

フェムト秒・アト秒量子ビームの発生と利用



研究ノート

吉田陽一*

Generation of femtosecond and attosecond electron beam and its applications

Key Words : femtosecond and attosecond electron beam, ultrafast reactions, ultrafast phenomena, pulse radiolysis

1. はじめに

近年、ナノファブリケーションに多大な努力が注がれている半導体加工の分野において、レーザー光による微細加工の解像度の向上は限界に達しており、30 nm 以下の微細加工では、光に代わって波長の制限のない電子線や X 線等の量子ビームが使用されることになる。

しかし、解像度が 30 nm 以下になると、今まで考慮されてこなかった新しい問題が発生すると予想している。レジスト反応を例にとると、電子線や X 線による反応の出発点は分子のイオン化であり、光（レーザー）の励起とは反応過程が異なる。電子線や X 線は低 LET 放射線に分類され、そのイオン化はスパモデルで説明される。すなわち、量子ビームと呼ばれる X 線や電子線の物質に及ぼす化学的影響は、二次電子によるイオン化の影響が大部分であり、その意味では、X 線と電子線の効果はほぼ同じと考えてよい。レーザー光励起の場合、レジスト内の酸発生剤を直接的に励起し、酸を発生させる。その後熱を加えることにより連鎖反応をひきおこさせる。一方、量子ビームは、直接的に酸発生剤に作用することはなく、レジストマトリックスをイオン化する。その際、放出された電子が酸発生剤と反応し、酸が生成する。従って、量子ビームが作用した場所から離れた所に酸が生成する。この距離は、ス

パーとよばれる領域にほぼ等しいことが今までの研究で明らかにしてきた。この距離が大きければ、必要とする解像度が得られないことになる。例えば、30 nm ナノファブリケーションで求められる解像度の精度は約 2 ~ 3 nm であるが、一方、スーパーサイズは 6 nm 程度であることがこれまでの研究により明らかになっており、このままでは、目的の解像度が得られない結果となってしまう。極限ナノファブリケーションを実現するためには、スーパー効果の問題を解決する必要がある。現在、その方法として、

スーパーサイズを制御するか、スーパーサイズに影響されない反応系を開発するとの二つの方法が考えられる。これらの問題を克服するためには、時間空間反応解析を通して、量子ビーム誘起初期過程の本質を明らかにし、この問題に対応する必要がある。

量子ビーム誘起作用は、イオン化から始まり、その後、電子の熱化、水和・溶媒和、ジェミニートイオン再結合などの初期反応を起こす。イオン化過程は量子ビーム照射の直後、アト秒 (10^{-18} 秒) 時間領域で引き起こされ、その後の初期反応はフェムト秒 (10^{-15} 秒) やピコ秒 (10^{-12} 秒) 時間領域で起こると考えられている。量子ビーム誘起初期過程の解明は、ナノテクノロジーにおけるナノファブリケーションの分野からの要請だけではなく、放射線化学分野やガン治療の医療応用分野からも強い要請がある。

電子線励起時間分解吸収分光法（パルスラジオリシス）は、量子ビーム誘起初期反応や超高速現象を直接的に測定する手法であり、これまでに量子ビーム誘起現象の解明に大きく貢献してきた。パルスラジオリシス法では、加速器から発生した短パルスの電子線を試料に照射させ、電子線誘起反応・現象を、電子線パルスを同期した分析光を用いて測定する。我々は、最先端のレーザーフォトカソード RF 電子



*Yoichi YOSHIDA

1957年4月生
東京大学大学院工学系研究科原子力工学
専攻博士課程 (1987年)
現在、大阪大学 産業科学研究所 附属
産業科学ナノテクノロジーセンター
教授 工学博士 加速器科学、ナノテ
クノロジー、量子ビーム科学
TEL : 06-6879-4284
FAX : 06-6879-4287
E-mail : yoshida@sanken.osaka-u.ac.jp

銃加速器を用いてフェムト秒・アト秒電子線パルス
を発生し、パルスラジオリシスを通して、アト秒・
フェムト秒時間領域での量子ビーム誘起初期過程の
解明を目指した研究を進めている。以下では研究の
概略を紹介する。

2. フェムト秒・アト秒電子線パルスの発生

フェムト秒・アト秒電子線パルスの発生には、
Fig.1 に示したように、フォトカソードRF 電子銃、
S - band 進行波型加速管、磁気パルス圧縮器から構
成される最先端のフォトカソードRF 電子銃加速器
を用いた。ピコ秒レーザー励起と、ソレノイド磁場
を用いて空間電荷効果によるエミッタンスの増大の
補正によりフォトカソードRF 電子銃から 3.5mm-
mrad の低エミッタンス電子ビームを発生し、発生
した電子パルスを、加速管を用いて 32 MeV まで加
速させる。また、磁気パルス圧縮における高次効果
によるパルス幅の増大を補正するために、加速RF

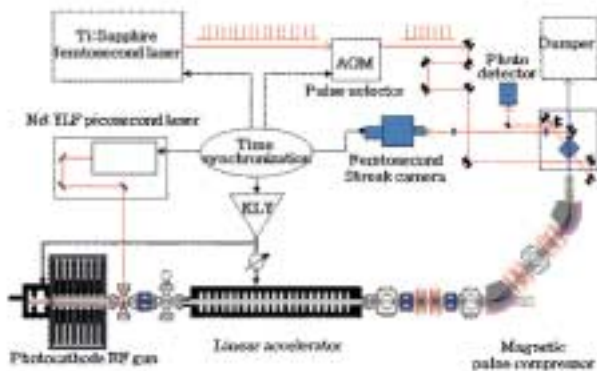


Fig. 1 フェムト秒・アト秒電子線パルスの発生と
利用システム

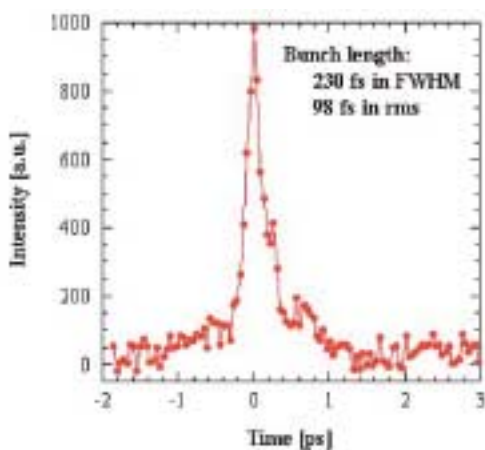


Fig. 2 フェムト秒電子線パルスの実験データ

の位相を最適化し、電子線パルスにおける非線形エ
ネルギー変調を行う。

最後に、その電子線パルスを、磁気パルス圧縮器
を用いてフェムト秒・アト秒まで圧縮する。そのた
めに、磁気パルス圧縮器での磁場強度の調整を高精
度で行い、電子が圧縮器を通過するパスをサブミク
ロンまで制御する。Fig.2 に、本研究で発生した最
短 98 フェムト秒電子線パルスの実験データを示し
ます。そのときの電荷量は、パルス当たり 0.17 nC
(10^9 個電子)であった。

さらに、極低エミッタンス (0.1mm-mrad) 電子
ビームの発生と磁気パルス圧縮の高度化によるアト
秒電子線パルスの発生方法を確認した。それは、フ
ォトカソードRF 電子銃にフェムト秒レーザー励起
によりフェムト秒低エミッタンス電子ビームを発生
し、磁気パルス圧縮でアト秒電子線パルス生成の方
法である。理論研究では、780 アト秒の電子線パ
ルスの発生が実現可能であることがわかっている。

3. フェムト秒・アト秒パルスラジオリシスと量 子ビーム誘起超高速反応の研究

パルスラジオリシスにおいて、時間分解能を決め
る因子は

- (1) 電子ビームのパルス幅
- (2) 分析光のパルス幅
- (3) 電子線と分析光の同期ジッター
- (4) サンプル中での光速と電子の速度差の違い
から生じる時間分解能の劣化

の四つである。

フェムト秒・アト秒の時間分解能達成には、フェ
ムト秒・アト秒電子パルスや分析光パルスを利用す
るほかに、電子線パルスと分析光パルスの同期ジッ
ターによる時間分解能の劣化、サンプル中での光の
速度と電子の速度の差の違いから生じる時間分解能
の劣化をフェムト秒・アト秒までに抑える必要があ
る。

電子線パルスと分析光パルスの同期時間ジッター
を低減するために、電子線パルス発生と加速用の
RF パワーの精密制御や室温の安定化を行い、電子
線パルスと分析光パルスの同期時間ジッターによる
パルスラジオリシスの時間分解能は 200fs に実現で
きた。また、アト秒パルスラジオリシスの実現に向
けて電子線パルスと分析光パルスの時間ジッターを

無くすため、従来の分析レーザーを使わない、電子線パルスと分析光の発生を1台の加速器で実現する上下2つのダブルデッカー電子ビームの加速器を開発し、世界初めてレーザーフォトカソードRF電子銃を用いて1台の加速器で上下2つのフェムト秒パルス電子線の発生に成功した。

光が屈折率 n のサンプルに入ると、光の速度が n 分の1に遅くなる。サンプル中での光の速度と電子の速度の差の違いから生じる時間分解能の劣化は、電子ビームがサンプルを通り抜けるのにかかる時間と、レーザーがサンプルを通り抜けるのにかかる時間の差で表される。例えば、サンプル長1mmの水 ($n = 1.33$) の場合、時間分解能の劣化は1.1psとなる。フェムト秒の時間分解能を得るためには、サンプル長さが1mm以下にする必要がある。従来の光吸収の測定では、1nCの電子ビームで1mmのサンプル長はほぼ測定できる限界レベルであり、サンプル長を短くして、その代わりにパルス当たりの電荷量を上げる必要がある。しかし、電荷量を上げることにより、電子線パルスの場合、空間電荷効果が大きくなり、フェムト秒・アト秒の超短パルス電子ビームが生成できなくなる。そこで我々は、システムの安定化とダブルパルス測定法の利用により、光吸収強度変動によるS/Nの劣化を抑え、電荷量0.1nCの電子線パルスを利用して0.1mmまでの薄いサンプルでの光吸収測定法を実現した。

また、サンプル中での光の速度と電子の速度の差の違いから生じる時間分解能の劣化を無くすため、等価速度分光法と呼ばれるまったく新しい方法を適

用したパルスラジオリシスを考案した。それは、従来までは同方向から入射させていた電子線パルスと光パルスを、サンプルの屈折率 (n) に応じた角度 ($\cos \theta = 1/n$) をつけて入射させ、同時に電子線パルスの波面の傾き角度を、角度 θ に応じて波形整形する手法である。これによって、サンプル中の電子線パルスと光パルスの見かけ速度が同じになり、時間分解能の劣化がなくなる。Fig.3に、98フェムト秒の電子線パルスを利用し、パルスラジオリシスで、世界初めて水和電子生成過程を観測した実験データを示す。その時の光吸収の測定波長は800nmであり、分析光パルス幅は80fs、電子線パルスの電荷量は0.2nC、サンプルは水であった。

4. まとめと展望

本報告では、加速器からフェムト秒・アト秒電子線パルスの発生、そのパルスを利用して量子ビーム誘起高速反応・現象の測定方法と測定結果を紹介した。フェムト秒・アト秒短パルス電子ビームは、荷電粒子性といった見地からレーザーと異なった短パルスビームとして、物質内超高速反応・現象の解明、ナノテクノロジー、がん治療などのさまざまな先端的な研究に欠かせない道具となってきた。フェムト秒・アト秒短パルスビームの利用は、生体・物理・化学分野に大きなインパクトを与えると共に、さまざまな新しい発見と応用に道を拓くことが期待される。

参考文献

- [1] Yang, J., Kondoh, T., Yoshida, Y., Tagawa, S., Jpn. J. Appl. Phys. 44, 8702-8707 (2005).
- [2] Yang, J., Kondoh, T., Kozawa, T., Yoshida, Y., Tagawa, S., Radiat. Phys. Chem. 75, 1034-1040 (2006).
- [3] Yang, J., Kondoh, T., Yoshida, A., Yoshida, Y., Rev. Sci. Instrum. 77, 043302 (2006).
- [4] Yang, J., Kondoh, T., Kan, K., Kozawa, T., Yoshida, Y., Tagawa, S., Nucl. Instr. Meth. A 556, 52-56 (2006).
- [5] T. Kondoh, H. Kashima, J. Yang, Y. Yoshida, S. Tagawa, Radiat. Phys. Chem. 77, 1142-1147 (2008).
- [6] A. Asano, J. Yang, T. Kondoh, K. Norizawa, R. Na-

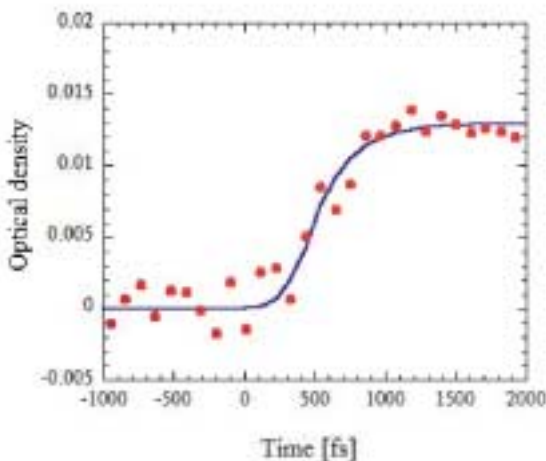


Fig. 3 フェムト秒時間領域での水和電子の過渡吸収の測定データ (水、測定波長 800nm)

gaishi, K. Takahashi, Y. Yoshida, Radiat. Phys. Chem. 77, 1244-1247 (2008).
[7] J. Yang, T. Kondoh, K. Norizawa, R. Nagaishi, M.

Taguchi, K. Takahashi, R. Katoh, S. V. Anishchik, Y. Yoshida, S. Tagawa, Radiat. Phys. Chem. 77, 1233-1238 (2008).

