

量子ビームの先端応用に関する研究

ーパルスラジオリシス法を用いたレジストの初期反応研究及び

自発共鳴型光共振器の開発ー

研究代表者 保坂 勇志

(理工学研究所 理工研が募集する次席研究員)

1. 研究課題

本研究において研究対象の一つとしているレジスト材料とは、集積回路に微細な回路パターンを描画するリソグラフィ技術において露光前に基板に塗布する感光性の物質であり、リソグラフィの効率や解像度・粗さを左右する機能性高分子材料である。現在、リソグラフィは紫外光(UV 光)が露光光源として用いられているが、UV 光を利用した加工精度向上は限界に達しつつあり、電離放射線である極端紫外光(EUV)・X 線・電子線等の量子ビームの利用へと転換期を迎えている。特に産業応用として EUV リソグラフィが期待されているが、その実現のためには大強度の EUV 光源開発、高感度・高解像度の EUV レジスト開発が急務である。電離放射線である EUV を露光光源として用いる場合、レジスト中で誘起される反応は光化学反応ではなく放射線化学反応となるため、レジスト高性能化のためにはレジスト中の放射線化学反応の理解が不可欠となる。本研究では加速器からの電子ビームを用いて、レジストとして用いられる高分子材料を主な対象に放射線化学反応初期過程の研究を行った。

また、量子ビームの応用として、レーザーコンプトン光源のためのレーザー蓄積用光共振器の研究も行っている。レーザーコンプトン散乱によって生成される X 線は他の X 線生成法に比べて、波長選択性、準単色性、偏光選択性、短パルス性などの優れた性質を持ち、輝度が低いという問題を解決できれば優れた X 線源として利用可能である。X 線輝度の問題を解決するには高強度レーザーを高増大率の光共振器に蓄積させることが重要であるが、一般的な高増大率光共振器ではピコメートル以下の精度の共振器長制御が必要であり、それが技術的な困難となっていた。この問題に対する新しいアプローチとして、自発共鳴型光蓄積共振器の開発を行っている。この手法では、光共振器の透過光を増幅し再度光共振器の種光として入射することによって光学系自体が共振する波長を自発的に選択するため、従来の光共振器で技術的な困難となっていた高精度の共振器長制御が不要となり、これまでの技術的な限界を超える高増大率の光蓄積共振器の実現が期待できる。

2. 主な研究成果

2.1 パルスラジオリシス法を用いたレジストの初期反応研究

試料に短パルス放射線を照射し、発生する短寿命活性種による光の過渡吸収を測定する手法が吸光法パルスラジオリシスである。本実験は大阪大学産業科学研究所の L バンド電子ライナックからのエネルギー 28 MeV・バンチ幅 8 ns の電子ビームパルスを用いて行った。

近年、高分子の THF 溶液中のパルスラジオリシス実験で、THF のラジカルカチオンの素早い減衰に起因する溶質の直接イオン化現象が観測されている。このことは、溶液中のパルスラジオリシス実験で固体中の放射線化学反応の初期過程を模擬できることを提案しており、非常に興味深い現象である。今年度は、一般に広く利用されている電子線レジスト ZEP(日本ゼオン)の分解機構に深くかかわるフェニル基と塩素原子の間の電荷移動錯体について THF 添加による影響を調べた。

図 1 に 0.2 M ポリスチレンのジクロロメタン溶液に THF を複数の異なる濃度で添加した際の 500 nm の過渡吸収時間挙動の変化を示す。ポリスチレンのジクロロメタン溶液の 500 nm の過渡吸収は基本的に電荷移動錯体によるものである。THF の添加により観測されていた電荷移動錯体の収量が減少し、同時に短寿命化している。収量が増えていることから、電荷移動錯体の前駆体であるフェニルラジカルカチオンと THF の反応が推測される。また、電荷移動錯体の短寿命化から電荷移動錯体が THF から水素を引き抜く反応を起こし減衰することが示唆された。これらの結果から、THF 溶液中での ZEP の分解反応は THF による抑制効果を受けることが推察され、ZEP に関しては THF 溶液中のパルスラジオリシス実験による固体中反応の模擬は難しいことが明らかとなった。

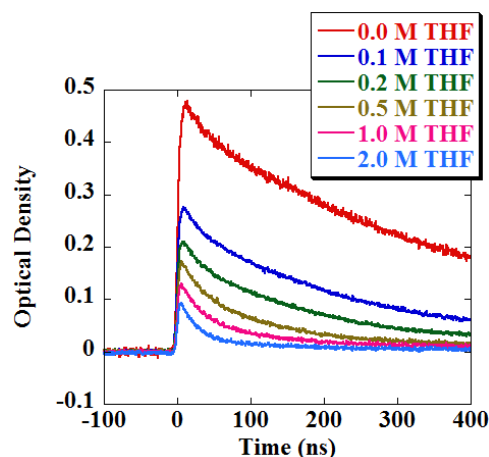


図 1 過渡吸収時間挙動

2.2 新規レーザー蓄積システムの開発研究

自発共鳴型光蓄積共振器をレーザーコンプトン散乱へ応用するためには CW 動作における高フィネス・高強度発振の実証、モードロックによるパルス発振の実証、多くの検証が必要である。本研究では自発共鳴型光蓄積共振器のパルス発振に取り組んだ。構築したレーザー発振器では増幅部に Yb ドープのファイバーアンプを使用しており、パルス化のためにファイバーベースのレーザー発振器として一般的に行われている非線形偏波回転を用いた受動モードロックパルス発振機構を取り入れている。図 2 に概略図を示す。

構築した発振器では、凹面ミラー二枚を用いたファブリペロー型の V 字光蓄積共振器の透過光を光ファイバーに入射し、Yb ドープファイバーアンプにより増幅、再び光蓄積共振器の入射

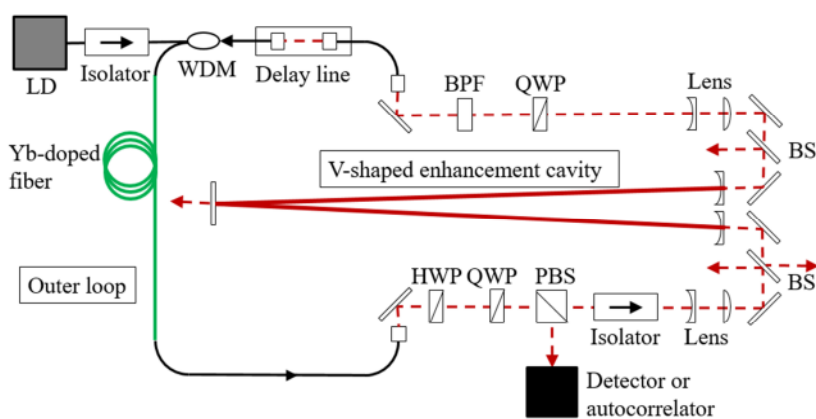


図 2 パルス型自発共鳴型光蓄積共振器概略図

している。自発共鳴型のパルス発振を行う条件として、レーザー発振器全体の周波数の整数倍がファブリペロー型光蓄積の周波数と正確に一致していなければならない。そのため光蓄積共振器の周波数とレーザー発振器の周波数をそれぞれ有効数字 6 桁で精密に測定し、それぞれの周波数を厳密に一致させた。その結果、パルス幅 2-4 ps、波長スペクトル幅 6 nm のパルス発振が得られ、自発共鳴型光蓄積共振器でのモードロックパルス発振が実現することが明らかとなった。今後は外部高

周波トリガーとの同期などの試験を行い、レーザーコンプトン散乱への本光共振器の応用実験を行う予定である。

3. 共同研究者

鷺尾 方一 (理工学研究所 教授)	坂上 和之 (高等研究所 助教)
近藤 孝文 (阪大 産業科学研究所 助教)	大森 恒彦 (高エ研 講師)
高橋 徹 (広大 先端物質科学研究科 准教授)	

4. 研究業績

4.1 学術論文

T. Akagi, S. Araki, Y. Honda, A. Kosuge, T. Omori, H. Shimizu, N. Terunuma, J. Urakawa, T. Takahashi, R. Tanaka, Y. Uesugi, H. Yoshitama, Y. Hosaka, K. Sakaue, and M. Washio, Development of optical resonant cavities for laser-Compton scattering, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B (in press)

Y. Hosaka, Y. Honda, A. Kosuge, T. Omori, K. Sakaue, T. Takahashi, Y. Uesugi, J. Urakawa, and M. Washio, Mode-locked pulse oscillation of a self-resonating enhancement optical cavity, arXiv: 1610.03141 (2016)

Y. Uesugi, Y. Hosaka, Y. Honda, A. Kosuge, K. Sakaue, T. Omori, T. Takahashi, J. Urakawa, M. Washio, Feedback-free optical cavity with self-resonating mechanism, APL Photonics 1, 026103 (2016)

4.2 総説・著書

4.3 講演

Y. Hosaka, Y. Honda, Y. Uesugi, J. Urakawa, T. Omori, A. Kosuge, K. Sakaue, T. Takahashi, M. Washio, Feedback-free self-resonating optical cavity, LCWS 2016

Y. Saito, Y. Soeta, Y. Hosaka, K. Sakaue, M. Washio, DEVELOPMENT OF A FIBER LASER FOR IMPROVING PULSE RADIOLYSIS SYSTEM, 2016 North American Particle Accelerator Conference

他 4 件

4.4 受賞・表彰

4.5 学会および社会的活動

日本放射線化学会会員

日本物理学会会員

日本加速器学会会員

5. 研究活動の課題と展望

レジスト材料のパルスラジオリシス実験では、THF が電荷移動錯体との反応性を有するため固体中反応模擬という意味では難しいことが明らかとなったが、電荷移動錯体との反応性は THF に塩素系芳香族高分子反応の抑制効果があるということを示唆しているため興味深い結果である。

自発共鳴型光蓄積共振器のパルス発振の実験では、光共振器と発振器全体の周波数調整を行い非線形偏波回転によるモードロックパルス発振の実現に成功した。今後、外部信号との同期などの課題をクリアすれば、数十万倍の増大率の光共振器を用いてレーザーコンプトン散乱による高品質・高輝度 X 線光源が実現しうる。