

# 量子ビームの先端応用に関する研究—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新規レーザー蓄積システムの開発研究—

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

加速器から得られる高品質な量子ビームの先端応用の研究を主題とし、放射線化学反応の初期過程を解明する手法であるパルスラジオリシス法を用いたレジスト材料の初期反応に関する研究と、その研究で培ったレーザー・光ファイバーに関する知見を活かした自発共振型の光蓄積共振器の開発研究を行っている。

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転写するリソグラフィ技術において、転写する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。大強度の EUV 光源開発が急務であるが、一方、レジスト中で誘起される反応は光化学反応から放射線化学反応へと変化するため、レジスト中の放射線化学反応の理解が今後のリソグラフィでは不可欠となる。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 線生成法に比べていくつかが優れた性質を持ち、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フィネス光蓄積共振器に蓄積させることが重要であるが、一般的な高フィネス光共振器ではピコメートル以下の精度のミラー制御が必要であり、そこに技術的な問題があった。この問題に対する新しいアプローチとして、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「自発共鳴型光蓄積共振器」の開発を KEK・広島大学と共同し研究している。自発共鳴型光蓄積共振器では共振器が選択した波長のみが発振するため、従来光共振器では必要であった高精度のミラー間隔制御が不要となる。ゆえに、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

物質に短パルス放射線を照射し、物質中で発生する放射線化学反応の初期過程を測定する方法をパルスラジオリシス法と呼ぶ。本研究のパルスラジオリシス実験は吸光法による溶液中過渡吸収スペクトル測定であり、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われた。

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。今回パルスラジオリシス研究で用いた  $\alpha$ -アリルオキシメチルアクリル酸系共重合体 (AMA,  $\alpha$ -allyloxymethyl acrylic copolymer)(日本触媒)は、テトラヒドロフラン(THF)環を主鎖骨格に持つ樹脂組成物である。AMA 共重合体の構造式を図 1 に示す。AMA 共重合体はラジカル硬化性を持ちその上有機溶媒への高い溶解性を示すため、ラジカル硬化性樹脂・レジストのバインダー樹脂などの様々な産業的な応用に利用することができる物質である。一方、AMA 共重合体は THF にも高い溶解性を示し、高粘度の THF 溶液を容易に作成することができる。ゆえに AMA 共重合体を用いることで、移動度の低い高濃度 THF 溶液でのパルスラジオリシス実験が可能であり、実際のレジストの使用環境をより良く模擬した測定が可能だと考えられる。

1 M の AMA 共重合体と 0.25 M のポリスチレンを THF に溶解させた混合溶液についてパルスラジオリシス法による過渡吸収スペクトル測定を行った。結果を図 2 に示す。ポリスチレンのダイマーラジカルカチオンによる長寿命の吸収帯が波長 1100 nm を中心に観測された。さらに、このポリスチレンのダイマーラジカルカチオンの収量と寿命は、追加実験により AMA 共重合体の濃度に依存しない事が分かった。AMA 共重合体の濃度に収量が依存しなかったことから、ポリスチレンのダイマーラジカルカチオンはポリスチレン自体の直接イオン化により生成されたと考察される。以上の結果は、AMA 共重合体を用いることで固体中の放射線化学反応の初期過程をより正確に模擬できることを提案している。

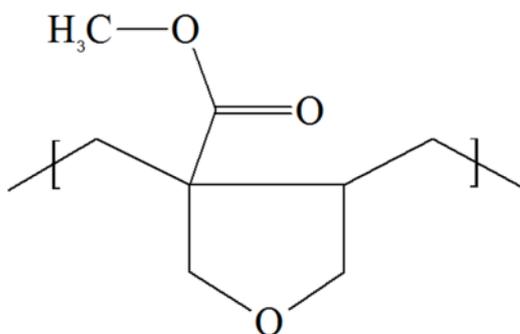


図 1 AMA 共重合体の構造式

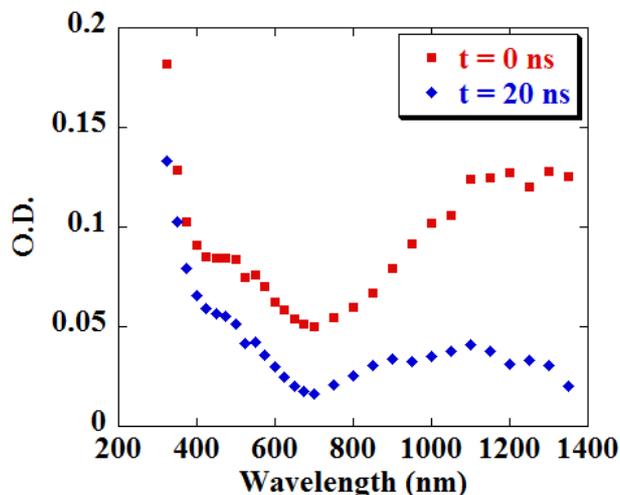


図 2 混合溶液の過渡吸収スペクトル

## 2.2 新規レーザー蓄積システムの開発研究

前述の自発共鳴型光蓄積共振器の実用化には CW 動作における高フィネス化・高強度化、モードロックによるパルス化等、多くの検証が必要である。今回は自発共鳴型光蓄積共振器のパルス発振に関する研究を記載する。自発共鳴型光蓄積共振器のモードロックパルス発振には受動的もしくは能動的なモードロック機構が必要である。今回、増幅部に Yb ドープのファイバーアンプを採用したこともあり、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(NPR: Nonlinear Polarization Rotation)を用いた受動モードロッキングによるパルス発振実験を行った。NPR によって強度に依存した非線形な偏光の回転が生まれるため、ループ内に偏光ビームスプリッターと波長板を配置し偏光回転量の大きい高強度成分をループ内に多く残すように調整することによって、過飽和吸収体をループ内に配置した場合のように位相を揃え、受動モードロックをかけることができる。

実験のために構築した空間中及びファイバーループの概略図を図 3 に示す。凹面ミラー二枚を用いたファブリペロー型の V 字光蓄積共振器を作成し、そ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光としている。これにより、全体がファイバーレーザー発振器となる。

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共振器の周波数と正確に一致していなければならない。光蓄積共振器の周波数を精密測定するため、外部の YAG レーザー(波長 1064 nm)に位相変調をかけた後に光共振器に入射し、さらに光共振器の共振器長をピエゾアクチュエーターでスキャンした。これにより透過光強度の測定から共振器の airy function が得られ、その中に位相変調により変調周波数に応じたサイドバンドのピークが出現する。変調周波数を変化させながらサイドバンドピークとフリースペクトルレンジを比較することで、共振器周波数が厳密に測定できる。今回は変調周波数を共振器周波数のおよそ 5.5 倍にし、サイドバンドピーク間の距離を測定することで測定を行った。結果を図 4 に示す。この方法により共振器の周波数が  $41.3777 \pm 0.0014$  MHz と測定された。この決定精度は、モードロック発振時に予想されるレーザーパルス幅に対して適切な精度である。

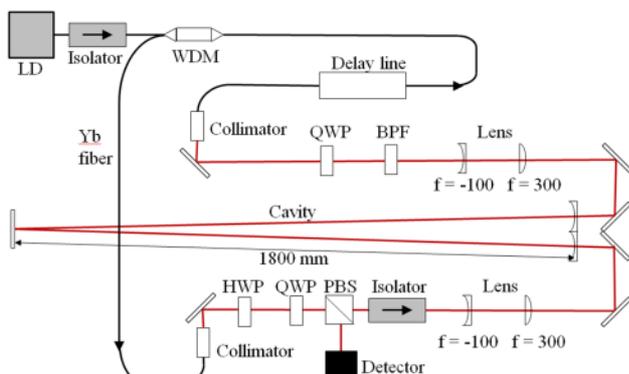


図 3 パルス自発共鳴型光蓄積共振器概略図

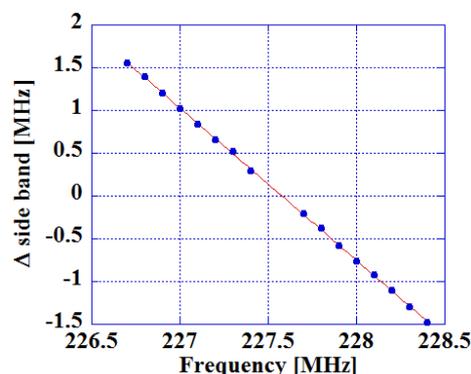


図 4 共振器周波数の測定

### 3. 共同研究者

- 鷲尾 方一 (理工学研究所 教授)
- 大島 明博 (理工学研究所 客員准教授、大阪大学工学研究科 特任准教授)
- 近藤 孝文 (大阪大学産業科学研究所 助教)
- 大森 恒彦 (高エネルギー加速器研究機構 講師)
- 高橋 徹 (広島大学先端物質科学研究科 准教授)
- 坂上 和之 (高等研究所 助教)

## 4. 研究業績

### 4.1 学術論文

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 (in press)

### 4.2 講演

Y. Ito, Y. Hosaka, K. Sakaue, M. Washio, 6th International Particle Accelerator Conference (2015)

C. Wang, Y. Hosaka, Y. Ito, A. Oshima, T. Kondoh, M. Washio, S. Tagawa, 15th International Congress of Radiation Research (2015)

保坂勇志, 赤木智哉, 浦川順治, 大森恒彦, 小菅淳, 本田洋介, 上杉祐貴, 高橋徹, 坂上和之, 鷺尾方一, 第12回日本加速器学会年会 (2015)

保坂勇志, 赤木智哉, 上杉祐貴, 浦川順治, 大森恒彦, 小菅淳, 坂上和之, 高橋徹, 本田洋介, 鷺尾方一, 日本物理学会秋季大会 (2015)

保坂勇志, 上杉祐貴, 浦川順治, 大森恒彦, 小菅淳, 坂上和之, 高橋徹, 本田洋介, 鷺尾方一, 日本物理学会第71回年次大会 (2016)

他4件

## 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、AMA共重合体がサイレントな粘度調整材として機能しているか、具体的に粘度がどの程度変化しているか等、いくつかの検証が不足している。これらの検証が行われれば、THF中における固体反応の模擬に関する画期的な手段となりうる。

自発共鳴型光蓄積共振器のパルス発振の実験では、周波数調整を行いNPR法によるモードロックパルス発振実験を行っているが、発振が不安定であるという問題がある。この問題に対しては、強度をモニターしながら一定の強度を保つように共振器長を制御するフィードバックを行えば安定なモードロック発振が得られると考えられる。自発共鳴型の安定なパルス発振が実現すれば、数十万倍を超える高増大率の光蓄積が容易に可能となり、極めて有用である。