つ目のアプローチが光電場を用いた電子パルスの時間圧縮である[13–15]。筆者らは、高速で振動する光電場によって電子線を時間的に圧縮することで、アト秒の時間幅を持つ電子パルスを発生した。このアプローチは、固体薄膜やナノ物質など、レーザー光との速度不整合による時間分解能の低下をフェムト秒未満に抑えることができる対象に対して有効である(第 7 節参照)。本稿では、このアト秒電子操作技術を解説する。

本解説は以下の節から構成される。第 2 節では、超短電子パルスの性質を超短レーザーパルスと

比較しながら解説する。第 3 節では、アト秒電子パルス圧縮の原理とシミュレーション結果を説明する。第 4 節では、アト秒電子パルス発生の実験に実際に利用された薄膜を用いた手法の原理を解説する。レーザー光による電子線ストリーク法の原理も解説する。第 5 節では、ピコ秒レーザーパルスを用いたアト秒電子パルス列の発生実験、第 6 節では、1 サイクル中赤外光を用いた孤立アト秒ピークを有する電子線の発生実験を報告する。最後に第 7 節でまとめと今後の展望を述べる。

2. 超短電子パルスの性質

パルスレーザーと比較すると、パルス電子線は、基礎研究レベルでもあまり普及していない。そこで、本節では、電子パルスの基本的な特性をレーザーパルスと比較しながら概説する。

2.1 空間電荷効果と単一電子パルス

超短レーザーパルスには、通常、多くの光子が含まれる。一方で、電子は電荷を有するため、1つのパルスに多数の電子が存在すると、クーロン反発によって、エネルギー広がりがあり、パルスの時間幅も伸びる。この効果は、空間電荷効果と呼ばれ、アト秒やフェムト秒などパルスの時間幅が極めて短い場合に特に重要となる。空間電荷効果を避ける簡単な方法は、1つのパルスに含まれる電子の平均数を1以下にまで減らすことである。この場合の電子パルスを、単一電子パルスと呼ぶ。これまで報告されているアト秒電子パルス[13–21]は、ほぼ全ての場合、単一電子パルスである。ここで平均数を用いて定義したのは、通常、1パルスに含まれる電子数はポアソン分布に従うためである。実験的には、単一の電子を検出できるマイクロチャンネルプレートや電子顕微鏡用のカメラ（例：蛍光スクリーンと冷却 CCD あるいは CMOS 素子の組み合わせ、最近では直接検出器）を用いて、検出効率やパルスの繰り返し数（以下参照）を考慮した信号強度から、単一電子パルスの発生が確認される。

しかし、粒子を1つ以下しか含まないパルスの時間幅はどう定義されるのか？通常、電子線を用いた観測は、電子1つだけでは行えず、複数の電子パルスが必要となる。そこで、図 1(a)

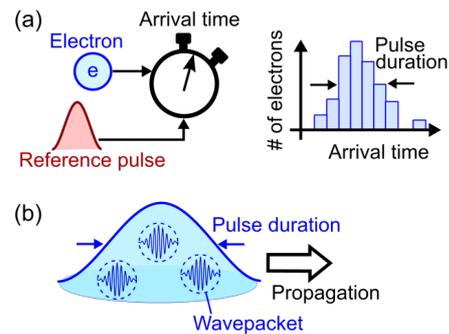


図 1. 単一電子パルス. (a)単一電子パルスの時間幅の定義. ある参照パルスに対する到着時間差の統計幅をパルス幅と定義する. (b)電子パルスと波束. 波束の非コヒーレントな集合によってパルス電子線が形成される. 時間幅およびビーム径は統計分布によって定義される.

に示したように、ある位置（通常は試料）において参照パルス（通常はレーザーパルス）と電子との到着時間差を、多数のパルスで繰り返し測定する。そして、到着時間差の統計的な分布幅をパルス幅と定義する。したがって、本解説でのアト秒電子パルスとは、レーザーパルスを基準として測定された到着時間がアト秒の分布幅しかない電子パルスを指す。

2.2 分散関係と伝搬に伴うパルス幅の変化

光子とのもう一つの大きな違いは、質量を有する点である。エネルギーと波数の関係性、つまり分散関係は、以下の式で与えられる。

$$E_p = \hbar c k_p \quad (1)$$

$$E_e = \hbar^2 k_e^2 / (2m_e) \quad (2)$$

ここで、 E_p 、 k_p はそれぞれ光子のエネルギーと真空中での波数、 E_e 、 k_e はそれぞれ電子の運動エネルギーと波数、 m_e は電子の静止質量である。簡単のため、非相対論的な速度の電子を仮定した。光子の真空中での位相速度（エネルギーを運動量で割ったもの）は、エネルギーに依らず c で一定であるのに対し、電子の位相速度は、エネルギーに依存する。つまり、真空も電子にとっては分散物質である。

時間とエネルギーの不確定性関係（フーリエ変換の関係）から、超短パルスは幅広いエネルギーと波数分布を有する。レーザー光の場合、真空中での位相速度はエネルギーに依らず一定のため、真空中での伝搬に伴うパルス形状の

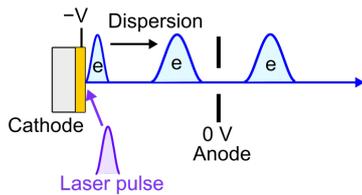


図 2. 光電陰極型電子銃. 加速電圧 $-V$ が印加された陰極へのレーザー照射によって, 電子パルスが発生する. 陽極 (0 V) までの加速中に, 分散によってパルス幅が伸長する.

変化は起こらない. その一方で, 電子はエネルギーに依存した位相速度を有するため, 真空中の伝搬によりパルスの時間形状が変化する. この特性により, 光電陰極型電子銃の最短パルス幅が制限される (3.1 節参照). また, アト秒電子パルス発生には, この特性が活用される (3.2 節参照).

2.3 コヒーレンス

本節の最後に, 超短パルス電子線のコヒーレンス (可干渉性) について述べる. 進行方向と垂直方向のコヒーレンス (空間コヒーレンス) は, 電子線ホログラフィー[2]や電子線回折[3, 4]などの応用に重要な物理量である. その値は, 電子線源の種類や使用されるビーム絞りなどで変わり, ナノメートルから電子ビーム径の数分の 1 程度まで様々な値を取る[22, 23]. 超短電子パルスの進行方向のコヒーレンス (時間コヒーレンス) については, まさに議論の最中であり, 数フェムト秒から数百フェムト秒と報告されている[24, 25].

現状の技術では, 完全にコヒーレントなパルス電子線を発生することは不可能である. したがって, 図 1(b)に図示するように, 電子パルスは, 波束の非コヒーレントな集合という描像が適当であると考えられている. 現在, 冷却原子[26, 27]や先鋭化された針[22, 23]を電子線源に用いることで, 高コヒーレンスの電子パルスを得る試みが行われている.

3. アト秒電子パルスの発生方法

3.1 光電陰極型電子銃の限界

超短電子パルスの発生には, 光電陰極型電子銃が最もよく用いられる. その機構を図 2 に示す.

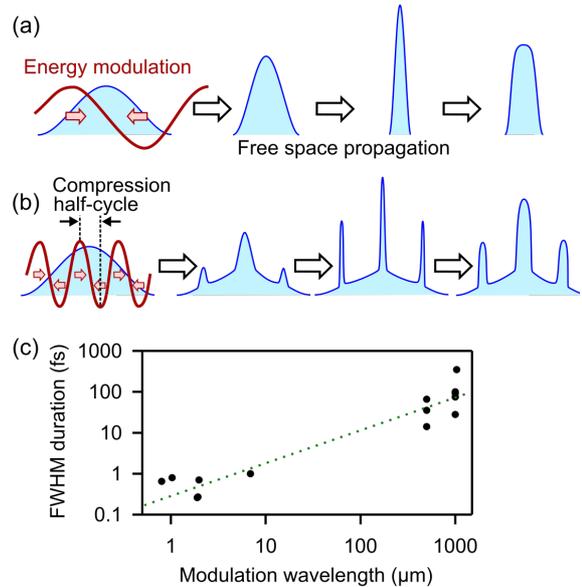


図 3. 電子線の時間圧縮. (a)周波数の低い電磁場による圧縮. (b)周波数の高い電磁場による圧縮. (c)圧縮後のパルス幅と変調電磁場の波長の関係. 長波長 (低い周期) ほど, 圧縮後のパルス幅が長くなる傾向にある (緑点線).

超短レーザーパルス (図中に紫色で示されたパルス) を金属や半導体などの陰極の表面に照射する. レーザー光の光子エネルギーが陰極物質の仕事関数より大きい場合, 光電効果によって電子が放出される. フェムト秒レーザー光を用いる場合は, 多光子過程やトンネルイオン化での放出も可能である. 放出された電子は, 直流あるいは交流電場によって, 所望のエネルギーまで加速される.

光電陰極型電子銃によって得られる電子パルスの時間幅は, レーザー光のパルス幅と放出電子のエネルギー幅によって決定される. 電子放出に用いるレーザー光の時間幅が短ければ短いほど, 放出される電子パルスの時間幅が短くなる. その一方で, パルス幅の短いレーザー光ほど, 幅広いスペクトルを持つため, 放出電子のエネルギー分布が広がる. 例えば, パルス幅 18 フェムト秒のレーザー光のスペクトル幅は 0.1 eV である. 運動エネルギー 0 eV と 0.1 eV で放出された電子がそれぞれ, 実用上の限界に近い $10\text{ kV/mm} = 10^7\text{ V/m}$ の静電場で加速された場合, $1\text{ }\mu\text{m}$ だけ先への到着時間に約 100 fs の差が出る. これは, 電子のパルス幅が加速中に 100 fs にまで広がることを意味する. より短いレーザーパルスを使うと, 電子線の

エネルギーとパルス幅がより広がる. 約 40 fs のレーザーパルスが最適で, その場合の加速後の電子パルスの時間幅は約 80 fs であることが知られている[28].

実際の電子線のエネルギー幅は, 上記のレーザーパルスのスペクトル幅の他に, レーザーの光子エネルギーと仕事関数の差や陰極表面の仕事関数の不均一性なども影響し, 実験で用いられているパルス電子線は, 通常 0.5 eV 以上のエネルギー幅を持つ. つまり, 上記の計算を応用すると, 電子のパルス幅は $\sqrt{5}$ 倍の 200 fs 以上となる. したがって, いくらパルス幅の短いレーザー光を使用しても, 光陰極型電子銃から直接得られる電子パルスは, 最短でも数百フェムト秒である.

3.2 電子パルスの時間圧縮

では, より短い時間幅の電子パルスを得るにはどうすれば良いであろうか? その方法の一つが交流電磁場を用いた時間圧縮である. 図 3(a)にその概念を示す. 光陰極型電子銃から得られた電子パルスに交流電場 (赤線) を印加し, パルスの前方に位置する電子を減速, パルスの後方に位置する電子を加速する (赤矢印参照). 真空は電子にとって分散媒質であるから, この加減速を受けた電子パルスは, 真空中の伝搬に伴って, 時間構造を変化させ, ある伝搬距離でパルス幅が圧縮される. 更なる伝搬により, パルス幅は伸長する. 似た効果は静磁場によっても達成されるが[29, 30], 交流電場を用いる利点は, 電子線のエネルギー幅を広げることができ, その結果, より短いパルス幅まで圧縮が可能である. マイクロ波[31–34]やテラヘルツ波[35–38]を用いて, 最短で 20 fs (半値全幅, 以下 FWHM と記す) の電子パルスがこれまでに得られている.

次に, 図 3(b)のように圧縮前の電子パルスの時間幅 (数百フェムト秒) よりも周期が短い, 高周期の電場を用いると, どのような電子パルスが得られるであろうか? この場合, 時間圧縮が入射電子パルスの中で何度も起き, 超短パルス列が得られる. 図 3(c)に示したように, 周期の短い電磁場 (つまり波長の短い光) で圧縮を行うほど, 短い時間幅が得られている[15] (理由については 3.5 節を参照).

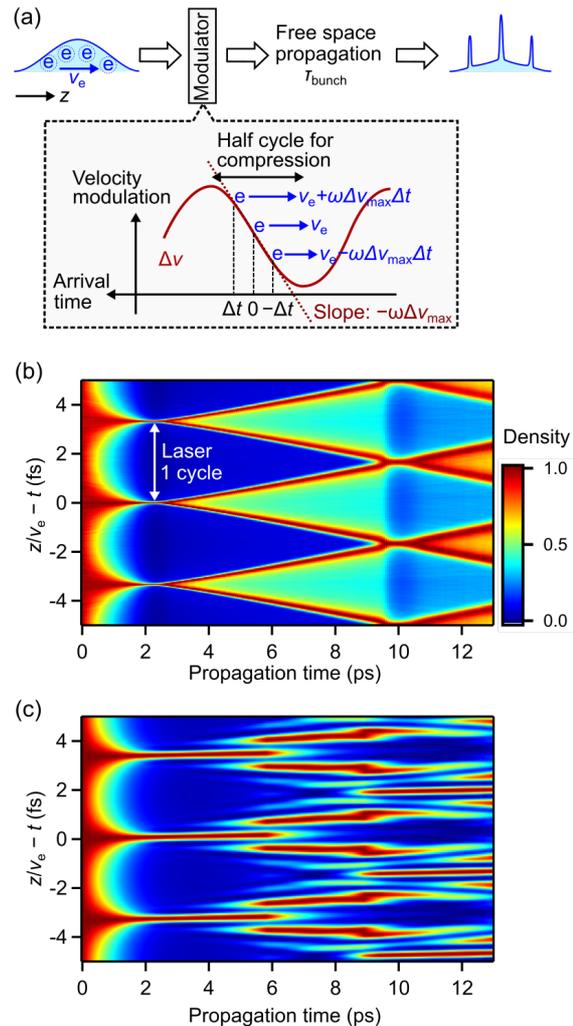


図 4. 電子線の時間圧縮シミュレーション. (a)1 次元モデル. 電子は変調器への到着時刻に応じた時間変化する速度変調を受ける. 先行する減速された電子に後続の加速された電子がある伝搬時間の後に追いつくと, 時間圧縮が起きる. (b)古典力学シミュレーション. (c)量子力学シミュレーション. 縦軸は, 電子と共に動く座標系における時間軸. 詳細を表示するため, 電子の密度は, それぞれの伝搬時間におけるピーク値で規格化されている. 実際は, 時間圧縮時のピーク強度が極めて高い.

3.3 時間圧縮 : 古典力学的描像

2.3 節で述べたように, 超短電子パルスは, 波束の非コヒーレントな集合体で良く記述される. 圧縮に用いる電磁場の周期が波束の時間幅よりも十分に長い場合, 電子を粒子として扱う, 古典力学的な描像が適当である. 一方で, 電磁場の周

期が波束の時間幅より短い同程度の場合、量子力学的な効果が無視できなくなる。以下ではまず古典力学に基づいた議論を行い、その後、量子力学的な効果を述べる。なお、本解説では簡単のため、相対論的な効果は無視する。

図 4(a)に示す 1 次元モデルを考える。電子は全て単一の速度 v_e で z 方向 (右方向) に運動している。この電子が角振動数 ω の電磁場を使用した変調器 (実例は 4.1 節参照) を通過すると、通過するタイミングに応じた速度変調、 $\Delta v = -\Delta v_{\max} \sin(\omega t)$ を受ける。負の符号は便宜上付している。ここで Δv_{\max} は速度変調の振幅である。この変調後に真空中を伝搬することで電子パルスの時間幅に圧縮が起こる。なお、図 4(a)に示すように、早いタイミングで変調器を通過した電子が減速され、遅いタイミングの電子が加速される半周期でのみ圧縮が起こり、他方の半周期は時間圧縮を誘起しない。したがって、時間圧縮は光電場 1 周期あたり 1 度だけ起こる。これは、高次高調波発生を用いて得られる、1 周期あたり 2 つのパルスから成るアト秒光パルス列と異なる点である。

時間圧縮が起こる条件は、速度変調がゼロ ($\Delta v = 0$) のタイミングで変調器を通過した電子に、時間 Δt 後に変調器を通過し、 $\Delta v = +\Delta v_{\max} \sin(\omega \Delta t)$ だけの加速を受けた電子が、伝搬時間 τ_{bunch} で追いつくことである。すなわち

$$v_e(\tau_{\text{bunch}} + \Delta t) = (v_e + \Delta v_{\max} \sin(\omega \Delta t)) \tau_{\text{bunch}} \quad (3)$$

ここで、速度変調の零交差付近に着目し、 $\Delta v_{\max} \sin(\omega \Delta t) \approx \Delta v_{\max} \omega \Delta t$ とすると (図 4(a) 赤点線参照)、

$$\tau_{\text{bunch}} = v_e / (\omega \Delta v_{\max}) \quad (4)$$

$$L_{\text{bunch}} = v_e^2 / (\omega \Delta v_{\max}) \quad (5)$$

が得られる。したがって、圧縮に要する伝搬時間は、電子の速さに比例し、変調の周波数と速度変調振幅には反比例する。例として、運動エネルギー 10 keV ($v_e = 5.8 \times 10^7$ m/s) の電子線に、波長 1 μm ($\omega = 1.9 \times 10^{15}$ Hz) で $\Delta v_{\max} = 4200$ m/s (5 eV のエネルギー変化に対応) の変調を加えると、伝搬時間 $\tau_{\text{bunch}} = 2$ ps, 伝搬距離 $L_{\text{bunch}} = 0.1$ mm となる。

図 4(b)に真空中での伝搬に伴う電子ビームの時間構造変化の 1 次元シミュレーション結果 [14]

を示す。条件は、上記と同様、パルス幅の十分長い 10 keV の電子線と波長 1 μm による 5 eV のエネルギー変調振幅を仮定している。なお、図の縦軸には電子の速度で移動する座標系 $z/v_e - t$ を用いており、ある伝搬時間 (横軸) における縦方向のプロファイルが電子線の時間構造を示している。上で見積もった通り、 $\tau_{\text{bunch}} = 2$ ps で時間圧縮が起きている。圧縮されたパルス間の時間間隔は、レーザー 1 周期の 3.4 fs である。伝搬時間が 2 ps を過ぎると、パルス幅が伸長するが、興味深いことに、10 ps の伝搬時間で、再圧縮が起こることが示唆されている。この古典モデルでは、電子パルスの時間圧縮の様子を簡便に計算することができるが、圧縮された電子線の時間幅やピーク高さは正しく評価できない。それは、次に議論する量子力学的な効果が含まれていないためである。

3.4 時間圧縮：量子力学的描像

次に、電子を波束と考えた場合の時間圧縮について議論する。まず、1 次元の電子波束を

$$\Psi(z, t) = \phi_0(z - v_e t) \exp(ik_e z - iE_e t/\hbar) \quad (6)$$

で与える。ここで、 $\phi_0(z - v_e t)$ は変調前の波束の包絡線関数であり、通常、波束の時間幅を与えるガウス関数を用いられる。ここで、 k_e と E_e は波束の中心波数とエネルギーである。いくつかの近似 ([39] 参照) を用いると、角振動数 ω による変調後の波動関数は、

$$\Psi(z, t) = \phi(z, t) \exp(ik_e z - iE_e t/\hbar), \quad (7)$$

ここで、

$$\phi(z, t) = \phi(z - v_e t) \exp[i\Delta E_{\max} \sin(\omega z/v_e - \omega t + \varphi_0) / (\hbar \omega)] \quad (8)$$

で与えられることが知られている [39]。 ΔE_{\max} はエネルギー変調の振幅、 φ_0 は位相を与える定数である。ここで、 ΔE_{\max} は入射電子線のエネルギー (E_e) に比べて十分小さく、 Δv_{\max} に比例すると仮定している、つまり、 Δv_{\max} の 2 次の項が無視され、 $\Delta E_{\max} \approx m_e v_e \Delta v_{\max}$ である。式 (8) は、波動関数の位相が、電子の内部座標 $z/v_e - t$ に沿って、角周波数 ω の変調を受けることを示している。つまり、電子を波束として考えた場合でも、電子は角周波数 ω のエネルギー・速度変調を受ける。

古典力学的な描像と同じく、速度変調後に波束が真空中を伝搬することで、波束密度の時間

構造(進行方向に対する確率密度)が変化する。この真空中の伝搬による波動関数の変化は、以下の方法によって容易に得られる。まず、式(7)のエネルギー変調後の波動関数を運動量空間にフーリエ変換する。そして、自由空間でのプロパゲーター $\exp(-iE_k\tau_{\text{prop}}/\hbar)$ を作用させ、実空間へ逆フーリエ変換を行う。ここで $E_k = \hbar^2 k^2 / (2m_e)$ は、電子の波数 k に依存したエネルギーである。

図 4(c)に光変調後の波束の密度が真空中の伝搬に伴って変化する様子のシミュレーション結果を示している。 $\phi_0(z - v_e t)$ として、パルス幅 100 fs のガウス関数を用い、その他のパラメータは図 4(b)の古典力学計算と同じものを用いている。図 4(b)と比較すると、圧縮が起こる伝搬時間 2 ps までの時間形状は酷似している。その一方で、古典力学計算では、電子のパルス幅が 2.5 ps を過ぎると急に増加する一方で、量子力学計算の結果では、短いパルス幅が一定の伝搬時間に渡って保持されることが分かる。また、量子力学計算の結果では、4 ps 以降の伝搬時間において、干渉に由来する複数のピークが現れている。しかしながら、このような量子力学的な効果を直接的に観測した実験は未だ報告されていない。その理由として、電子線の複雑な時間構造をアト秒の分解能で精密に測定する困難さが考えられる。

様々な条件におけるシミュレーションによって、圧縮によって得られる最短の電子パルス幅 Δt_{min} (FWHM) は

$$\Delta t_{\text{min}} \approx 2\hbar/\Delta E_{\text{max}}, \quad (9)$$

で与えられることが分かっている[14, 40]。すなわち、 $\Delta E_{\text{max}} = 1$ eV (エネルギー変化の全幅が 2 eV) で、 $\Delta t_{\text{min}} \approx 1$ fs である。最近のレーザー加速器の実証実験では、エネルギー 50 keV の電子線に対して、1 keV 以上のエネルギー変調が既に達成されている[20]。したがって、1 as あるいはそれ以下のzeptosecond域のパルスが、電子線の時間変調によって得られる可能性がある。zeptosecondの電子パルスは、原子核内ダイナミクス[41]の観測に応用できる可能性がある。

3.5 最短パルス幅の実験的制限

最後に、得られる最短パルス幅の技術的な制限について議論する。式(5)より、同じ伝搬距離 L_{bunch} で時間圧縮を起こす場合、 ω が小さいほど、

つまり電磁場の波長が長いほど、大きい Δv_{max} を取れるため、式(9)より最短のパルス幅が短くなることが予想される。しかし、図 3(c)に示したように、これまでの実験で得られた時間圧縮後のパルス幅は、この予測とは逆に、電磁場の波長が長いほど長くなる傾向がある。

これには、2つの技術的な制限が関連している。まず、長波長ほど高強度の電場を発生させるのが困難である。したがって、上で仮定した L_{bunch} が同じという条件が成立しない。 L_{bunch} が長くなると、2つ目の技術的な制限、加速用電源の安定性が問題となる。電子顕微鏡等で使用される高安定な電源は 10 ppm 程度の安定性を有する。つまり、10 keV の電子線の場合、その安定性は 0.1 eV である。1 mm の距離を 10.0000 keV の電子と 10.0001 keV の電子が伝搬した場合、その伝搬時間が約 80 as も異なる。2.1 節で述べたように、パルス当たりの電子数が小さい電子パルスの時間幅は、到着時間の統計分布幅で定義される。よって、加速電圧の揺らぎにより、電子の統計的なパルス幅が長くなる。THz 波を用いた時間圧縮には普通数十センチメートルの伝搬距離が必要とされるため、もはやアト秒のパルス幅は得られない。この効果に加えて、3.1 節で述べた電子線のエネルギー幅(典型的には 0.5 eV)も重要となるが、その議論のためには、エネルギーの平均値と分布幅が変調器にたどり着く時間と共にごう変化するか(運動エネルギーと時間がどの程度相関しているか)という情報が必要なため、本解説では割愛する。結論として、極めて短い時間幅の電子パルスを得るには、電子線の運動エネルギーとその安定性および分布幅、そして、時間圧縮に利用する光の波長と強度を総合的に考慮する必要がある。

4. 薄膜を用いた光による自由電子の操作

4.1 エネルギー・運動量保存則

交流電磁場による加減速によって、電子線の時間構造が変化することを第 3 節で解説した。しかし、真空中で電子線にレーザー光を照射しても、電子は加減速されない。これは、自由電子が光子を放出・吸収する過程で、エネルギーと運動量が同時に保存されないためであり、加速器の研究分野では、Lawson-Woodward theorem として知られ

ている。式(1)と(2)から、自由電子が1光子分だけ運動エネルギーを増加させるのに必要な波数変化量はおよそ ω/v_e であるが、光子の波数は ω/c であり、 $v_e < c$ から、常に運動量保存則が成立しない。したがって、エネルギーと運動量保存則が同時に成り立つためには、第3体が必要となる。

自由電子がレーザー場とエネルギーの授受をしないことは、古典力学からも説明できる。電子の運動量変化はローレンツ力の時間積分、

$$\Delta \mathbf{p} = -e \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{E}(\mathbf{r}(t), t) dt - ev_e \times \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{B}(\mathbf{r}(t), t) dt, \quad (10)$$

で与えられる。ここで、 $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$, $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ はそれぞれレーザー電場と磁場であり、 e は素電荷である。レーザー光の電磁場が交流であることから、式(10)における、 \mathbf{E} , \mathbf{B} の時間積分は共にゼロである。したがって、運動量は変化しない。図5(c)中の黒点線も参照されたい。

第3体が、(1)電子と運動量のやり取りをする、あるいは、(2)光子の運動量を変化させることで、エネルギーと運動量の保存則が同時に満たされる。(1)の代表例がレーザーアシステッド電子散乱[9-12, 42, 43]である。散乱を通して、電子は余剰(不足)運動量を原子標的に与える(受けとる)。Above threshold ionization[44]や、アト秒レーザーパルス測定に用いられる光電子ストリーク[45, 46]も同じ原理である。(2)の代表例は、photon-induced near-field electron microscopyに見られるナノ物質である[47]。光がナノ物質に照射されると、粒子の周りに近接場が発生する。近接場の周波数は入射光と同じ ω であるが、光子の運動量は物質の誘電率等に依存した値となる。

最近では、第3体を工夫することで、100光子程度のエネルギーの授受を伴う、光子と自由電子の間の強結合が注目されている。ナノ粒子の周りに励起されたwhispering-gallery波[48]やプリズムの表面の近接場[49]、ナノ加工されたシリコン[21]において近接場光の位相速度と電子線の群速度を一致させることで、つまり、電子が光電場に波乗りしている状態を作ること、大きなエネルギー変化が観測されている。光によるエネルギー変化は、コヒーレントな過程であり、単色の電子線から光子

エネルギーで離散化された重ね合わせ状態を作ることができる。したがって、電子線の光による制御は、電子線を用いた量子光学への応用も期待されている。

4.2 薄膜を用いた電子線の光変調

時間構造変調を行う上で、電子ビーム径全体に渡って一様な加減速が誘起されることが望ましい。その一方で、変調された時間構造の測定やポンプ・プローブ測定への応用を考慮すると、変調用の第3体上に強く電子ビームを集光することは得策ではない。電子線をコリメートした場合、その典型的なビーム径は数ミクロンから数百ミクロンである。この電子ビーム径よりも十分大きな第3体上で、近接場ではなく平面波に近い光電磁場との相互作用が起こるのが理想的である。そこで、筆者らは、電子線が透過できるほど薄い、ナノメートル厚の薄膜を第3体として使用した。図5(a)に薄膜を利用した電子線の時間・エネルギー変調の概要図を示す。ミリメートルの大きさで、厚み10-100 nm程度の窒化ケイ素や炭素の薄膜が、透過型電子顕微鏡用の試料ホルダーとして購入可能である。レーザー光は、電子ビーム径より十分大きな径に集光される。図5(b)に厚さ60 nmのシリコン薄膜まわりの電場のスナップショットを示す。なお、波長1030 nmの平面波が左下から右上方向に入射した場合を仮定している。表面反射により、右側と左側の電場振幅が異なり、また、左側では、入射波と反射波の干渉が見られる。さらに、薄膜の屈折率によって、透過波の位相が入射波に比べてわずかに遅れる。この反射と位相遅れによって、薄膜を挟んで振幅と位相が異なる電磁場が生成される。電子線は、このレーザー照射下の薄膜を通過する。薄膜を通過するのに要する時間は極めて短く、例えば10 keVの電子は10 nmの薄膜を0.2 fsで通過する。したがって、光の周期よりも十分短い時間スケールで、電子は突然、異なる電磁場へと飛び入る。その結果、図5(c)に赤線で示したように、ローレンツ力の時間積分がゼロではなくなる。

図5(d)の左図に70 keV電子が、波長1030 nmの光の照射下で60 nmシリコン薄膜を通過する際に得られる最大エネルギーの古典シミュレーション結果を示す。図の軸に用いられている、レーザ

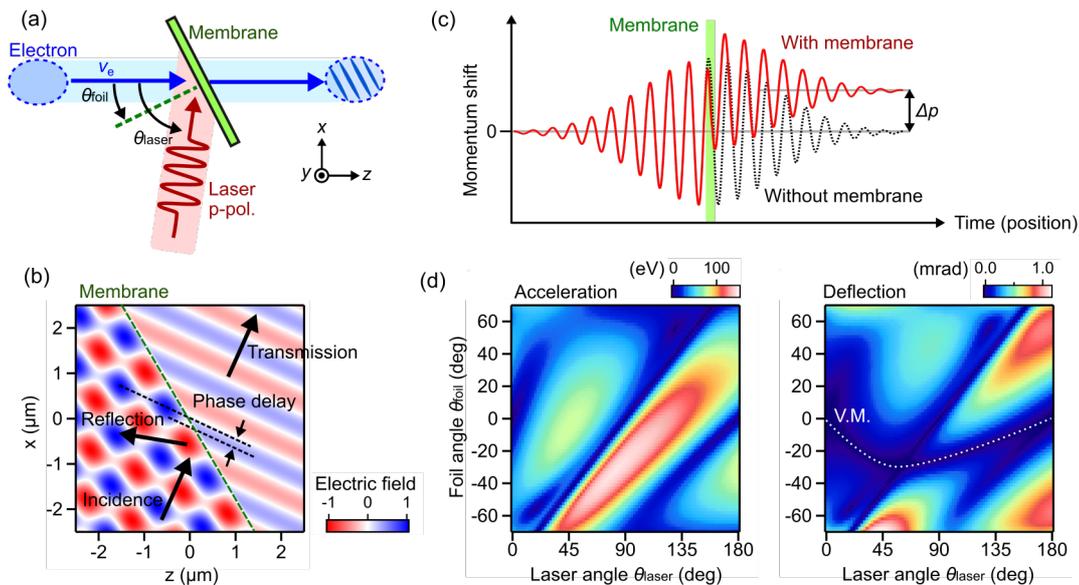


図 5. 薄膜を用いた電子線の光周波数制御. (a)薄膜による制御の概略図. レーザー照射下の薄膜を瞬時的に電子が通り抜け、エネルギー・運動量を獲得する. (b)薄膜周りの電場のスナップショット. 厚さ 60 nm のケイ素薄膜, 波長 1 μm の入射電磁場(平面波)に対する p 偏光成分を示している. 表面反射と屈折率による位相遅れで, 薄膜の両側に異なる電場が生じている. (c)薄膜による運動量変化の古典力学的説明. 薄膜が存在せずに, レーザー電磁場と相互作用した電子は, 運動量を獲得しない(黒点線). レーザー照射下の薄膜を瞬時的に通り抜け, 異なる電磁場に飛び入ることで, 電子は運動量を獲得できる(赤線). (d)波長 1 μm , 電場振幅 1 V/nm (3.3 T の磁場振幅)のレーザー電磁場が照射された厚さ 60 nm のケイ素薄膜を 70 keV 電子が通り抜けた際に獲得するエネルギーの振幅(左図)と偏向量の振幅(右図).

一と薄膜の角度は図 5(a)で定義されている. この図から, 薄膜の損傷閾値[50]に近い 1 V/nm(強度 1×10^{11} W/cm²)のレーザー電場振幅では, わずかなナノメートル厚の薄膜で, 100 eV を超えるエネルギー変調を誘起できることが分かる. 式(9)より, $\Delta t_{\min} \approx 10$ as となるため, アト秒時間圧縮が十分可能であることを示している. なお, 金属や半金属の薄膜の場合, エネルギー変化量は, 波長に比例して大きくなる[14]. その一方で, 誘電体薄膜の場合は, 単純な波長依存性は見られない[14].

薄膜を第 3 体として使用した場合の, エネルギーと運動量保存則は, 光子の運動量(波数)分布によって理解できる[24]. 実空間と運動量空間の波動関数がフーリエ変換の関係にあることから, 電磁場の空間分布が光子の運動量分布を決定する. 薄膜が存在しない場合の平面波は, 空間的に一様であり, 単一の運動量を持つ. 一方で, 薄膜の存在下では, 波長以下の空間スケールで電磁場が変化する. したがって, 幅広

い運動量分布が生まれ, 運動量保存則を満たす光子が存在する[24].

なお, 薄膜を使用した手法の弱みは, 散乱や吸収による電子線流束(フラックス)の減少である. 電子線の弾性散乱断面積は原子番号が大きい標的原子ほど増加するため, 軽元素で構成された薄膜が好ましい.

4.3 光による電子線ストリーク

レーザー照射下の薄膜を通過する電子は, 加減速, つまり進行方向の運動量変化のみならず, 進行方向と垂直方向の運動量を獲得する. エネルギー変調量が光周波数で振動し, 時間圧縮を誘起するのと同様に, 垂直方向の運動量変調量とその方向も光周波数で振動し, 電子線をストリークする. この光周波数ストリークは, 薄膜への到着時間の情報を検出器上での位置の情報に変換するため, 電子線の時間構造の測定に用いられる(第 5 節参照).

図 5(d)右図に左図と同条件で計算した電子のストリーク振幅を示す. 1 V/nm の電場振幅で, お

およそ 1 mrad (0.06 度) のストリーク量が得られる。式(10)より、エネルギー変調 ($\Delta p \parallel v_e$) には、磁場 (B) は寄与しないが、ストリーク ($\Delta p \perp v_e$) には、磁場が大きく影響し、重要な 2 点の特徴を生む。まず、4.4 節で述べる電子とレーザー光の速度整合が満たされる条件 (図 5(d) 中, V.M. の破線, V.M. は速度不整合 velocity mismatch を意味する) では、ストリーク振幅がゼロになる。2 点目には、 s 偏光、つまり、図 5(a) の紙面と垂直の偏光方向の光電磁場は、ストリークを起こさない。したがって、円偏光のように、異なる偏光成分を持っていても、ストリークは図 5(a) の xz 平面内でしか起こらない。この 2 点は共に、電場による効果と磁場による効果が相殺されるためである。詳細は、[14] を参照されたい。

4.4 速度不整合とパルス傾斜

電子ビームは有限のビーム径を有する。そして、電子と光の速度の違いにより、薄膜上の各位置において、電子とレーザー光の到着時間に差が生まれる。この効果を速度不整合と呼ぶ (注: 試料の体積が大きい場合には、電子ビーム径が無限小でも速度不整合が生じる)。この速度不整合による到着時間差は、図 5(a) で定義された角度を用いると、電子ビーム径の単位長さ当たり、

$$\frac{c_{V.M.}}{v_e} = \frac{\tan(\theta_{foil})}{v_e} - \frac{\sin(\theta_{laser} - \theta_{foil})}{c \cos(\theta_{foil})}, \quad (11)$$

で与えられ、おおよそ 10 fs/ μm のオーダーである。しかしながら、

$$\frac{\sin(\theta_{foil})}{\sin(\theta_{laser} - \theta_{foil})} = \frac{v_e}{c}, \quad (12)$$

を満たす θ_{foil} , θ_{laser} を選ぶことで、薄膜上のどの位置においても、電子とレーザー光の到着時間が同じとなる。この速度整合条件は、レーザーポンプ・電子プローブ法による超高速現象の観測において重要となる。また、4.3 節で述べたように、速度整合が満たされると、電場と磁場による効果の相殺でストリーク量がゼロになる。したがって、時間圧縮のみを得たい場合は、この速度整合を満たす角度を選ぶ必要がある。

速度整合が満たされない場合、電子とレーザー光の到着時間が、薄膜上の位置によって異なる。時間圧縮のタイミングは、薄膜上でのレーザー電場に依存するので、時間圧縮された電子線のパルスフロントが傾斜する [14, 51]。図 5(a) の配置では、電子ビームの下側ではレーザーの到着時間が早く、上側では遅いため、図に示すようなパルスフロントが形成される。コリメートされた電子線の場合、 x 軸を基準とした時計回りの傾斜角 (β_{tilt}) は

$$\beta_{\text{tilt}} = \arctan(c_{V.M.} v_e), \quad (13)$$

で与えられる [14]。パルスフロントが傾斜しても、電子は z 方向に伝搬することに留意されたい。レーザーパルスをポンプ、時間圧縮された電子線をプローブとしたポンプ・プローブ実験では、このパルスフロント傾斜を考慮に入れて実験系を設計する必要がある。最も単純には、測定試料と時間圧縮用の薄膜を並行に配置し、2 つの並行なレーザー光をそれぞれに照射すれば、速度不整合が相殺し、時間分解能の低下は起きない (第 5 節参照)。つまり、光による時間圧縮を使用することで、速度整合条件を満たさずとも、アト秒時間分解能の実験が実現できる。

5. 実験 1. アト秒電子パルス列の発生と検出

本節では、ピコ秒レーザーパルスを用いたアト秒電子パルス列の発生実験を報告する。

5.1 実験装置概略

図 6(a) に実験装置の概略を示す。波長 1030 nm、パルス幅 1 ps のレーザー出力を 3 つに分け、電子パルスの発生、時間圧縮、そして、ストリーク測定に用いる。電子パルス発生には、1030 nm の 2 倍波、つまり 515 nm の光を金蒸着されたガラスの裏面から集光する。金薄膜には -70 kV の直流電圧が印加されている。2 光子過程によって金表面から放出された光電子は、静電場によって、70 keV ($v_e = 0.5c$ ドブロイ波長 4.5 pm) まで加速される。2 光子過程を用いることで、1 光子過程での光電子放出に必要な 4 倍波発生の手間を省いている。電子パルスの時間幅は、約 1 ps である。磁場レンズによ

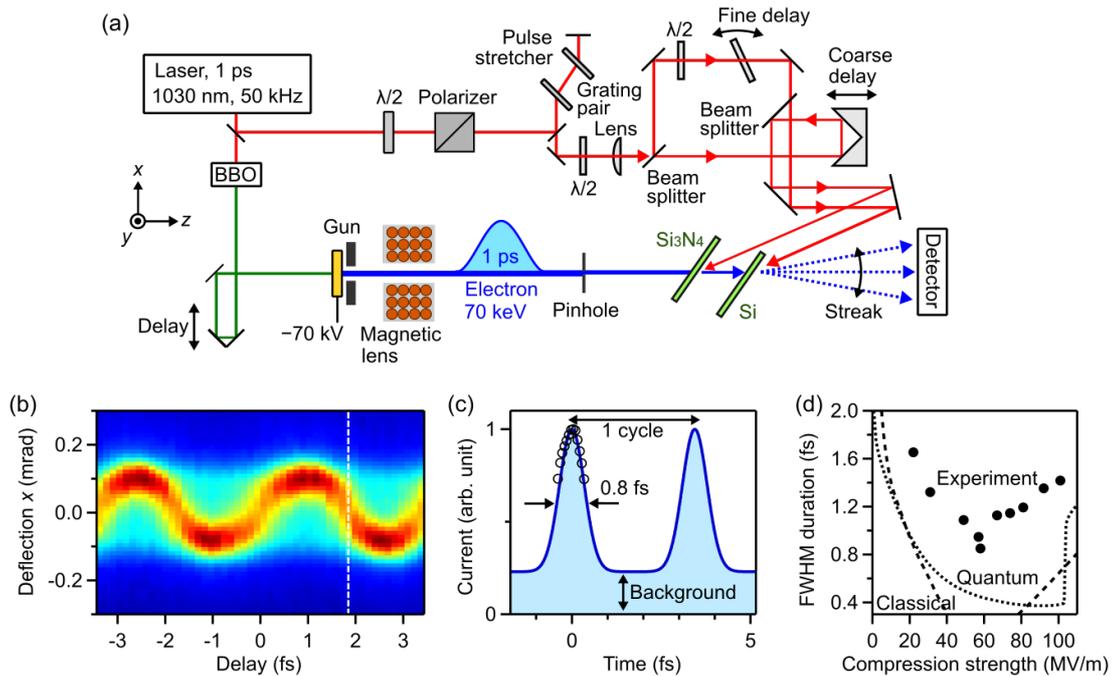


図 6. アト秒電子パルス列の発生実験. (a)実験概略. 詳細は本文参照. (b)アト秒電子ストリーク信号. (c)電子パルスの時間形状. 実線はフィッティングの結果. 丸印は信号(b)の直接解析(本文参照). (d)圧縮電場の振幅と得られた電子パルスの時間幅. 丸印が実験値. 破線が古典シミュレーションの結果, 点線が量子力学モデルに基づくシミュレーションの結果(第3節参照).

てコリメートされた電子線は、直径 $150 \mu\text{m}$ のピンホールによってビームの中心だけ切り出された後、時間圧縮実験に用いられる。パルス当たりの平均電子数はおおよそ1である。

パルス幅 1 ps の電子線を一樣に時間圧縮するために、レーザーパルスは、 1.7 ps の時間幅（対応する電場の包絡線の FWHM 幅は、およそ $\sqrt{2} \times 1.7 \text{ ps} = 2.4 \text{ ps}$ ）まで伸長してから利用される。また、電子ビーム径に渡って一樣な圧縮を行うために、レーザーの集光点を薄膜から数ミリメートルずらし、レーザービーム径を大きくすると共に、Gouy 位相を代表とする focal phase[52]（搬送波包絡線位相の空間的な変化）の影響を除いている。約 10^7 V/m （強度が $10^7 - 10^8 \text{ W/cm}^2$ ）の電場振幅のレーザー光が厚さ 50 nm の窒化ケイ素薄膜に照射される。この薄膜を通過する電子線は、レーザー電場の周期で加減速を受ける。ストリークも起こってはいるものの、時間変調に用いる光強度では、観測できないほど小さい。速度変調を受けた電子線は、その後の真空中の伝搬でその時間構造を変化させる（第3節参照）。この電子パルスの時間

幅を計測するため、 4 mm 下流に厚さ 60 nm のケイ素薄膜を設置し、変調用光の10倍前後の $2 \times 10^8 \text{ V/m}$ の電場振幅（強度 $5 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ ）のレーザー光を照射する。このストリーク用光と時間変調用光の間の遅延時間（あるいは相対位相）はアト秒の精度で制御される。この薄膜では、十分に観測できる振幅で光周期ストリークが起き、薄膜への到着時間によって電子は、検出器上の異なる位置で検出される。検出器には、電子顕微鏡用のカメラ（TVIPS GmbH, 1 ピクセル $15.6 \mu\text{m}$ ）を用いた。

4.4 節で述べたように、2つの薄膜および2つのレーザー光を並行に配置することで、速度不整合の効果を相殺している。時間圧縮およびパルス幅測定に用いる2つのレーザー場の相対位相は、干渉計によって制御されており、アト秒の精度で同期している。式(5)より、 $L_{\text{bunch}} = 4 \text{ mm}$ の距離で時間圧縮を起こすためには、 $\Delta E_{\text{max}} = 3 \text{ eV}$ が必要となる。式(9)より、パルス幅の下限は約 400 as である。

レーザー光（繰り返し 50 kHz ）の平均エネルギーは、時間変調用薄膜、ストリーク用薄膜上

それぞれ 10 mW, 150 mW 前後である。本研究で用いた窒化ケイ素およびケイ素薄膜は波長 1 μm の光に対しては透明なため、光吸収による顕著な熱的な効果（膨張など）は観測されなかった。その一方で、複数の要因により、変調-ストリーク間の遅延時間や検出器上での電子ビームの位置が絶えずゆっくりと変動する [13, 14]。そこで、1 回の測定（典型的には、数秒の露光時間×遅延時間 30 ステップ）を数分で完了させる。必要に応じて、測定を 10 回程度繰り返し、変動の効果を補償した後、結果を平均する。なお、エネルギー変調量、ストリーク量はともに、レーザー光の強度ではなく電場振幅に比例するので、レーザー光強度の安定性はあまり重要ではない。詳しくは、[14]参照。

5.2 実験結果

図 6(b)に観測された電子線のストリーク信号を示す。4.3 節で述べたように、y 方向へはストリークが起きないので、信号は、y 方向に積分している。0.1 mrad を超えるストリーク信号が観測され、最大のストリーク速度は、0.2 mrad/fs (=17 pixel/fs) である。ストリークが無い場合の電子線の検出器上でのサイズは約 5 px (FWHM) であるため、5/17~0.3 fs のパルス幅まで十分に測定できる分解能が得られている。図 6(b)の横軸は、ストリーク用レーザー光の、時間圧縮用レーザー光に対する遅延時間である。観測された信号は光周期 3.4 fs で周期的であった。これは、3.4 fs の時間間隔のパルス列が生成されたことを示す。

パルス幅の解析には、信号の直接的な解析と、より正確なフィッティング解析の両方を用いる。直接的な解析には、小さいストリーク角度に検出された信号を用いる。ストリーク量は光周期で振動し、小さい角度に現れる信号は、振動におけるゼロ交差付近に由来する。したがって、それらの信号については、ストリーク角度が時間に比例していると近似できる。具体的には、遅延時間が 1.7 fs における角度方向のプロファイル（図 6(b)白破線）がパルスの時間形状を与える（注：遅延時間 0, -1.7 fs でのプロファイルでも同じ）。図 6(c)の丸印でその結果を示している。この解析方法は、直接的に電子パ

ルスの時間構造を与えるが、光電磁場が直線的に時間変化する 1/4 周期程度の情報しか与えない。そこで、フィッティングを用いた解析も行う。フィッティングでは、パルス列を構成するピークがガウス型であると仮定し、圧縮が起こらない半周期に由来するバックグラウンドも考慮する。ピークの高さ、幅、そして、バックグラウンドの強度をパラメータとして、図 6(b)のストリーク信号全体に対して最小二乗フィッティングを行う。図 6(c)に得られたパルス構造を青実線で示す。パルス幅は 350 as（二乗平均平方根, rms）及び、820 as (FWHM) となった（注：加速器の分野では、rms が用いられることが多い）。バックグラウンドは、時間積分すると全電子の約半数が含まれる。これは、半周期でしか時間圧縮が起こらないという事実と整合する。

図 6(d)の丸印で時間圧縮用レーザーの強度を変化させた際の電子パルス幅を示す。変调用光の電場振幅が 60 MV/m で上記の最短パルス幅を得た。60 MV/m より低い振幅では、ストリーク用薄膜を通過した後の伝搬中に時間圧縮が起きる。逆に、60 MV/m より高い振幅では、薄膜に到着する前に時間圧縮が起こる。いずれの場合も、ストリーク用薄膜上でのパルス幅が広がる。

比較のために、図中破線と点線で第 3 節の古典論、量子論に基づくシミュレーション結果をそれぞれ示した。どちらも定性的には、観測されたパルス幅の変調電場振幅に対する変化を再現している。実験結果との定量的な差は、装置の不安定性などの実験の不完全性に由来し（詳細は[14]参照）、装置の改良によって更に短いパルス幅が得られる可能性を示している。また、本研究では、電子パルスの時間波形としてガウス関数を仮定して解析を行ったため、古典力学、量子力学どちらの描像の結果により近いかを議論するのは困難である。将来、より精密なストリーク測定を行うことで、アト秒時間圧縮における電子線の量子性に由来する効果の実験的な検証が可能になると期待される。

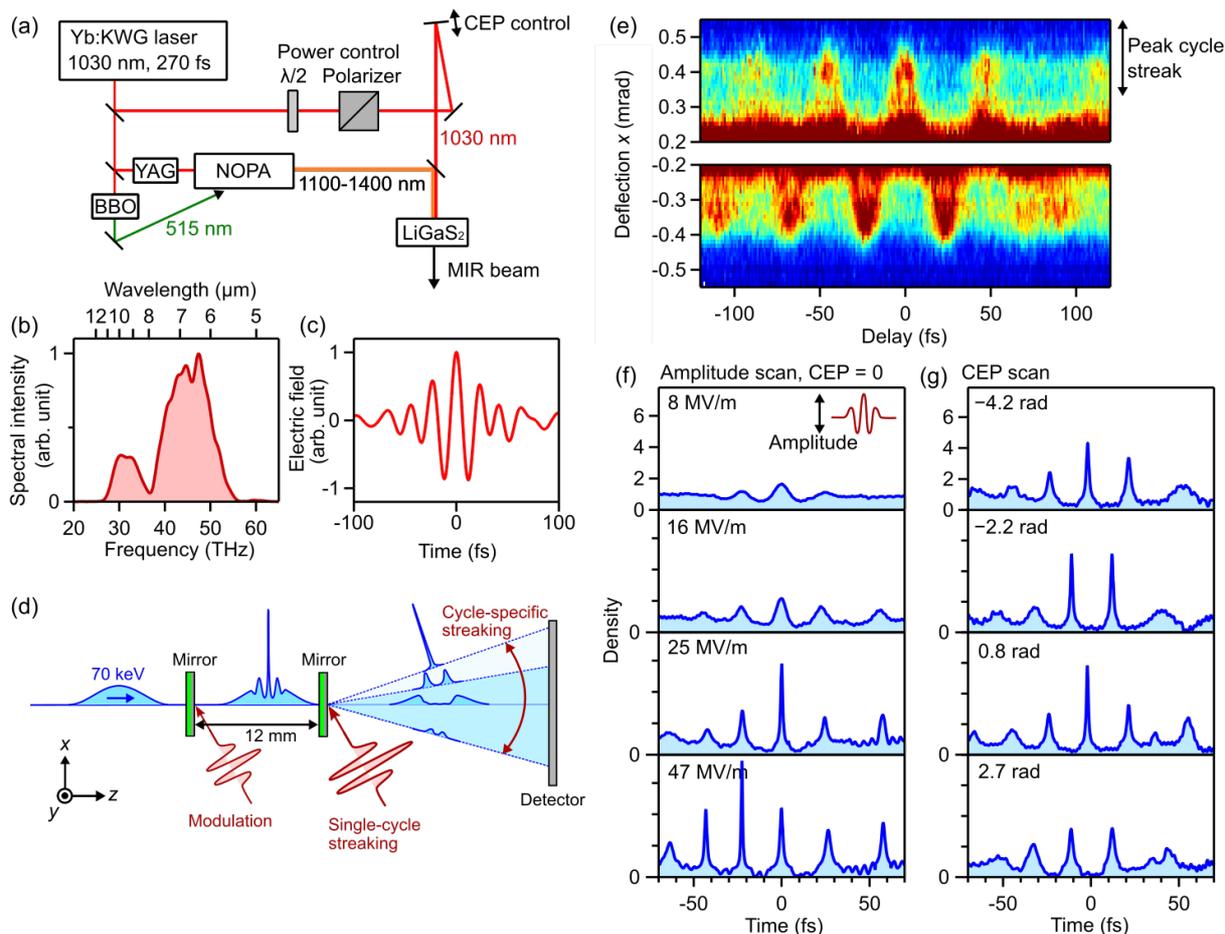


図 7. シングルサイクルパルスによる電子線アト秒制御. (a)中赤外光源の概略. NOPA は非同軸光パラメトリック増幅を表す. (b)中赤外光のスペクトル. (c)中赤外光の電場波形. (d)シングルサイクル中赤外光を用いた電子線の時間変調とストリーク観測. (e)観測されたストリーク信号. (f)電子線の時間構造の変調振幅依存性. 図中の数字は電場のピーク振幅を表す. (g)電子線時間構造の搬送波包絡線位相依存性. レーザーの強度は(f)中の 25 MV/m のものと同一. 図中の数字は搬送波包絡線位相 (位相の絶対値の誤差は ± 0.5 rad) を表す.

6. 実験 2. 孤立アト秒電子パルスの発生と検出

本節では、パルス幅がわずか1周期程度しかないレーザー光を利用した、孤立したアト秒ピークを有する電子線の発生を報告する。第5節のパルス列のような周期構造を持たない時間形状を観測するために、1サイクル光による電子線ストリーク技術も導入する。

6.1 シングルサイクル中赤外光源

レーザー技術の進展により、紫外からテラヘルツまでの幅広い波長領域において、時間幅が中心周波数の1周期程度かそれ以下のレーザーパルスを発生することが可能となっている。

そのような超短レーザーパルスで電子線の時間構造を変調すると、電子パルスの包絡線の中で主な時間圧縮が1回しか起こらないため、孤立したアト秒ピークを持つ電子線が得られることが期待される。第3節で述べたように、短いパルス幅まで電子パルスを圧縮するためには、レーザー光の周波数が高い(波長が短い)方が有利である。その一方で、周波数が低い(波長が長い)ほど、圧縮後の1つのピークに含まれる電子の割合が多くなる。図3(c)の緑線に示す傾向から、アト秒の時間幅を得られる最長の波長は、 $10\ \mu\text{m}$ 程度であることが推測される。そこで、筆者らは、中心波長 $7\ \mu\text{m}$ の超短パルス光

源を開発し[53], 電子線の制御に用いた。

図 7(a)に光源の光学系を示す。波長 $1.0 \mu\text{m}$, パルス幅 270 fs のレーザー光が中赤外光発生に用いられる。まず, YAG 結晶において白色光を発生させ, $1.0 \mu\text{m}$ 光の 2 倍波 (515 nm) を用いた非同軸光パラメトリック増幅 (図中 NOPA) で, $1.1 \mu\text{m}$ から $1.4 \mu\text{m}$ 域を増幅した。その後, $1.0 \mu\text{m}$ 光との差周波を LiGaS₂ 結晶にて発生させることで, 中心波長 $7 \mu\text{m}$ (1 周期 23 fs) の広帯域光を発生させた。図 7(b)にスペクトルを示す。1 オクターブを超える $5 \mu\text{m}$ から $11.5 \mu\text{m}$ までの幅広いスペクトルが得られた。スペクトルに, $6.5 \mu\text{m}$ と $10 \mu\text{m}$ を中心とする 2 つピークが存在するのは, LiGaS₂ 結晶における差周波発生時の位相整合条件に由来する[53]。図 7(c)に電気光学サンプリングを用いて測定された電場形状を示す。パルス幅 (FWHM) は 36 fs で, 中心周波数の 1.6 周期に対応する。

超短パルスレーザー光の電場波形の形状を決定する重要な量として, 搬送波包絡線位相 (carrier-envelope phase, 以下 CEP) がある。例えば, CEP = 0 は, パルスの包絡線の中心と搬送波 (レーザー電場) のピークのタイミングが一致している, cosine 型の波形に対応する。また, CEP = $-\pi/2$ は sine 型の波形, CEP = $\pi/2$ は minus-sine 型の波形, CEP = $\pm\pi$ は minus-cosine 型の波形を与える。CEP が固定されていないと, 電場波形がショット毎に変わる。したがって, 光変調された電子の時間形状もショット毎に異なってしまう。

しかしながら, CEP が固定されている高強度レーザーはそれほど普及しておらず, ここで用いる $1.0 \mu\text{m}$ のレーザーでも, CEP は固定されていない。本研究では, $1.0 \mu\text{m}$ 光と, それと同じ CEP を有する $1.1 \mu\text{m}$ – $1.4 \mu\text{m}$ 光との間で差周波を取ることで, CEP が固定された中赤外光を発生させた。 $1.1 \mu\text{m}$ – $1.4 \mu\text{m}$ 光が $1.0 \mu\text{m}$ 光と同じ CEP を有するのは, 白色光発生および光パラメトリック増幅過程におけるシグナル光において, CEP が保存されるためである[54]。本研究の中赤外光源のショット CEP 安定性は, 85 mrad (rms, $2\pi \text{ rad}$ の約 1%) である[53]。さらに, 中赤外光の CEP は, 差周波発生

における 2 つのパルス間の遅延時間を変えることで制御できる。 $1.0 \mu\text{m}$ 光をその 1 周期 (3.4 fs) だけ遅延させると, 2π の位相変化が得られる[55]。

6.2 孤立アト秒ピーク

図 7(d)に実験の概略を示す。6.1 節の光源から発生された中赤外光を 2 つに分け, 運動エネルギー 70 keV , パルス幅 500 fs の電子線の時間変調とストリーク検出に用いた。広い波長帯域において一様な電子線との相互作用を起こすため, 第 3 体としての薄膜には, 10 nm の窒化シリコン膜に 10 nm のアルミニウムを蒸着したミラーを用いた。アルミニウム表面の酸化の影響は不明であるが, 5 nm 以上の厚みでは光学的特性はほぼ同一であり[56], 本研究の 10 nm 厚アルミニウムは, 広帯域の中赤外光を一様に高い割合で反射する。時間圧縮用の薄膜とストリーク測定用薄膜は 12 mm の距離で並行に配置され, この伝搬距離での時間圧縮に必要なエネルギー変化量は $\Delta E_{\text{max}} = 7.5 \text{ eV}$ である。したがって, 式(9)より期待される最短パルス幅は $\Delta t_{\text{min}} = 180 \text{ as}$ となる。前節のレーザー波長 $1 \mu\text{m}$ の実験と比較して, 3 倍の距離 (L_{bunch}) を取ったにも関わらず (注: 距離がある程度長い方がレーザー照射や薄膜の設置方法に融通が利く), 波長が 7 倍長いこと, ΔE_{max} が 2.3 倍, Δt_{min} が $1/2.3$ となる。その一方で, 3.5 節で述べた加速電圧の安定性 (ここでは 70 kV に対して, 10 ppm の 0.7 V と仮定) の影響の方が大きくなり, 350 as の制限が与えられるものの, アト秒域のパルスの発生が期待される。

図 7(e)に観測されたストリーク信号を示す。本信号全体を取得するのに要した露光時間は計 30 分程度であった。ピコ秒パルスを用いた実験結果の図 6(b)と異なり, この信号は遅延時間に対して周期的ではない。この信号の解析には, 大きなストリーク角度に検出された信号に着目する (図の右側にある矢印参照)。図 7(c)に示す 1 サイクルパルスで電子線をストリークしているため, この大きな角度へのストリークは, レーザー波形の主ピーク (図 7(c), 時間 0 でのピーク) のみで起こり, 光周期よりも十分短い時間幅の超高速ゲートとみなすことが

できる。レーザー波形における主ピークの両隣にある上方向ピーク(図 7(c)上向き)の振幅は、主ピークの 60%未満でしかない。この点を利用して、逆畳み込みを用いた解析を行った。詳細は[15]を参照されたい。なお、下方向ピーク(図 7(c)の ± 11.5 fs の下向きピーク)によるストリーク、つまり図 7(e)下側に現れた信号は、光周期(23 fs)だけ隔たった 2 つの超短ゲートによる信号の和となり、本実験の結果解析には適さない。

図 7(f)に得られた電子線の時間構造を示す。時間圧縮用のレーザー電場振幅を上げていくと、つまり、エネルギー変調量を増大させると、まず中心(時間 0)に現れるピークが先鋭化し、25 MV/m で時間幅の極めて短いピーク構造が観測された。更に電場振幅を増加させると、中心のピーク強度が低下するとともに、近接するピークが先鋭化した。これは、レーザーの主ピークによる圧縮が強すぎて分散が起こり(図 3(a)参照)、代わりに電場振幅の小さい周期での圧縮が最適となったためである。

図 2(a), (b)の赤矢印で示すように、電子線のそれぞれの時間ピークは加減速を受けた電子から構成される。仮に本実験で観測された時間ピークそれぞれのエネルギースペクトルが測定された場合(エネルギーと時間の不確定に留意されたい)、ピーク毎に異なるエネルギー分布幅が観測されるであろう。例えば、 -23 fs に現れるピークの時間圧縮が 47 MV/m で最適なことから、このピークを構成する電子のエネルギー幅は、ある変調電場振幅において、中心ピークの $25/47 = 53\%$ 程度であることが推測される。これは図 7(c)のレーザー電場波形の 0 fs と -23 fs のピーク値の比(58%)と合致する。

中心ピークの時間圧縮が最適な 25 MV/m のレーザー電場振幅では、中心のピーク幅が 0.8 ± 0.6 fs (FWHM) であり、そのピーク高さは、近接するピークよりも 2 倍以上である。したがって、この変調電場振幅で、孤立アト秒ピーク構造が発生したと言える。なお、圧縮前の電子パルス幅が 500 fs、光の半周期が 11 fs であるから、このピークには、全体の約 2%の電子が含まれている。

ピコ秒近赤外光による時間変調の場合(図 6(c))と比較すると、バックグラウンドの相対強度が非常に小さいことが分かる。これは、レーザー光の周期が長いため、1 つの圧縮されたピークに含まれる電子の割合が多いためである。圧縮後のパルス幅が同じ場合、アト秒ピークの強度は波長に比例して高くなる。

6.3 搬送波包絡線位相による制御

6.2 節の実験では、孤立したアト秒ピークが生成されるよう調整されたレーザー電場波形を用いた。ここでは、CEPにより電場波形を変形させた際に、圧縮された電子パルスの時間形状がどのように変化するかを調べる。図 7(g)に実験結果を示す。上から 3 つ目に示す結果は、cosine 型(CEP=0)に近い電場波形(図 7(c)参照)で変調された電子線であり、図 7(f)と同様に、単一の高強度ピークが観測された。なお、金属薄膜を利用した変調の場合、レーザー電場波形と速度変調の時刻変化(例えば、図 4(a)赤線)には、 $\pi/2$ だけ位相のずれがあること[14, 15]を注記しておく。その一方で、図 7(g)上から 2 つ目と 4 つ目に示す電子の時間構造は、minus-cosine 型(CEP = $\pm\pi$)に近い電場波形(図 7(c)を上下反転したもの)によって変調されたものである。この場合、2 つのほぼ同強度のピークが観測された。したがって、CEP を π だけ変化させることで、孤立パルスとツインパルスの切り替えが行われた。孤立アト秒パルスにおいて隣接するピークの相対強度をより低減させ、より理想的な孤立パルスに近づける方法として、パルス幅の更に短いレーザー光による時間圧縮、あるいは、次節で述べる前段階での時間圧縮が挙げられる。

7. まとめと展望

本稿では、光の波を用いた電子パルスのアト秒時間圧縮技術を解説した。パルス幅の長いレーザー光による時間圧縮では、アト秒電子パルス列が発生した。パルス間の時間間隔は、ちょうど光の 1 周期である。筆者らは、多サイクル中赤外光を用いた 21 fs 間隔の 3 fs (FWHM) 電子パルス列の生成にも成功している[15]。また、超短 1 サイクル光による時間圧縮では、孤

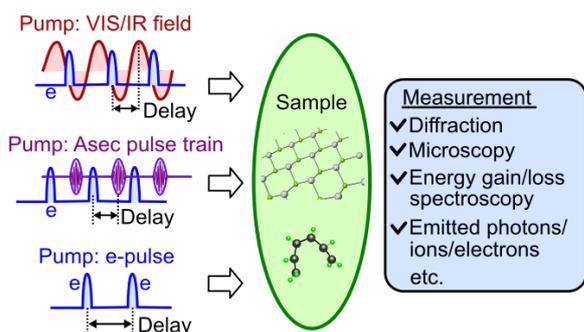


図 8. アト秒電子パルスをプローブに用いたポンプ・プローブ測定のための 3 つの例.

立したアト秒ピークが生成された。さらに、電子線の時間構造は、レーザー電場波形にตอบสนองして様々な形状となった。これは、レーザー波形の整形によって、電子線の時間構造を自由に制御できる可能性を示している。

本稿で解説したアト秒電子線制御技術と電子線イメージングの高い空間分解能を組み合わせることで、これまで電子パルスの時間幅（サブピコ秒）やアト秒レーザーの波長（数ナノメートル）の制限で得ることが困難であった、高い時空間分解能でのポンプ・プローブ測定が可能となる（図 8）。第 1 節でも述べたが、電子パルスの時間幅が十分に短い場合でも、速度不整合による時間分解能の低下（4.4 節参照）に留意する必要がある。アト秒電子パルスは薄い試料、例えば、固体薄膜、固体表面、環境セル中に導入された試料、ナノ物質、液体フラットジェット等の測定対象に対して有効であると考えられる。

ポンプの 1 つ目の候補は、レーザー光の電磁場（搬送波）である（図 8 上段）。従来のポンプ・プローブ法でのパルス（包絡線）とは異なることに留意されたい。光と物質の相互作用における初期過程である、レーザー電場に駆動される物質中の電子の動きを、アト秒電子パルスによる電子回折によってオングストロームの分解能で捉えることができるであろう[13]。また、ローレンツ顕微鏡に応用することで、ナノメートルかつ光周期以下の分解能で、近接場などの物質周りや内部の光電磁場をイメージングすることも可能となるであろう[13]。

2 つ目のポンプの候補は、高次高調波発生によって得られるアト秒光パルス列[1]である（図 8 中段）。真空紫外や軟 X 線域の光照射で開始される内殻電子の励起、そしてその緩和過程をアト秒電子パルスによって追跡できる可能性がある。アト秒電子パルス列によるイメージングは、電子ビームの時間変調用光の周期（本稿で紹介した例では 3.4 fs と 23 fs）で可逆な、つまり時間周期的あるいはその時間内に緩和する過程に限られるが、多くの電子ダイナミクスがその例であることを注記しておく。

光周期で不可逆な過程の観測には、第 6 節で報告した孤立アト秒ピークを有する電子線が利用できる。孤立ピークに含まれる電子数をより増やし、隣接するピークの電子数を減らすには、中赤外光による圧縮の前段階として、マイクロ波やテラヘルツ波による数十フェムト秒までの圧縮[31–38]が利用できるかもしれない。孤立アト秒電子パルスを用いることで、光励起がまさに起こっている瞬間の電子ダイナミクスから、光パルスが過ぎ去った後の核ダイナミクスまでを一貫して追跡することができる。

将来的には、光パルスだけではなく、レーザー光と同期した粒子線、例えばレーザー・プラズマ加速されたイオン[57]をポンプとして利用する可能性が考えられる。また、もう一つのアト秒電子パルスをポンプとして用いる手法、電子ポンプ-電子プローブ法も考える（図 8 下段）。これまでのサブピコ秒電子パルスと比較して極めて短い時間内で、電子衝撃により反応を開始することができる。本節で紹介したポンプ・プローブ法の実現のためには、アト秒電子線の流束を増加させることが重要である。本稿の実験では単一電子パルスを使用した。アト秒の時間幅を達成できるパルスあたりの最大電子数を実験・理論的に検証する必要がある。

超高速過程研究への応用だけでなく、アト秒電子パルスは、手のひらサイズの加速器であるレーザー駆動誘電体加速器[19, 20]、原子衝突過程の制御[58–62]、電子線を用いた量子光学[48, 49]への応用も期待されている。例えば、[60]では、アト秒電子パルスの時間構造を制御することで、電子と原子の間の散乱確率を増減

できることが理論的に示されている。第3節で述べたように、圧縮後の電子パルスの時間幅を決定する要因は既知である。電子顕微鏡で使用される数十から数百 keV の電子線に、keV レベルのエネルギー変調を加えることは既に達成されている。現在の最短レーザーパルスと同程度の数十アト秒やそれ以下の時間幅（式(9)参照）の電子パルスの発生は、近い将来に報告される可能性が高い。アト秒レーザーパルスによって、光電効果やトンネル効果に要する時間など、基礎的な物理現象に新たな発見がもたらされたのと同様に、アト秒電子パルスによる時間軸の測定によっても、新たな基礎科学の知見がもたらされることが期待される。

謝辞

若手奨励賞の対象となった研究は、東京大学の山内 薫 教授、歸家 令果 助教(現在 首都大学東京 教授)、ルートヴィヒ・マクシミリアン大学ミュンヘンとマックス・プランク量子光学研究所の Peter Baum 博士(現在 Konstanz University 教授)、Ferenc Krausz 教授、そして、フリードリヒ・アレクサンダー大学エアランゲン・ニュルンベルクの Peter Hommelhoff 教授の指導下で行われた。また、歸家教授には、本解説論文への有益なご意見も頂いた。これらの方々に御礼を申し上げる。そして、研究資金を提供して下さった、日本学術振興会、文部科学省、European Research Council, Munich Center for Advanced Photonics, FAU Emerging Talent Initiative に感謝を申し上げます。

参考文献

- [1] F. Krausz, “Electrons In Motion”, World Scientific Publishing Company (2019).
- [2] D. B. Williams and C. B. Carter, “Transmission Electron Microscopy”, Springer, New York (1996).
- [3] 森野米三, 坪井正道, “現代物理化学講座 3(分子の構造)”, 東京化学同人 (1966).
- [4] 山内薫, “岩波講座 現代化学への入門(4) 分子構造の決定”, 岩波書店 (2001).

- [5] R. Hofstadter, Rev. Mod. Phys. **28**, 214 (1956).
- [6] L.S. Bartell and L.O. Brockway, Phys. Rev. **90**, 833 (1953).
- [7] J.M. Zuo et al., Nature (London) **401**, 49 (1999).
- [8] W. Gao et al., Nature (London) **575**, 480 (2019).
- [9] R. Kanya, Y. Morimoto and K. Yamanouchi, Phys. Rev. Lett. **105**, 123202 (2010).
- [10] Y. Morimoto, R. Kanya and K. Yamanouchi, J. Chem. Phys. **140**, 064201 (2014).
- [11] Y. Morimoto, R. Kanya and K. Yamanouchi, Phys. Rev. Lett. **115**, 123201 (2015).
- [12] 歸家令果, 森本裕也, 山内薫, 日本物理学会誌 **71** (9), 623 (2016).
- [13] Y. Morimoto and P. Baum, Nat. Phys. **14**, 252 (2018).
- [14] Y. Morimoto and P. Baum, Phys. Rev. A **97**, 033815 (2018).
- [15] Y. Morimoto and P. Baum, Phys. Rev. Lett. **125**, 193202 (2020).
- [16] C. M. S. Sears et al., Phys. Rev. Spec. Top. - Accel. Beams **11**, 061301 (2008).
- [17] K. E. Priebe et al., Nat. Photonics **11**, 793 (2017).
- [18] M. Kozák, N. Schönenberger, P. Hommelhoff, Phys. Rev. Lett. **120**, 103203 (2018).
- [19] N. Schönenberger et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 264803 (2019).
- [20] D. S. Black et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 264802 (2019).
- [21] U. Niedermayer et al., Phys. Rev. Applied **15**, L021002 (2021).
- [22] D. Ehberger et al., Phys. Rev. Lett. **114**, 227601 (2015).
- [23] S. Meier et al., Appl. Phys. Lett. **113**, 143101 (2018).
- [24] G. M. Vanacore et al., Nat. Commun. **9**, 2694 (2018).
- [25] A. Ryabov et al., Sci. Adv. **6**, eabb1393 (2020).
- [26] A. J. McCulloch et al., Nat. Commun. **4**, 1692

- (2013).
- [27] W. J. Engelen et al., *Nat. Commun.* **4**, 1693 (2013).
- [28] M. Aidelsburger et al., *PNAS* **107** (46) 19714 (2010).
- [29] S. Tokita et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 215004 (2010).
- [30] H. W. Kim et al., *Nat. Photon.* **14**, 245 (2020).
- [31] T. van Oudheusden et al., *Phys. Rev. Lett.* **105**, 264801 (2010).
- [32] A. Gliserin et al., *Nat. Commun.* **6**, 8723 (2015).
- [33] X. H. Lu et al., *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **18**, 032802 (2015).
- [34] J. Maxson et al., *Phys. Rev. Lett.* **118**, 154802 (2017).
- [35] C. Kealhofer et al., *Science* **352**, 429 (2016).
- [36] D. Zhang et al., *Nat. Photonics* **12**, 336 (2018).
- [37] L. Zhao et al., *Phys. Rev. X* **8**, 021061 (2018).
- [38] E. C. Snively et al., *Phys. Rev. Lett.* **124**, 054801 (2020).
- [39] Y. Morimoto and P. Hommelhoff, *Phys. Rev. Research* **2**, 043089 (2020).
- [40] P. Baum, *J. Appl. Phys.* **122**, 223105 (2017).
- [41] K. Sekizawa, *Phys. Rev. C* **96**, 041601(R) (2017).
- [42] D. Andrick and L. Langhans, *J. Phys. B* **9**, L459 (1976).
- [43] A. Weingartshofer et al., *Phys. Rev. Lett.* **39**, 269 (1977).
- [44] P. Agostini et al., *Phys. Rev. Lett.* **42**, 1127 (1979).
- [45] J. Itatani et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173903 (2002).
- [46] M. Kitzler et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 173904 (2002).
- [47] B. Barwick, D. J. Flannigan *Nature (London)* **462**, 902 (2009).
- [48] O. Kfir et al., *Nature (London)* **582**, 46 (2020).
- [49] R. Dahan et al., *Nat. Phys.* **16**, 1123 (2020).
- [50] Y. Morimoto et al., *J. Appl. Phys.* **122**, 215303 (2017).
- [51] D. Ehberger, A. Ryabov, and P. Baum, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 094801 (2018).
- [52] D. Hoff et al., *Nat. Phys.* **13**, 947 (2017).
- [53] B-H. Chen et al., *Opt. Express* **27**, 21306 (2019).
- [54] A. Baltuška, T. Fuji, and T. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 133901 (2002).
- [55] Y. Morimoto et al., *Optica* **8**, 382 (2021).
- [56] D. Ehberger et al., *Phys. Rev. Applied* **11**, 024034 (2019).
- [57] 北川 米喜, *プラズマ・核融合学会誌* **79**, 985 (2003).
- [58] L. D. Favro, D. M. Fradkin and P. K. Kuo, *Phys. Rev. D* **3**, 2934 (1971).
- [59] A. Gover and A. Yariv, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 064801(2020).
- [60] Y. Morimoto, P. Hommelhoff and L. B. Madsen, *Phys. Rev. A* **103**, 043110 (2021).
- [61] Z. Zhao, X. Sun and S. Fan, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 233402 (2021).
- [62] D. Rätzel et al., *Phys. Rev. Research* **3**, 023247 (2021).

2021 年度 役員・委員会

会長

長嶋泰之（東京理科大学）

幹事

星野正光（上智大学）〔副会長〕

鳥居寛之（東京大学）

永田祐吾（東京理科大学）

中野祐司（立教大学）

石井邦和（奈良女子大学）

運営委員

石井邦和（奈良女子大学）

小田切丈（上智大学）

久間晋（理化学研究所）

高峰愛子（理化学研究所）

鳥居寛之（東京大学）

永田祐吾（東京理科大学）

樋山みやび（群馬大学）

山崎優一（東京工業大学）

岡田邦宏（上智大学）

北島昌史（東京工業大学）

酒井康弘（東邦大学）

土田秀次（京都大学）

中野祐司（立教大学）

中村信行（電気通信大学）

星野正光（上智大学）

渡部直樹（北海道大学）

常置委員会

編集委員会

委員長：中野祐司（立教大学）

行事委員会

委員長：石井邦和（奈良女子大学）

広報渉外委員会

委員長：鳥居寛之（東京大学）

顕彰委員会

委員長：星野正光（上智大学）

庶務委員会

委員長：永田祐吾（東京理科大学）

編集委員 石川顕一, 岩山洋士, 大橋隼人, 岡田信二, 椎名陽子,
土田秀次, 富田成夫, 中野祐司, 山崎優一



原子衝突学会誌しょうとつ

第 18 卷 第 6 号 (通卷 103 号)

Journal of Atomic Collision Research

©原子衝突学会 2021

<http://www.atomiccollision.jp/>

発行: 2021 年 11 月 15 日

配信: 原子衝突学会事務局 <acr-post@bunken.co.jp>