

## 2-2 原子光学と原子リソグラフィ

### 2-2 Atom Optics and Atom Lithography

大向隆三 渡辺昌良

OHMUKAI Ryuzo and WATANABE Masayoshi

#### 要旨

レーザー光で原子の運動を制御し所望のパターンを基板上に描画する原子リソグラフィは、近年のレーザー冷却・原子光学の進歩によって誕生し、現在盛んに研究が行われている。原子リソグラフィは、材料物質を直接制御して微細加工を行う技術であるという点で従来技術とは全く異なる新しいリソグラフィ技術であり、その潜在的な性能の高さからデバイス開発への応用に向けた期待も大きい。しかしながら、現状では描画できる原子種に制限があり、描画性能に改良すべき点があるなど、実用化には幾つかの克服すべき課題が残されている。

そこで我々は、原子リソグラフィにおいて描画分解能の飛躍的な向上を実現するための基礎実験として、原子源の速度制御の効果が原子描画分解能に与える影響を初めて実験的に明らかにした。また、原子リソグラフィの対象原子種を拡大させる目的で、世界で初めてイッテルビウム原子を対象にした原子リソグラフィ実験を行い、首尾よく所望のイッテルビウム原子パターンを作製することに成功した。本稿ではこれらの成果について報告する。

High-resolution atomic channeling using velocity-selected atoms may be able to overcome precision limitations of the conventional atom lithography. We have experimentally clarified the dependence of line width and contrast of atomic patterns in the channeling region on the velocity spread of the atomic source for the first time. Thermal or velocity-selected atomic beams prepared with a one-dimensional magneto-optical trap were employed as the atomic sources. We can show that narrower line width and higher contrast atomic patterns are obtained as the velocity spread becomes narrower. We also successfully produced periodic ytterbium (Yb) narrow lines on a substrate using a near-resonant laser light and the direct-write atom lithography technique. We clearly observed a grating pattern of Yb atoms fabricated on a substrate with a line separation of approximately 200 nm after examining the surface of the substrate with an atomic force microscopy. This is the first demonstration of nanofabrication using the atom-optical approach with Yb atoms.

#### [キーワード]

原子光学, 原子リソグラフィ, 磁気光学トラップ, 光モラセス, チャンネリング  
Atom optics, Atom lithography, Magneto-optical trap, Optical molasses, Channeling

### 1 まえがき

近年のシングルモード波長可変レーザーの技術進歩とあいまって、光の散乱力・双極子力を利用した原子の運動制御に関する研究が精力的に進められるようになった。このような技術は、物質で光を制御する従来の光学とは異質の「原子光学」という新たな分野を生み出した。中で

もレーザー光で運動制御された原子を基板上へ堆積させ所望の微細パターンを作製する原子リソグラフィ<sup>[1]-[4]</sup>は、光の波長スケールの微細な周期構造物を非接触で精密に作製することを可能にし、従来のリソグラフィとは本質的に異なる新たな微細加工技術として大きな関心を集めている。このような手法は3次元フォトリソグラフィの作製への応用をはじめ、次世代の情

報通信デバイス開発に向けた新しいプロセス技術として非常に興味深い。しかしながら、現在までに行われたこの種の実験では描画できる原子の種類や描画性能の点で制限があり、実用化に向けて克服すべき課題に直面している。

そこで我々は、従来の性能を超える原子リソグラフィの実現を目指し、その実現に不可欠な原子ソースの制御技術の一環として1次元の磁気光学トラップ(1D-MOT)[5]を用いた原子ビームのガイド・偏向実験を行うとともに、そこで得られた速度選別ビームを使用することにより原子チャンネルングの高分解能化を達成した[6]。さらに、世界で初めてイッテルビウム(Yb)原子を用いて原子リソグラフィ実験を行い、首尾よく所望の原子パターンを作製することに成功した[7]。本稿ではこれらの実験で得られた結果について報告する。

## 2 原子ビームのチャンネルングとその高分解能化

### 2.1 実験の原理と装置構成

我々は最初に原子リソグラフィの前段階として光定在波が作る双極子力ポテンシャルを利用して<sup>87</sup>Rb原子を光の波長サイズの領域に閉じ込め、半波長周期でチャンネルングする[8]実験を行った。原子源となる原子ビームの速度分布幅を制御して様々な速度分布幅の原子ビームをチャンネルングさせることにより、原子の速度分布幅が原子パターンの性能に与える影響を明らかにし、その高分解能化を図ることを目的とした。

光定在波の中に原子が入射すると、原子には光の双極子力が働く。その力の向きは光定在波を生成する光の離調の符号により決まり、大きさは光の強度勾配に比例する。また、光定在波は半波長周期の空間的強度分布を持つため、原子に対してナノメートルサイズの円筒レンズアレイの働きをする。したがって、空間的にはほぼ一様に分布した原子ビームを光定在波に通すと、原子は光定在波がつくる双極子力ポテンシャル上を振動しながら運動制御され、光定在波の腹または節に半波長の周期でチャンネルされる。

実験配置を図1に示す。本装置構成は大別して三

つの部分よりなる。1番目は原子ビーム発生部である。我々はこの実験でルビジウム(Rb)の原子ビームを使用した。今回の実験では<sup>85</sup>Rbのチャンネルングを目的とし、チャンネルングには<sup>85</sup>Rbの $5S_{1/2} F=3 \rightarrow 5P_{3/2} F=4$ の遷移を利用した。オープンと2個のピンホールを使って得られる広がり角10 mradのRb熱原子ビームを原子源とした。

2番目は速度選別部である。速度選別器は1次元磁気光学トラップ(1D-MOT)を使用し、原子ビームに対して横冷却(コリメーション)を施すと同時に速度選別を行った。1D-MOTをベースにした原子の速度選別・ガイドのスキームは我々が初めて提案するものである。1D-MOT(相互作用長15 cm)は熱原子ビーム軸に対して角度 $\theta$ だけ傾けて配置し、電流の流れる4本の銅ロッド、4枚の長方形ミラー、そして2本のレーザー光によって構成した。レーザー光源は2台の外部共振器型LDを使用した。2台のうち的一方は原子の偏向用光源で、他方はリポンプ用光源として使用した。光強度をそれぞれ10 mW/cm<sup>2</sup>、1 mW/cm<sup>2</sup>とした。これら二つのレーザー光をビームサイズ15 mm × 3 mmに成形して重ね合わせ、さらに $\sigma^+$ 偏光にセットした上で1D-MOTに入射した。レーザー光は4枚の長方形ミラーの間を図1のように多重回反射させ、原子ビームに対して一方向から $\sigma^+$ 偏光の光を、それと逆方向から $\sigma^-$ 偏光の光を原子と相互作用させた。4本の銅ロッドは全て偏向軸と平行に配置し、かつ各々隣接する別のロッドとの距離を1.0 cmとした。これらのロッドに互いに逆向きの電流を流して四重極磁場を発生させた。1D-MOT領域に入射した原子には強い復元力と減衰力が1D-MOT軸に向かって働くため、傾けられたこの軸が偏向軸となる。その結果、広い速度領域の原子をこの偏向軸上へガイドしてきて進路を曲げ、偏向ビームとして取り出すことができる。またこの手法では、横方向のレーザー冷却効果によって偏向ビームを偏向軸に沿って十分にコリメートすると同時にビーム径を圧縮することができるので、偏向ビームの高密度化が期待できる。さらに、レーザー周波数の精密制御により、偏向ビームとして取り出す原子の同位体選別も可能である。

3番目はチャンネルング部である。原子をチ

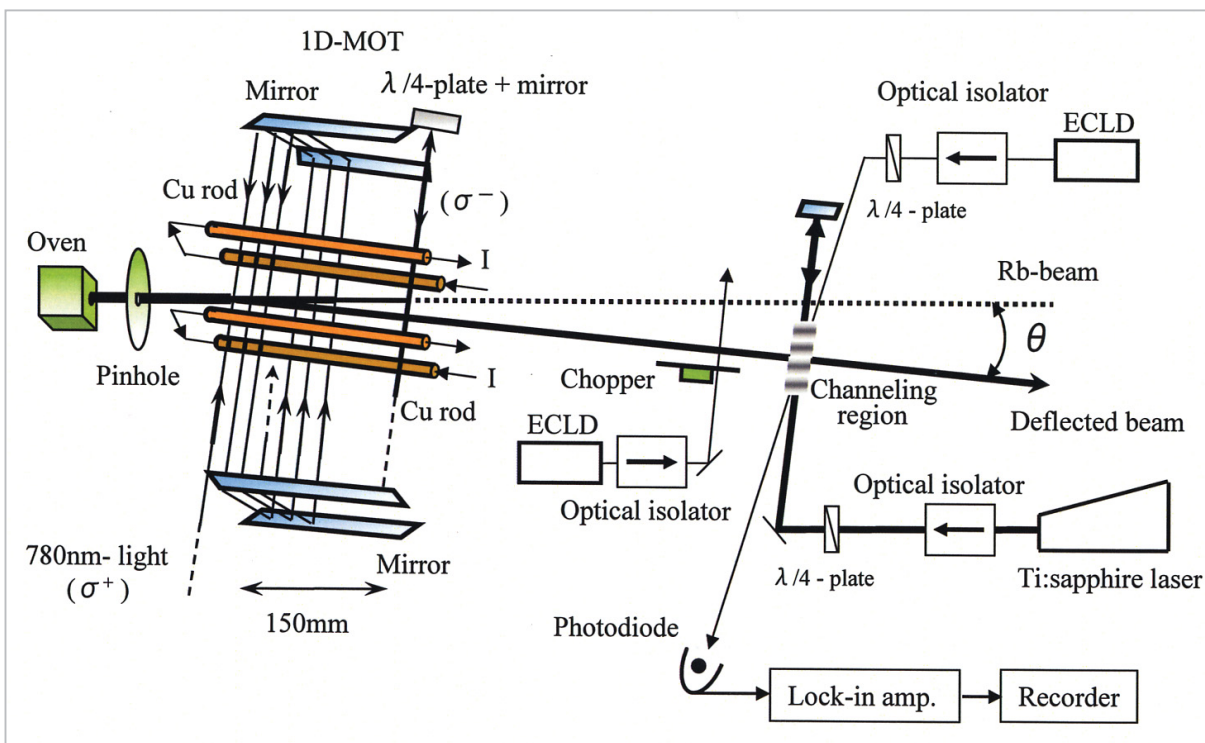


図1 高分解能原子チャンネルング用実験配置

チャンネルングさせるための光定在波は、チタンサファイアレーザーからの出力光をレンズで直径1 mmに絞り、それを原子ビームと相互作用させながら全反射ミラーで往復させて形成した。定在波生成に使用したレーザー光の離調は+200 MHz、パワーは50 mWであった。チャンネルングの特性測定はRb原子の吸収の光シフトを計測する方法で行った。強い光定在波中の位置xに存在する原子の吸収線は、定在波が無いときの原子の(本来の)共鳴周波数( $\nu_0$ )に対して以下の式で表される周波数シフトを示す[8]。

$$\nu(\mathbf{x}) = \nu_0 - \delta \cdot \left\{ \sqrt{1 + \frac{\Omega(\mathbf{x})^2}{\delta^2}} - 1 \right\}$$

ここで、 $\delta$ は定在波の光の離調、 $\Omega(\mathbf{x})$ は位置xにおけるラビ周波数であり、光定在波の光電場に比例する。つまり、原子の吸収線の光シフトから原子の光定在波中における位置をプローブすることができ、また吸収強度からその位置に占める原子の密度を知ることができる。原子の光シフト計測用のプローブ光は、周波数掃引しながら原子ビームに対しほぼ垂直方向から、かつチャンネルング領域を通過するよう入射させた。プローブ光のビーム径は1 mm以下とした。

透過光をフォトダイオードで受けて原子の吸収を計測した。

## 2.2 実験結果

まず1D-MOTを用いた原子の速度選別結果を示す。1D-MOTから35 cm下流で共鳴レーザー光を原子ビームに対し垂直方向から照射し、原子のレーザー誘起蛍光の空間強度分布から偏向原子の空間密度分布を計測した結果を図2(a) - (c)に示す。それぞれ偏向角( $\theta$ )を $4^\circ$ 、 $3^\circ$ 、 $1.5^\circ$ に設定した結果である。いずれのCCDカメラ画像からも二つの蛍光輝点を確認できた。上側は1D-MOTとほとんど相互作用せずに直進した高速原子により生じた輝点であり、下側が偏向原子ビームによって生じた輝点である。偏向変位は偏向角と飛来距離によって算出される値とほぼ一致した。プローブ光の周波数を変化させて調べたところ、偏向ビームは $^{85}\text{Rb}$ だけから構成されていることが分かった。1D-MOTによりガイドされた偏向ビームの速度分布を測定したところ、偏向角を小さくするほど偏向軸上へガイドできる原子の速度の上限は大きくなり、偏向原子密度は増大した。 $\theta = 4^\circ$ の場合、およそ120 m/s以下の原子だけが偏向軸上にガイドされた。 $\theta =$

3°の時には、偏向ビームは180 m/s以下の速度の原子で構成された。 $\theta = 1.5^\circ$ まで小さくすると、偏向軸上にガイドできる原子の速度領域の上限は250 m/sにまで増加し、偏向効率も約40%まで増加した。 $\theta$ の値が小さいほど偏向軸に垂直な方向の原子速度成分が小さくなることと相互作用時間が長くなるために、首尾よくガイドできる原子の速度上限値が小さくなり、偏向効率が減少したと考えられる。図4の結果は偏向ビームが輝点として計測できている点の特徴で、これは偏向ビームが当初の予想どおり偏向軸に沿ってコリメートされていることを意味しており、実際偏向ビームのビーム広がりには1.5 mradと求められた。さらに、ビーム径を計測した結果、すべての場合で偏向ビームの径は熱原子ビームのそれより小さくなっており、 $\theta = 3^\circ$ の時は熱ビームの径が8 mmに対し偏向ビーム径は約2 mmであった。つまり、取り出されたビームは偏向、コリメートと同時に圧縮もされており、原子の高密度化を図ることができた。このような指向性の高い、高密度ビームは原子リソグラフィ用原子源としてふさわしいものである。

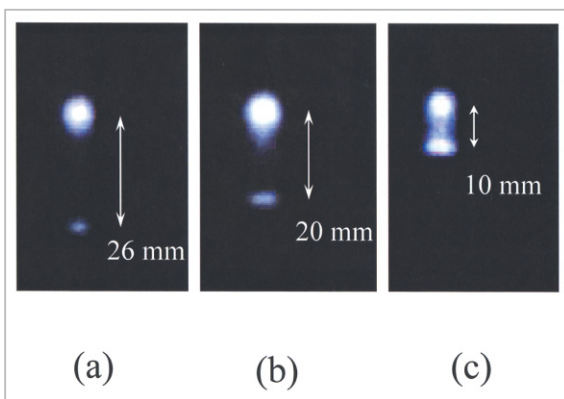


図2 偏向ビーム計測結果

続いて、上記で得られた偏向ビーム(速度選別ビーム)を原子源として、チャンネルングを行った。最初に、最も速度分布幅の広い原子源として熱原子ビームをチャンネルングさせる実験を行い、このときのチャンネルングパターンの特徴を計測した。Rbの熱原子ビームは270 m/sに相当する速度分布幅を持つ。実験で得られたチャンネルング原子の吸収スペクトルを図3(a)に示す。この実験に限っては速度選別の必要が無

いため、1D-MOTの代わりに1次元光モラセスでコリメーション(広がり角1 mrad)だけを行っている。図3(a)は $^{85}\text{Rb}$ の共鳴周波数から100 MHz程度低い周波数領域まで吸収がブロードに現れており、単純な $^{85}\text{Rb}$ のドップラーフリースペクトルとは全く異なる様相を呈している。周波数シフトがゼロの吸収強度は光定在波中の節に占める原子からの寄与であり、周波数シフトが大きくなるにつれ光定在波中の腹に近い位置の原子による吸収を表す。周波数シフトが-120 MHzのときの吸収が、腹の位置に存在する原子の寄与である。周波数シフト量とその吸収強度からチャンネルング時の原子の空間密度分布を求めたのが、図4(a)である。この結果、線幅(半値全幅)で約100 nmのグレーティングパターンを生成できたことが示された。当該パターンのコントラストは約2.6と求められた。得られたパターンには背景層が観測されているが、これはプローブ領域中のチャンネルングに関与しない、あるいは不完全にしかチャンネルングされていない原子からの吸収により生じたものと考えられる。原子源の速度分布幅を狭くして、同様の実験を行った結果が図3(b)と図3(c)である。それぞれ、1D-MOTの偏向角( $\theta$ )を $1.5^\circ$ と $3^\circ$ に設定したときに得られた偏向ビームを原子源としており、これらのときの原子源速度分布幅は100 m/sと50 m/sに対応する。原子源の速度分布幅を狭めてモノベロシティビームの状態に近くするほど、周波数シフトの小さな領域での吸収が増大した一方で、周波数シフトが大きくなるにつれて吸収強度の減少割合は顕著になった。図3(b)と(c)のスペクトルから、原子のチャンネルング時における空間密度分布を求めたのが図4(b)と図4(c)である。 $^{85}\text{Rb}$ 原子の光定在波中における分布が図4(a)のときよりも急峻な分布になっていることが分かる。図4(b)では線幅が83 nmのパターンが観測され、図4(c)のパターンではさらにその値は57 nmまで狭窄化されていることが分かった。この57 nmの線幅(分解能)は典型的な光リソグラフィ技術の描画分解能(100 nm)を越える値である。同時にパターンのコントラストも3.0(図4(b))、3.5(図4(c))にまで改善された。これらの結果から原子源の速度分布が原子チャンネルングの特性に

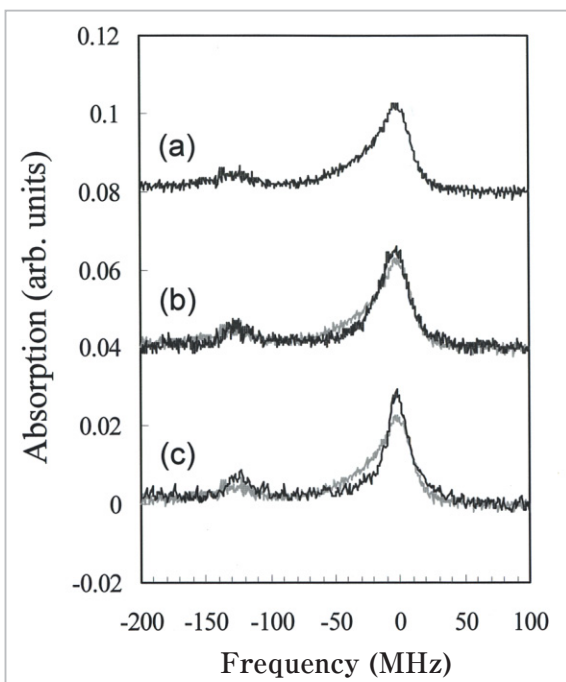


図3 チャンネリング原子の吸収スペクトル  
(b)と(c)には比較のため(a)で得られたスペクトルを重ねて書いてある。

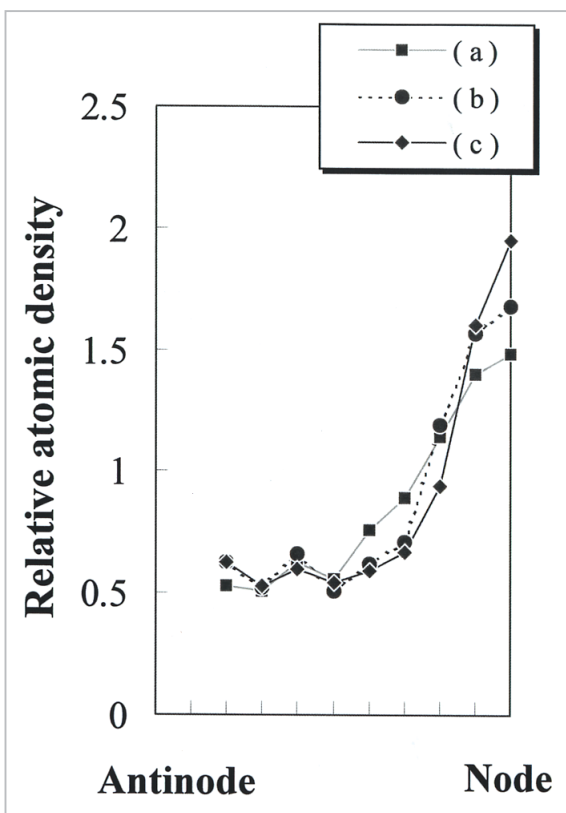


図4 チャンネリングパターンの結果

与える影響が初めて実験的に明らかとなり、原子源の速度分布幅が狭まるほど高分解能な原子チャンネルングが達成されることが明らかとな

った。高精度な原子描画(原子リソグラフィ)のためには高精度な原子操作技術の確立が必要であり、我々の結果はこのような技術の確立のために有益なものと考えられる。

### 3 イッテルビウム原子の原子リソグラフィ

#### 3.1 実験の原理と装置構成

我々は上記で獲得した技術をベースに、チャンネルングされた原子を実際に基板上で堆積させて構造物を作製する実験に取り組んだ。対象とする原子はイッテルビウム(Yb)を選ぶこととした。Ybは、今までに原子リソグラフィ実験で用いられた例が無い。また、Ybは比較的低温(約1000℃)で高密度な熱原子ビームが得られ、真空槽から大気中へ取り出しても構造が崩れないという特長がある。運動制御に必要なレーザー光波長も399 nmなので、市販のレーザー光源を使って発生可能な波長である。さらには、Yb原子は原子気体のボーズアインシュタイン凝縮が達成された数少ない原子種のうちの一つであり[9]、将来的に原子レーザーを用いたリソグラフィ・ホログラフィー技術を展開できる可能性もあるので、この種の実験対象として非常に興味深い。

実験配置を図5に示す。アルゴンイオンレーザー励起のチタンサファイアレーザーとLBO結晶を用いた高効率第二高調波発生装置を光源とした。この光源から、シングルモード(スペクトル線幅1 MHz以下)で出力パワー40 mWの399 nm光を得た。この光源を2台用意し、1台は原子ビームのコリメーションに、もう1台は原子チャンネルングに用いることとした。Yb原子ビームはオープンと二つのピンホールで広がり角4 mradの熱原子ビームを発生させた。Yb熱原子ビームには七つの同位体を含んでいるが、本実験ではそのなかでも最も存在比の大きな<sup>174</sup>Ybを制御することとした。オープン温度は原子描画中(約30分間)は約1100℃に維持した。真空チャンバーは真空度 $1.0 \times 10^{-9}$  Torrに保っておいた。発生したYb熱原子ビームはまず1次元光モラセスで広がり角1.5 mradにまでコリメートし、このコリメートビームを原子描画用の原子源とし

た。光モラセスで使用した 399 nm 光は強度 45 mW/cm<sup>2</sup>、相互作用長を 15 mm にとった。レーザー周波数は <sup>174</sup>Yb の共鳴周波数から 14 MHz だけ負に離調し、温度安定化参照共振器で安定化させた。コリメートビームは、このあと光定在波のなかでチャンネルングされるが、光定在波の強度は 40 W/cm<sup>2</sup>、ビーム径 0.5 mm とした。光定在波は 399 nm 光を 2.1 節に記述の通りミラーで往復させる方法で発生させ、その周波数離調は +1.5 GHz とした。この光定在波の直後にシリコン基板を配置し、チャンネルングされた Yb 原子を堆積させた。堆積のあと、基板を真空層から取り出し、原子間力顕微鏡 (AFM) で表面に形成された構造物の特性を計測することとした。

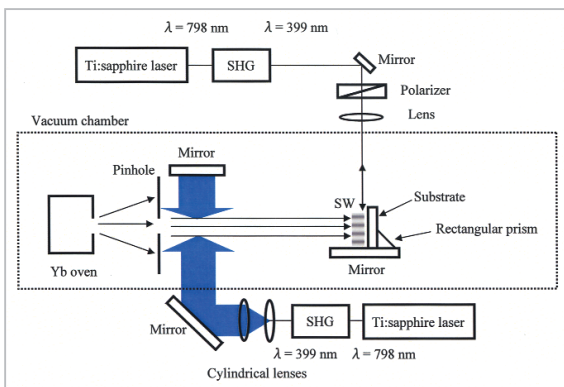


図5 イッテルビウムを使った原子リソグラフィの実験配置

### 3.2 実験結果と考察

上記の実験配置及び手順に従って Yb の原子リソグラフィ実験を行った結果を図6に示す。図6(a)は Yb を堆積させた基板表面を、縦と横それぞれ 10 ミクロンの範囲で AFM にて観察した結果の写真である。色の濃淡でその場所における Yb 原子構造物の高さを表している。この写真から、規則的に、かつ平行に並んだ Yb 原子の細線構造を作製できたことが見てとれる。この細線の高さや線幅も一様である。Yb 構造物の周期は約 200 nm と見積もられたが、この値は我々が原子チャンネルングに使用した光定在波の強度周期 (199.5 nm) にはほぼ一致していた。図6(b)は Yb の周期構造物の典型的な高さ分布を約 3 ミクロンの範囲で示した結果である。高さ分布の計測結果を詳細に検討した結果、細線の周期として 205 ± 9 nm という値を得た。この値は上記の予

想値 (199.5 nm) と誤差の範囲で一致している。また構造物の高さは約 10 nm であり、線幅 (半値全幅) も 93 ± 5 nm であることが分かった。パターン形状、周期とも我々が当初予想したものと合致しており、以上の結果から首尾よく運動制御が行われた結果、所望の Yb 原子パターンの作製に成功したものと結論できた。

次に、本実験で得られたパターン線幅 (約 93 nm) を評価するため、Yb 原子のチャンネルングプロセスを数値シミュレーションで解析することとした。光定在波の強度分布は、簡単のため原子の進行方向に沿って均一とし、光定在波の軸方向 (x 方向) に以下の式で記述できるとして計算した。

$$I = I_0 \cdot \sin^2(2\pi \cdot x/\lambda)$$

ここに λ は光定在波生成に用いた光の波長、I<sub>0</sub> は光定在波の腹の位置における光強度である。原子の速度、入射位置、広がり角をパラメータに、約 400000 の原子に関してチャンネルングプロセスを計算して、生成が期待される Yb 原子パターンを求めた。その結果が図7である。図7(a)は前述の実験条件をそのまま使用して得た計算結果である。横軸は光定在波の節からの変位、縦軸は原子構造物の高さを表す。現在の条件下でも、56 nm の線幅を持つ Yb 原子パターンの生成が期待できることが分かった。この計算値と実験値 (約 93 nm) との差を生じた原因として、基板上での Yb 原子の拡散、光定在波の強度及び周波数揺らぎ、基板位置の振動などが考えられる。また、56 nm という線幅の値を生じる原因としては、Yb 熱原子ビームの不完全なコリメーションや熱速度分布、光定在波の双極子力ポテンシャル形状 (調和振動子型ポテンシャルからのずれ) などが挙げられる。さらに我々は、現在の実験条件のうちどの条件を改善すれば描画線幅を格段に向上できるのか、どこまで狭窄化できるのかに関する知見を得るため、原子ビームのコリメーションをパラメータにとってさらに計算を続けた。原子ビームの広がり角を 1.1 mrad と仮定したときの Yb 原子パターンは、図7(b)のようになると計算できた。計算結果から明らかのように、原子ビームの指向性を高めることでチャンネルング線幅は 42 nm となり、14 nm

相当分の狭窄化が達成された。この広がり角(1.1 mrad)の値はYb原子の399 nmの波長に共鳴する遷移のドップラー冷却限界に当たり、図5の実験配置図中に示した1次元光モラセスに使用するレーザー光強度を現状より増大させることで、達成可能と考えられる。さらに、原子ビームの指向性をこれ以上に向上させて広がり角0.2 mradの原子ビームを原子源としてチャンネルングできたときYb原子パターンを計算したところ、図7(c)のようなパターンが得られた。細線の線幅は今までの計算の中でもっとも狭い値となり、20 nmという値を得た。図7(a)

に比べて36 nmの線幅狭窄であり、約1/3にまで線幅が抑えられたことが分かる。以上のように、原子源となる原子ビームのコリメーションを改善することにより、飛躍的な原子パターン線幅の狭窄化(描画分解能の向上)が達成され得ることがシミュレーション結果から明らかとなった。Yb原子の場合、0.2 mradという広がり角を持つ原子ビームは、Yb原子の持つ禁制遷移( $^1S_0 - ^3P_1$ )を利用したドップラー冷却で到達可能<sup>[10]</sup>であり、従来の399 nm遷移とこの遷移をあわせた1次元光モラセスの採択により実際に実験でデモンストレーションすることもできると考えられる。

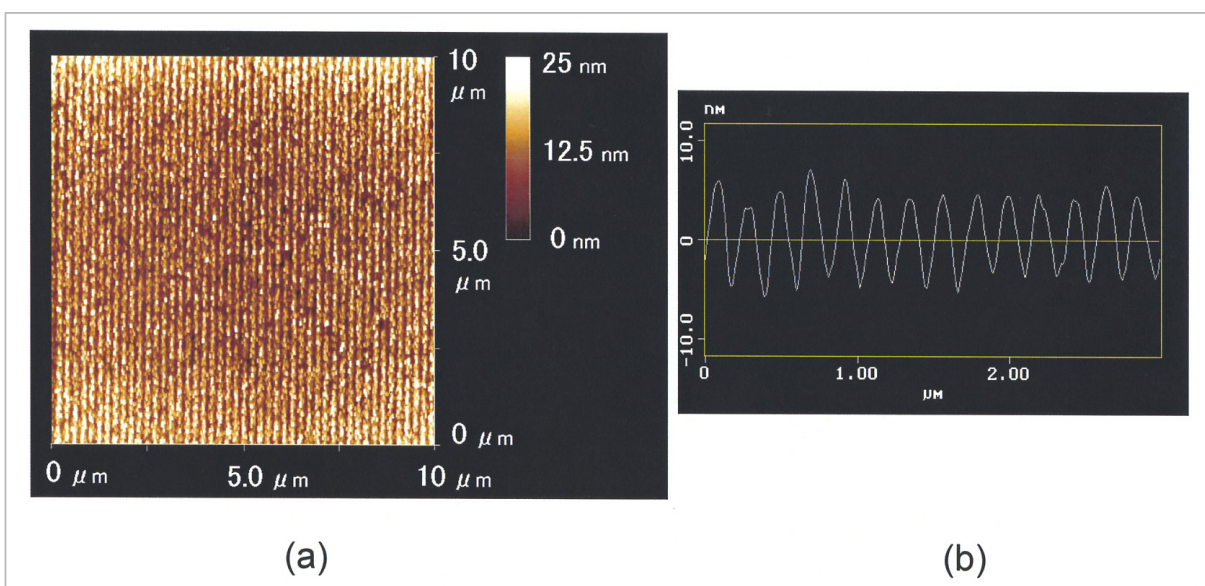


図6 イッテルビウム原子リソグラフィの実験結果

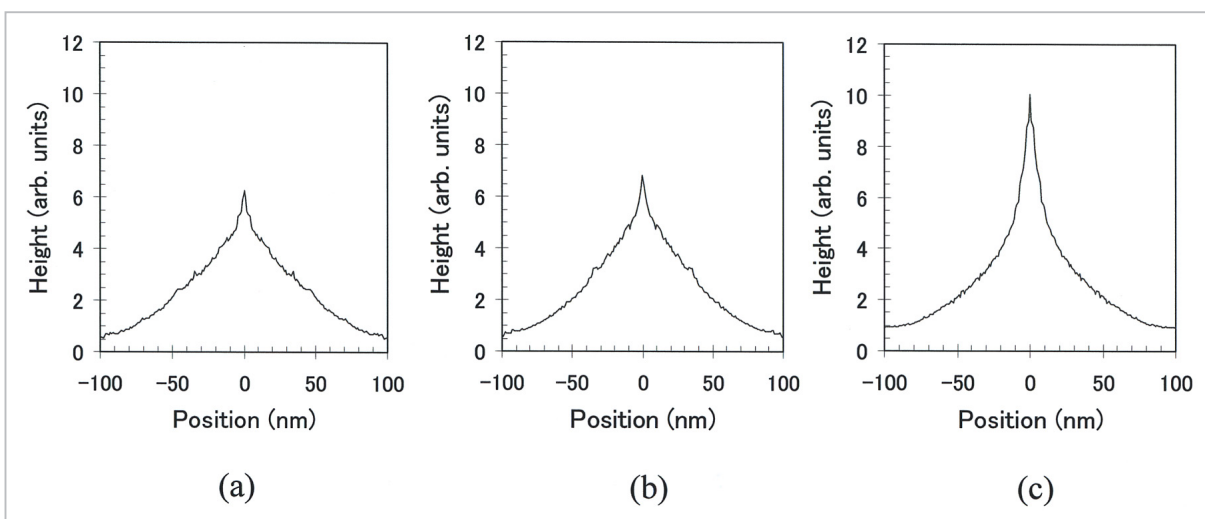


図7 イッテルビウム原子チャンネルングパターンのシミュレーション結果

## 4 まとめ

1D-MOTによるRb熱原子ビームのガイド・速度選別を行い、Rb原子チャンネルングの高分解能化を実験的に初めて達成した。また、Yb原子を用いて実際にチャンネルングされた原子を基板上へ堆積させ、周期的なYb原子細線構造物を作製する実験に成功した。この成果はYb原子を用いた例としては世界で初めて原子リソグラフ

ィーに成功した研究である。これらの技術は、今回実験で用いたRbやYbだけでなく、Cr、AlやInといったプロセス技術において重要かつ実用的な原子にも原理的には適用可能である。今後はこの様な原子種にも対象を広げ、原子ビームのモノベロシティ化を図った上で、描画される原子構造物のさらなる高コントラスト化・細線化へ向けて研究をすすめていく予定である。

### 参考文献

- 1 G. Timp, R. E. Behringer, D. M. Tennant, and J. E. Cunningham: Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 1636.
- 2 J. J. McClelland, R. E. Scholten, E. C. Palm, and R. J. Celotta: Science 262 (1993) 877.
- 3 R. W. McGowan, D. M. Giltner, and S. A. Lee: Opt. Lett. 20 (1995) 2535.
- 4 U. Dorodofsky, J. Stuhler, Th. Schulze, M. Drewsen, B. Brezger, T. Pfau, and J. Mlynek: Appl. Phys. B 65 (1997) 755.
- 5 R. Ohmukai, S. Urabe, and M. Watanabe: Appl. Phys. B 69 (1999) 123.
- 6 R. Ohmukai, S. Urabe, and M. Watanabe: Appl. Phys. B 73 (2001) 647.
- 7 R. Ohmukai, S. Urabe, and M. Watanabe: Appl. Phys. B 77 (2003) 415.
- 8 C. Salomon, J. Dalibard, A. Aspect, H. Metcalf, and C. Cohen-Tannoudji: Phys. Rev. Lett. 59 (1987) 1659.
- 9 Y. Takasu, K. Maki, K. Komori, T. Takano, K. Honda, M. Kumakura, T. Yabuzaki, Y. Takahashi: Phys. Rev. Lett. 91 (2003) 040404.
- 10 T. Kuwamoto, K. Honda, Y. Takahashi, T. Yabuzaki: Phys. Rev. A 60 (1999) R745.



おおむかい たいこう  
大向隆三

基礎先端部門レーザー新機能グループ  
主任研究員 博士(工学)  
原子光学、量子エレクトロニクス



わたなべ まさよし  
渡辺昌良

基礎先端部門研究センター主管 工学  
博士  
レーザー工学、原子光学