

フェムト秒電子パルスを用いた 新しいパルスラジオリシスシステムの開発

友定寛、竹谷考司、楊金峰、古澤孝弘、吉田陽一、田川精一

大阪大学産業科学研究所

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 8-1

概要

大阪大学産業科学研究所ではレーザーフォトカソードRF電子銃を用いた高精度フェムト秒電子ライナックの建設を開始した。フェムト秒電子線パルスと分析用フェムト秒レーザーパルスを利用したフェムト秒時間分解能のパルスラジオリシスシステムを計画している。

時間分解能向上のため、フェムト秒ストリークカメラを用いた、電子線パルスとレーザーパルスの同期ジッター補正システムを構築した。また、光路差による時間分解能劣化に関する問題の解決を試みた。

1 はじめに

放射線化学の研究は、基礎化学や基礎物理だけでなく、原子炉工学、生命工学、半導体リソグラフィに代表される放射線加工技術の開発などの分野に応用され、今後ますます重要になる。図1に放射線化学初期過程の反応について示す。放射線化学の初期過程の現象を解明するにパルスラジオリシス法は非常に優れた方法であり、多くの成果を上げてきた。

パルスラジオリシス法とは、短パルスの量子ビーム（多くの場合電子線）を物質に照射し、その後起こる反応を分光的に測定する方法であり、短寿命活性種の検出が可能であることから、量子ビームによって引き起こされる反応初期過程を解析する手法として非常に優れている。吸収分光に関しては、ナノ秒以降の遅い時間領域では、分析光源として定常光源、フラッシュランプ等を用いピコ秒以下の早い時間領域ではチェレンコフ光やレーザーを使用し、ストロボストップ法と呼ばれる手法を用いて測定が行われてきた。

ストロボストップ法とは電子線パルスを試料に照射させた後、ある時間間隔でレーザーパルスを入射させ、レーザーパルスが当たった時間における試料中での吸収を測定する方法である。時間間隔を変えて測定を繰り返すことによって、中間活性種の濃度の時間変化を測定することができる。特徴として時間分解能が測定機器の時間分解能に依存しないという利点を有している。

阪大産研では現在まで、Lバンドライナックを用いてサブピコ秒・ピコ秒からナノ秒以降の領域におけるパルスラジオリシス法を用いたさまざまな研究を行ってきた。特に、サブピコ秒パルスラジオリシス法では、1psをきる時間分解能800fsを達成し[1]-[3]、化学増幅系レジスト中での時間ナノ空間反応解析を行ったところ、スパーク効果と呼ばれる問題を発見した。これは、量子ビームが作用した場所か

ら離れたところに酸が生成するという問題であり、この距離はスパークとよばれる距離とほぼ等しい。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。高解像度化のためにはスパーク効果を解決する必要がある。

極限ナノファブリケーションを実現するためにはスパーク効果の問題を解決する方法として、スパークサイズを制御する、スパークサイズに影響されない反応系を開発する、の二つの方法が考えられる。そのためには、現在の時間分解能では不足し、時間分解能をフェムト秒やアト秒まで向上させる必要がある。

高時間分解能化を目指し、SバンドレーザーフォトカソードRF電子銃を用いたフェムト秒ライナックを利用し、フェムト秒時間分解能のパルスラジオリシスシステムの開発を開始した。

フォトカソードRF電子銃によって発生した電子線パルスは、低エミッタンスであり、磁気パルス圧縮法により電子線パルスをフェムト秒領域（パルス幅：数fs～数10fs）にまで圧縮可能である。新システムにより、物質内での放射線誘起反応を、フェムト秒領域で明らかにされることが期待される。

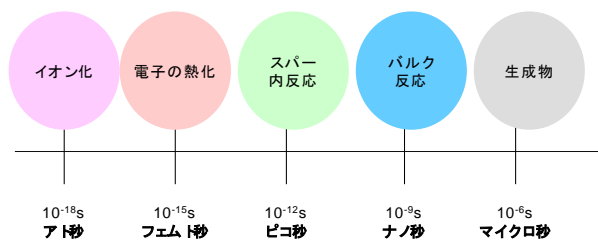


図1 放射線化学初期過程

2 フェムト秒パルスラジオリシス

図2にフェムト秒パルスラジオリシスシステムの概略図を示す。励起源としてフェムト秒電子線パルス、分析光源としてチタンサファイアフェムト秒レーザーを用い、両者の同期にはRF（高周波）信号を用いた。RF Generatorから2856MHzのRFが発生し、二つの信号に分ける。一つはクライストロンへ一つは79.3MHzに分周して、RF電子銃用のピコ秒レーザーと、分析光源のフェムト秒レーザー、両者の同期ジッター補正のためのフェムト秒ストリークカメラに送られる。

ストロボスコピック方式で行う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)分析用レーザーのパルス幅
- (3)電子線と分析光の間の同期ジッター
- (4)サンプル中での光速と電子の速度の違いから生じる時間分解能の劣化の四つである。

2.1 電子線パルス

レーザーフォトカソードRF電子銃を用いたSバンドライナックは、低エミッタンスであり、電子線パルスをフェムト秒領域（パルス幅：数fs～数10fs）にまで圧縮可能であり、フェムト秒時間分解能を得るには十分である。

2.2 分析光

分析光源としてチタンサファイアフェムト秒レーザーを利用した。レーザーのパルス幅は数10fsであり、フェムト秒時間分解能を達成するには十分である。

2.3 同期ジッター

フェムト秒時間分解能を得るには、1psを切る見込みのRF同期だけでは十分でなく、ジッター補正が必要がある。ストリークカメラを使用したジッター補正システムを採用した。励起源である電子線から発生するチェレンコフ光と分析光のレーザーの一部を参照光として測定し、両者の時間間隔をストリークカメラにより直接的に測定して時間ジッターを補正した。

2.4 光路差による時間分解能の劣化

現在、時間分解能を制限しているのは(4)の問題である。サンプル中でのレーザーの速度が $v=c/n$ (n は媒質の屈折率) になるため、速度が $v=c$ である電子線との間に生じる速度差が問題となっている。例えば0.5mmのサンプル長の

場合、時間分解能の劣化は400fs以上あり、フェムト秒時間分解能を達成するのに大きな妨げとなる。サンプル長を短くすることで対応できるが、吸収の信号強度はサンプル長に比例するので、無制限に短くすることはできない。

そこで、レーザーと電子線を斜めに入射させることで、この問題の解決を図った。レーザーと電子線の角度 θ を $\cos\theta=1/n$ とすれば、速度差の問題は解決される。従来のシステムであるサブピコ秒パルスラジオリシスでは0.01だった水和電子の吸収強度を0.2にまで増加させることが可能である。

2.5 レーザーマルチパルス入射方法

フェムト秒パルスラジオリシスでは、光学系の振動に起因すると考えられる分析光用レーザーの強度揺らぎによる測定データの揺らぎが無視できない。レーザーマルチパルス入射方法を活用し、S/Nの優れた過渡吸収測定が可能となった。

3 新システムの性能

フェムト秒パルスラジオリシスの性能を表1にまとめる。新システムでは、電子線のパルス幅を20fsに、レーザーのパルス幅を60fsにするとともに、従来のサブピコ秒パルスラジオリシスシステムでは400fs以上あったサンプル中での時間分解能の劣化の問題を解決し、最終的にトータルの時間分解能を100fs以下にすることを目標としている。

また、新システムは、電子線パルスの電荷密度が高いことと、サンプル中での光速と電子の速度の違いによる時間分解能劣化の問題を解決したことによりサンプル長を長くできることで、吸収強度を1桁以上も高くできると考えられる。

新しいシステムでは、従来の方法と比べ電子線とレーザーの時間ジッター、サンプル中での速度差による時間分解能劣化を大幅に低減させることを可能にした。

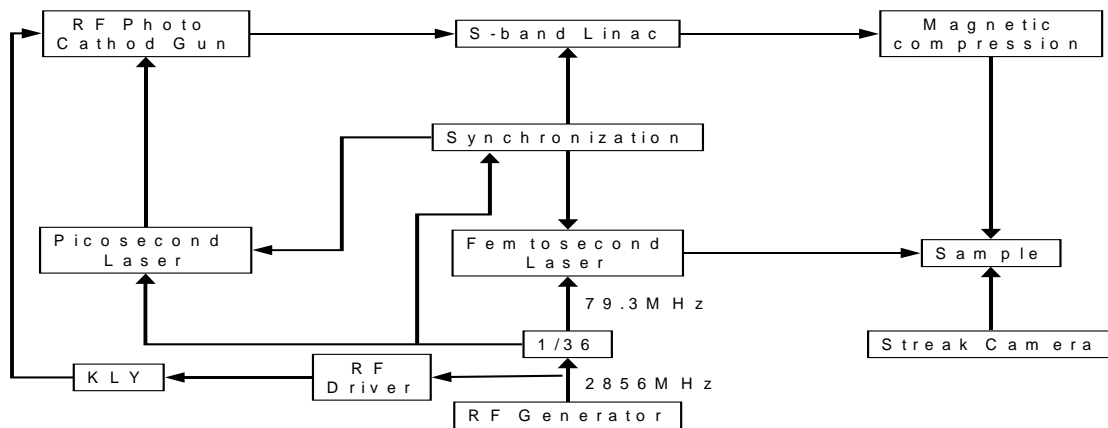


図 2 フェムト秒パルスラジオリシスシステム

表 1 新しいパルスラジオリシスシステムの性能比較

項目	サブピコ秒 パルスラジオリシス (従 来のシステム)	フェムト秒 パルスラジオリシス	アト秒 パルスラジオリシス
電子線のパルス幅	125 fs	20 fs *	< 1 fs *
レーザーのパルス幅	100 fs	60fs *	使用せず
電子線パルスの 電荷量	3 nC	0.1 nC *	非常に弱い (< 0.01 nC *)
電子線のビーム径	2 mm	0.1 mm *	非常に弱い (< 0.1mm *)
電子線パルスの 電荷密度	1 nC/mm ²	15 nC/mm ² *	非常に弱い
水和電子の吸収強度	0.01	0.2 *	非常に弱い
分析光の強さ	十分に強い	十分に強い	非常に強い →コヒーレント放射
トータルの 時間分解能	800 fs	< 100 fs *	< 1 fs *

* . . . 目標値

4 アト秒パルスラジオリシス

さらに、現在計画中のアト秒パルスラジオリシスについて示した。時間分解能をフェムト秒以下にするためには、電子線とレーザーのパルス幅を 1fs 以下にする必要がある。レーザーを使った従来の方法ではレーザーのパルス幅の問題が残り、レーザーを使用しない方法等を検討する必要がある。

5 まとめと今後の展望

阪大産研では、フェムト秒分解能の新しいパルスラジオリシスシステムを開発した。今後、水などをサンプルとして実験を行う予定である。

時間分解能をさらに高め、アト秒領域にまでもっていくためには、電子線パルスにフェムト秒以下にまで圧縮する必要がある。アト秒パルスラジオリシスを構築し、多くの種類の物質内での放射線誘起反応を完全に解明することは非常に重要な研究でありその成果からさまざまな知見が得られるであろう。

参考文献

- [1] T.Kozawa, Y.Mizutami, K.Yokoyama, S.Okuda, Y.Yoshida and S.Tagawa, *Nucl. Instrum. Meth.*A429(1999)471.
- [2] Y.Yoshida Y.Mizutami, T.Kozawa, A.Saeki, S.Seki, S.Tagawa, and K.Usida, *Radit. Phys. Chem.* 60(2001)313.
- [3] T.Kozawa, Y.Mizutami, M.Miki, T.Yamamoto, S.Suemine, Y.Yoshida and S.Tagawa, *Nucl. Instrum. Meth.*A440(2000)25.
- [4] A. Saeki, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* 41 (2002) 4213.
- [5] T. Kozawa, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* 41 (2002) 4208.