

## アト秒・フェムト秒の科学



研究室紹介

吉田 陽一\*

Science in atto-second and femtosecond time-scales.

Key Words : Accelerator science, Nanotechnology

### はじめに

光速の物体が、原子を通過する時間は、アト秒 ( $10^{-18}$ 秒) のオーダーである。物質に、速度がほぼ光速の高エネルギーの電子、つまり高エネルギー電子を入射させることを考えてみると、物質を構成する原子は、アト秒の時間の間、その高エネルギー電子と相互作用することになる。すなわち、高エネルギー電子と物質の相互作用の出発点は、アト秒であると言い換えることができる。

我々の研究室では、放射線化学を中心に、量子ビーム誘起超高速反応の研究を行ってきた。これを調べる方法として、パルスラジオリシス法と呼ばれる手法がある。これは、加速器からのパルス状の放射線 (多くは高エネルギー電子) を物質に照射し、発光や光吸収の時間分解測定を行うことにより、現象や反応機構を調べる。1960年代に開発されたパルスラジオリシス法は、1970年頃にはピコ秒 ( $10^{-12}$ 秒) の時間分解能に到達していた。時間分解能の観点では、その後しばらく足踏み状態にあったが、2000年前後に、加速器を構成する電子銃 (電子の発生源) に、新しい進歩があり、フェムト秒 ( $10^{-15}$ 秒) の電子ビームの発生が可能になった<sup>1</sup>。最近では、これをアト秒化する試みを行っている<sup>2</sup>。

アト秒から始まる現象や反応を追跡することは、高エネルギー電子による物質の照射効果を時間ゼロ

から最終過程まで調べることが可能になることを意味する。このことは、量子ビーム科学における物質の照射効果の全容を解明することにつながるばかりでなく、ナノテクノロジーやがん治療への応用が拓かれることとなる。

### アト秒・フェムト秒の電子パルスをつくる

加速器 (ここでは、ライナックと呼ばれる線形加速器) が主に使われる。ライナックは、GHz帯のマイクロ波により加速するため、その周波数を活かして短パルスを発生させることは原理的には最適であるが、実際には短パルス電子ビームを取り出すことは簡単ではない。1900年代には、電子銃がいわゆる熱電子銃とよばれる電子の放出面 (カソード) を加熱するタイプの物であったため、単発のパルス発生の制御は困難を極め、せいぜいピコ秒が限界であった。

先に述べた2000年頃に開発された電子銃は、レーザーフォトカソードRF電子銃と呼ばれるもので、金属等の表面にレーザーを照射し、光電効果により電子を発生させる方式である。この方式では、フェムト秒レーザーを使うことにより比較的容易に、フェムト秒電子パルスの発生が可能である。また、フォトカソードはRF空洞により瞬時に高エネルギーまで加速されるため、広がり少ない (発散角の小さい) 高品質な電子線ビームが発生する。このことは、発生した電子線パルスをさらに圧縮し、短パルス化する際に有利に働く。

図1に示した装置は、大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設に設置されているレーザーフォトカソードRF電子銃電子ライナックである。電子ビームの最大エネルギーは35 MeVである。磁気パルス圧縮器と呼ばれる電子線パルス圧縮テクニックにより、フェムト秒の電子線パルスの発生が可



\* Yoichi YOSHIDA

1957年4月生まれ  
 東京大学大学院工学系研究科原子力工学  
 専攻博士課程 (1984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 ナノ極  
 限ファブリケーション分野 教授  
 博士 (工学) 専門/加速器科学、ナノテ  
 クノロジー、物理化学  
 TEL : 06-6879-4284  
 E-mail : yoshida@sanken.osaka-u.ac.jp



図1 フェムト秒電子ビームを発生する加速器 (大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設)

能であり、超高速現象の解明と探索に活用されている。

### 初期過程とは

放射線化学初期過程という言葉がある。最近では、量子ビーム化学初期過程と呼ばれることもある。電子ビームによりアト秒の時間で起こる最初の現象は、イオン化であり、多くの原子・分子は電子ビームのクーロン力により電子を放出する。ちなみに、原子・分子の励起はわずかで、ほとんどの原子・分子がイオン化する。電子ビームは、低LET放射線と呼ばれており、イオンビーム等と比べると、単位長さ当たりの物質が吸収するエネルギー (Linear energy transfer、LET) がはるかに小さい。結果的に、電子ビームでは、電子ビームの軌道に沿ってまばら (約100 nm 間隔) にイオン化が起こる。イオン化直後には、飛び出した電子と、その飛び出した元のプラスの電荷を持った原子・分子 (カチオンラジカル) のペアが、電子ビームの軌道上にあたかも孤立した

状態で存在することになる。この孤立した状態をスパー (スキ어의シュプールが由来) と呼ぶ。

このスパーを出発点として化学過程が始まる。例えば、水和電子や溶媒和電子の生成過程は、放射線化学では重要な反応である。すでに、レーザー分光でこの分野の研究は先行しているが、フェムト秒パルスラジオリシスを用いることにより、放射線として初めて、溶媒和前の電子やさらにその前駆体であるドライ電子の存在を明らかにすることができた。放射線によるがん治療では、水和電子の前駆体の役割が重要であることが指摘されており、その直接的な観測は多くに知見をもたらすことが期待される。

ポリエチレンは絶縁体として原子炉をはじめ多くの放射線場でも使用されている。放射線場では、ポリエチレンは硬化により健全性が損なわれる (ポロボロになる。) この過程には、ラジカルが関与していることは分かっていたが、初期過程に生成する電子とカチオンラジカルからラジカルが生成する過程が不明のままであった。フェムト秒パルスラジオリシスにより、カチオンラジカルの前駆体が存在し、その前駆体がラジカルの生成に寄与していることを見出した。このことは、今後、放射線場でkの材料の健全性の向上に大きく寄与すると思われる。

さて、最初の状態の電子とカチオンラジカルの距離 (言い換えるとスパーのサイズ) は約5~6 nm である。AIやIoT技術を支える半導体プロセスでは、これまで、レーザー (波長:193 nm) を使って10 nm 台の微細加工が行われてきた。193 nmの光により、その1/10以下のサイズの加工を行う技術は素晴らしいものがあるが、さすがに限界を迎えており、ここしばらくはその進歩が停滞していた。2019年になって、EUV (極端紫外光:13.5 nm) によるプロセスが立ち上がり、いよいよシングルナノメータの時代に突入した。半導体プロセスでは、シリコン基板上に塗布したレジストと呼ばれる材料に、最初にEUVにより回路パターンを作ることから始まる。この13.5 nmのEUVは、実は放射線である。従って、レジスト材料のなかでは、イオン化が起きている。スパーサイズに等しいシングルナノメータのパターンを効率よく作成するためには、初期過程の制御が不可欠となり、フェムト秒パルスラジオリシスの必要性が注目されている。

## フェムト秒・アト秒の困難さ

フェムト秒パルスラジオリシスの時間分解能が向上し、アト秒領域に近づくと、実験的な困難さに直面する。我々は吸収分光を行う分析光源として、フェムト秒レーザーを使用している。電子ビームとレーザーパルスが常に同じタイミングでサンプルに入射する必要があるが、実際にはある時間ジッターが発生する。同期タイミングの制御は電子回路で行っており、精度の向上には限界がある。そこで、ダブルデッカービーム法と呼ばれる方法を考案した<sup>3</sup>。図2に示すのが、ダブルデッカービームの測定例であるが、加速器から2つの電子パルスを同時に発生させている。一つのビームでサンプル照射を行うが、もう一つのビームは、分析光に変換する。こうすることで、両者の時間ジッターはアト秒オーダーまで低減可能である。さらに、アト秒の電子パルスを使うことで、アト秒の分析光を得ることも可能になる。

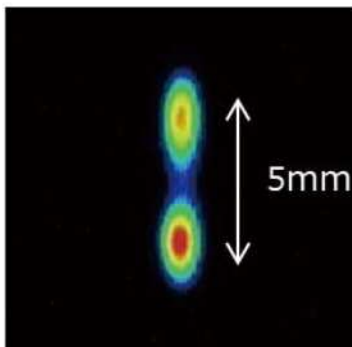


図2 ダブルデッカー電子ビーム

別の問題として、電子ビームと分析光の速度差がある。電子ビームのサンプル中の速度は光速を保っているのに対し、光はサンプルの屈折率に応じて速度が低下する。屈折率1.33の水では、1 mmのサンプルを通過する際に、両者には1.1ピコ秒の時間差が生じ、時間分解能の劣化をもたらす。これを避けるためには、サンプルの厚みを薄くする必要があるが、それでは吸収強度が得られなくなる問題が発生する。そのために、等価速度分光法と呼ばれる方法を開発した<sup>4</sup>。電子ビームの波面を屈折率に応じて傾け、同時に、分析光に対しても屈折率に応じた角度を付けて入射することにより、時間分解の劣化を防ぎ、なおかつ、十分な吸収強度が得られる。

## 今後の展開

アト秒が今後のターゲットとなる。現在は、イオン化過程の生き残りを測定している状態である。アト秒パルスラジオリシスが実現すれば、イオン化過程やその後の緩和過程を直接観測可能になる。

そのためには、アト秒電子パルスの発生が鍵となる。現在は、レーザーフォトカソードRF電子銃とパルス圧縮器によりフェムト秒の電子パルスを発生させている。最近の成果では、1フェムト秒に迫るパルスの発生に成功しているが、アト秒の発生にはある程度限界が見えており、次の工夫が必要である。その一つが、アンジュレータによるパルス圧縮法である(図3)。アンジュレータは、自由電子レーザーのために開発されたもので、電子ビームを通過させることにより中でレーザー発振を起こす。ここでは、逆にアンジュレータにレーザーを導入することにより電子ビームの圧縮に用いる。計算では数フェムト秒の電子パルスを数百アト秒まで圧縮可能である。

アト秒電子ビームにより、アト秒パルスラジオリシスが実現することは大きな進歩につながると考えているが、実はもう一つの狙いが存在する。それは、集団イオン化と呼ばれる現象である。アト秒電子パルスでは、パルス内の電子密度が高くなり、集団的な相互作用が起こることが予想されている。結果的に、LETが大きくなる。通常、電子ビームはある程度エネルギーが大きくなると、LETはほぼ一定の値となる<sup>5</sup>。しかしながら、アト秒電子パルスでは、LETを変えることが可能になる。可変LET電子ビームは、工学的にも多くの応用が考えられる。そのためにも集団イオン化の検証が急務となっている。

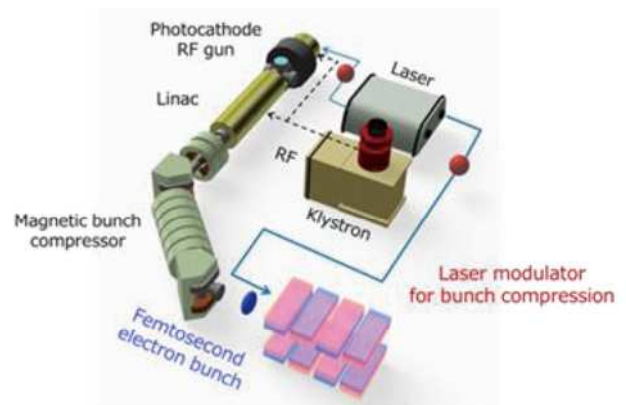


図3 アト秒電子ビームの発生

### 最後に

本欄で紹介した研究は、研究室のメンバー、楊金峰准教授、近藤孝文助教、菅晃一助教、神戸正雄助教はじめ、多くの大学院生、学部生によって行われたものです。改めて謝辞を表します。

### 参考文献

- 1) J. Yang *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* 637, S24 (2011).
- 2) I. Nozawa *et al.*, *Phys. Rev. ST Accel. Beams* 17, 072803 (2014).
- 3) J. Yang *et al.*, *Radiat. Phys. Chem.*, 75, 1034-1040 (2006).
- 4) T. Kondoh, *et al.*, *IEEJ Trans. Electronics, Information and Systems*, 134 (5), 664-669 (2014).
- 5) Ogata *et al.*, *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A* 637, S95 (2011).

