

令和 3 年 6 月 21 日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K15402

研究課題名(和文) 超短パルスX線レーザーを用いた次世代超微細加工技術の開発

研究課題名(英文) Study on Next Generation of High Precision Processing Using Ultrashort Pulse X-ray Laser

研究代表者

ドン タンフン(DINH, THANH HUNG)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・主任研究員(定常)

研究者番号：20744808

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：極短パルスの高エネルギー光子を放出するX線レーザーを物質に集光すると、ナノメートル(10億分の1メートル)・フェムト秒(1000兆分の1秒)領域という極微小な空間・時間に高温な電子が高密度に存在する非平衡状態が生じる。この特異な状態は、従来の露光技術と異なり、現像・エッチング等の複雑な工程を大幅に簡略化できる直接ナノ造形法を可能とする。本研究では、日本の自由電子レーザー施設(SACLA)のフェムト秒パルス軟X線を用いて固体材料の加工試験を行った。さらに、分子動力学計算を用いて造形に関わる物理機構を明らかにし、熱の影響が非常に少ない非熱加工と呼ばれる綺麗な除去加工を実現できる可能性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、次世代ナノ加工・造形技術につながる超短パルス軟X線と物質の相互作用を中心とした学術的体系の構築を進めてきた。産業へと展開するために、ナノメートル領域に電子の強励起状態の発生とそれに伴う相転移現象の理解が最も重要なカギを握る。本研究は、実験・理論の両サイドからアプローチし、ナノ構造体の形成に寄与する物理機構を調査し、熱の影響が非常に少ない非熱加工と呼ばれる綺麗な除去加工を実現できる可能性を示した。得られる成果は原子物理学の深化から産業基盤技術のイノベーションに寄与するものである。

研究成果の概要(英文)：Interaction of a solid material with an extremely short and intense pulse of high-energy photons creates a strong electronic excitation state within an ultra-short time and on ultra-small spatial scales. This peculiar state offers the possibility to control the response of a material on a nanometer scale crucial for the next generation of nano-devices. This study aimed to reveal physical mechanisms for nano-structure creation. The author investigated the detailed response on the surface of solid materials which was created by focusing a single femtosecond extreme ultraviolet pulse from the SACLA free-electron laser, in order to establish a connection to microscopic theoretical approaches. The cooling during ablation by means of rapid electron and energy transport can suppress undesired thermal-hydrodynamic motions, allowing silicon material to be directly processed with a precision reaching the observable limitation of an atomic force microscope.

研究分野：光量子科学

キーワード：超微細加工 超短パルスX線レーザー

1. 研究開始当初の背景

(1) 現在の高度な情報化社会を支えている半導体製造産業は、微細なパターンを転写するリソグラフィ技術を量産製造の基盤としている。ウィズコロナの時代において **Society5.0** に向けた取り組みが一気に加速し、人工知能や情報技術の急速な進歩に伴い、情報通信・処理機器の高性能化に不可欠な半導体集積密度の飛躍的向上が強く要求されている。

(2) 光の波長を短くすればその集光サイズをより小さくできるという回折原理から、短波長光源による極微細・超高空間分解の材料加工に大きな期待が寄せられている。そのため、産業界は可視・紫外光から極端紫外線 (EUV)、軟 X 線である波長 **6.X nm** 領域、さらには“水の窓域 (波長 **2.3-4.4 nm**)”を用いた光源開発分野で熾烈な国際競争を繰り広げている。特に我が国は **EUV** リソグラフィ光源開発を大型プロジェクトとして進めてきたが、欧州の連合体制と差が開きつつある。そのため、半導体産業という日本のお家芸とも言える技術開発は衰退の一途を辿りつつある。

(3) 実際、**2019** 年にレーザー生成錫プラズマ (**Laser-Produced Plasma, LPP**) から放射される波長 **13.5 nm** の **EUV** 光源による次世代半導体回路の量産化が欧州で開始されている。一方、**2030** 年以降に、量子論的効果が現れる波長である最後の露光技術とされる極短波長光源・レジスト・光学素子のロードマップが最近になって示され、我が国も産学官連携で研究開発を精力的に推進している。

(4) 一方、超短パルス X 線レーザーを物質に集光すると、従来の可視・紫外域レーザーと根本的に異なる高エネルギー密度状態を作り出せる。内核電子の励起・電離も含めて極微細な時間空間にエネルギーが注入されるため、電子は極度に非平衡な状態 (**Strong Electronic Excitation State: SEES**) になる (ここでの非平衡性は、電子の速度分布関数が **Maxwell-Boltzmann** 分布から大きくずれることを意味する)。この特異な状態は、従来の露光技術と異なり、現像・エッチング等の複雑な工程を大幅に簡略化できる直接ナノ造形法を可能とする。さらに、コヒーレント X 線レーザーの可干渉性により、X 線ホログラフパターンニングへの展開が実用性を帯びてきており、先進ナノ造形技術を数年後には実現できる研究段階まで来ている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、次世代ナノ加工・造形技術につながる超短パルス軟 X 線と物質の相互作用を中心とした学術的体系を構築することである。産業へと展開するために、ナノメートル領域に電子の強励起状態の発生とそれに伴う相転移現象の理解が最も重要なカギを握る。本研究では実験・理論の両サイドからアプローチし、ナノ構造体の形成に寄与する物理機構を調査する。

3. 研究の方法

本研究では、超短パルス軟 X 線レーザーを用いて、半導体などの固体材料の加工試験を実施した。さらに加工・造形の物理機構を明らかにするために、X 線領域の光の吸収による原子と電子の振る舞いを組み込んだ分子動力学計算 **XTANT (X-ray-induced Thermal And Non-thermal Transitions)** コードを用いて理論解析を行った。

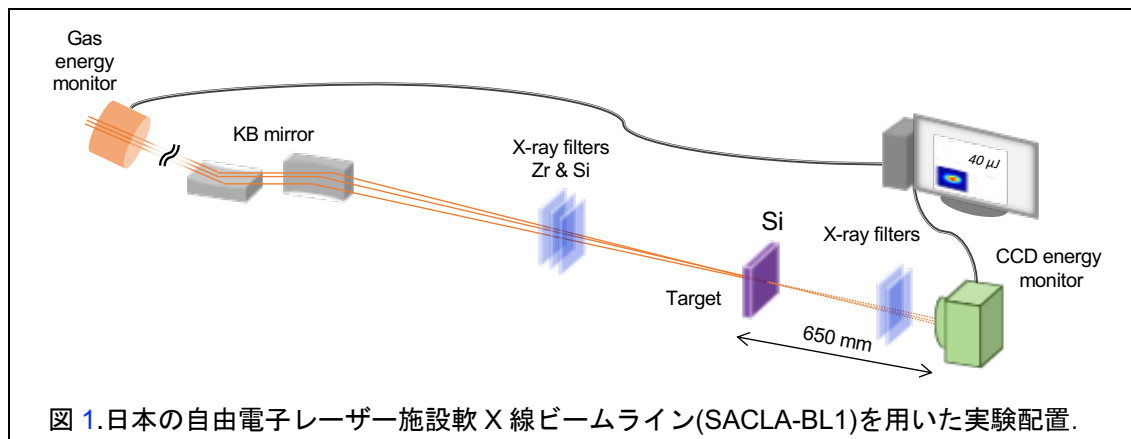


図 1.日本の自由電子レーザー施設軟 X 線ビームライン(SACLA-BL1)を用いた実験配置。

4. 研究成果

(1) 日本の自由電子レーザー施設 **SACLA** の軟 X ビームライン(**BL1**)を用いて、半導体材料のシリコン(**Si**)の加工試験を行い、理論解析結果と比較した。本加工試験の配置は図 1 に示す。その結果、材料の吸収が少ない軟 X 線領域の光を利用する場合、図 2 の左側に示す、熱の影響が

比較的に大きい加工痕が得られた。一方で、材料の吸収が多い軟 X 線領域の光を利用する場合、図 2 の右側に示す、熱の影響が非常に小さい加工痕が確認でき、非熱加工と呼ばれる綺麗な除去加工を実現できる可能性を示した。

(2) また、XTANT を用いて予測した加工閾値（加工に必要最小限の面積あたりのレーザーエネルギー）は、図 3 に示すように、吸収が少ない軟 X 線領域では実験で得られた結果との差が小さい一方、吸収が多い領域では、実験値がより大きく、その差が開いた結果となる。この結果から、加工物理モデルの構築においては XTANT コードのさらなる高度化が必須と考えられる。

(3) 一方で、自由電子レーザーの代替光源として、プラズマ軟 X 線レーザー(XPL)・高次高調波発生(HHG)の小型光源がある。これらの光源技術を用いて、加工試験を実施した。高分子材料などの加工閾値が比較的低い材料に対しては加工痕が確認できたが、Si など加工閾値が比較的高い材料に対しては加工痕が確認できなかった。今後、汎用性が高い超微細レーザー加工システムを構築するためには高出力・小型 X 線レーザーの開発が必須である。

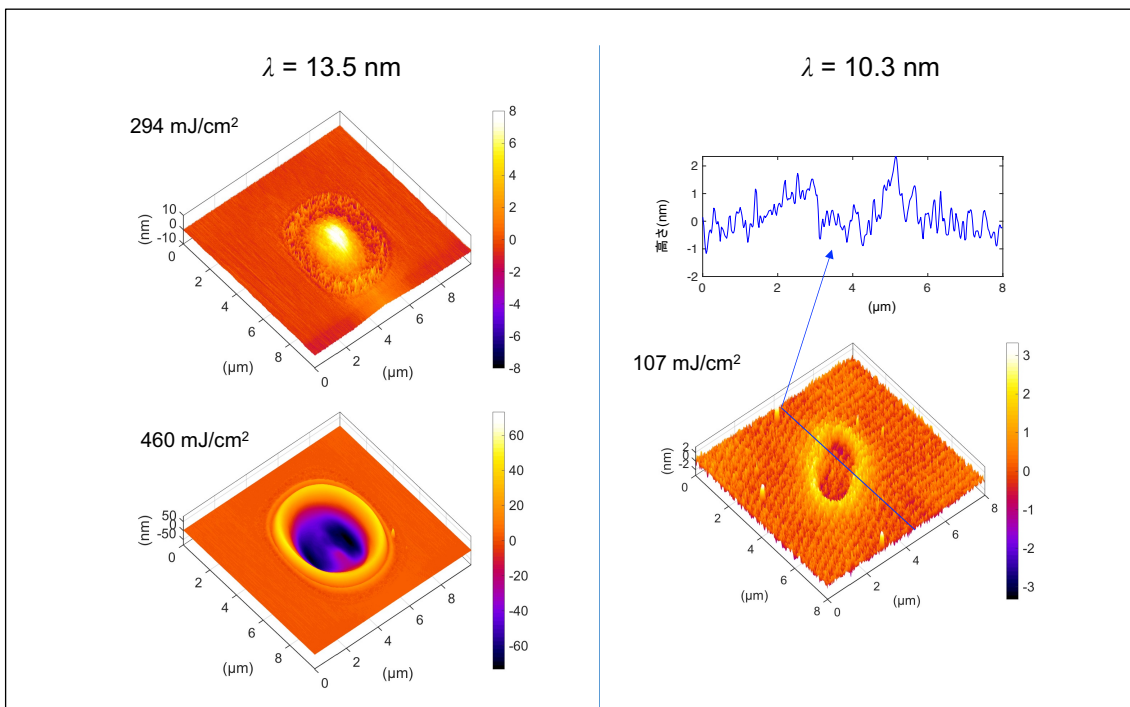


図 2. 軟 X 線自由電子レーザーの照射波長によるシリコン基板の熱的（左）と非熱的（右）加工痕。照射痕の形状は原子間力顕微鏡を用いて計測した。

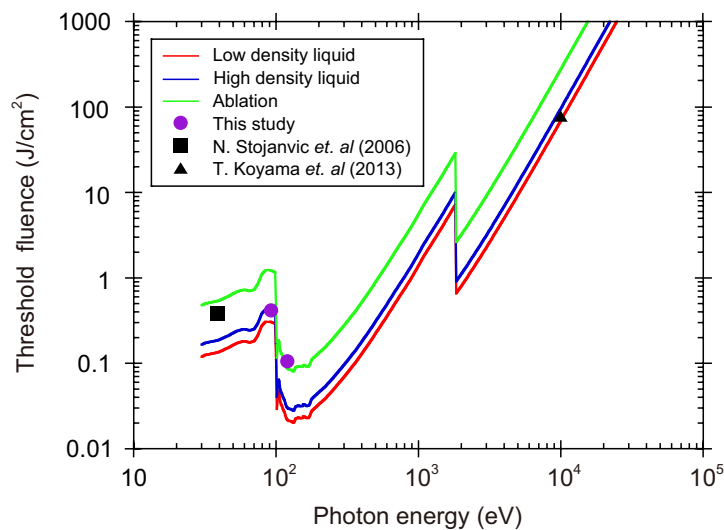


図 3. 実験結果と分子動力学計算(XTANT)との比較。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Tatsunori Shibuya, Kazuyuki Sakaue, Hiroshi Ogawa, Thanh-Hung Dinh, Daisuke Satoh, Eichi Terasawa, Masakazu Washio, Masahito Tanaka, Takeshi Higashiguchi, Masahiko Ishino, Yuya Kubota, Yuichi Inubushi, Shigeki Owada, Masaharu Nishikino, Yohei Kobayashi, Ryunosuke Kuroda	4. 巻 59
2. 論文標題 Ablation threshold and crater morphology of amorphous and crystalline SiO ₂ glass for extreme ultraviolet femtosecond pulses	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 122004
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abc85a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Carles Serrat, Jozsef Seres, E. Seres, Thanh-Hung Dinh, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, Shinichi Namba	4. 巻 28
2. 論文標題 Parametric attosecond pulse amplification far from the ionization threshold from high order harmonic generation in He ⁺	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 24243
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/OE.398595	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Thanh-Hung Dinh, Nikita Medvedev, Masahiko Ishino, Toshiyuki Kitamura, Noboru Hasegawa, Tomohito Ootobe, Takeshi Higashiguchi, Kazuyuki Sakaue, Masakazu Washio, Tadashi Hatano, Akira Kon, Yuya Kubota, Yuichi Inubushi, Shigeki Owada, Tatsunori Shibuya, Beata Ziaja, Masaharu Nishikino	4. 巻 2
2. 論文標題 Controlled strong excitation of silicon as a step towards processing materials at sub-nanometer precision	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 150
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s42005-019-0253-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Masahiko Ishino, Thanh-Hung Dinh, Yuji Hosaka, Noboru Hasegawa, Kimio Yoshimura, Hiroki Yamamoto, Tadashi Hatano, Takeshi Higashiguchi, Kazuyuki Sakaue, Satoshi Ichimaru, Masatoshi Hatayama, Akira Sasaki, Masakazu Washio, Masaharu Nishikino, Yasunari Maekawa	4. 巻 59
2. 論文標題 Soft x-ray laser beamline for surface processing and damage studies	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Optics	6. 最初と最後の頁 3692
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/AO.387792	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Katsuhiko Mikami, Masahiko Ishino, Thanh-Hung Dinh, Shinji Motokoshi, Noboru Hasegawa, Akira Kon, Yuichi Inubushi, Shigeki Owada, Hiroo Kinoshita, Masaharu Nishikino	4. 巻 45
2. 論文標題 Laser-induced damage thresholds and mechanism of silica glass induced by ultra-short soft x-ray laser pulse irradiation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Optics Letters	6. 最初と最後の頁 2435
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OL.389288	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuji Hosaka, Tomoko Oyama, Hiroki Yamamoto, Masahiko Ishino, Thanh-Hung Dinh, Masaharu Nishikino, Yasunari Maekawa	4. 巻 115
2. 論文標題 Sensitivity enhancement of poly(methyl methacrylate) upon exposure to picosecond-pulsed extreme ultraviolet	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 73109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5116284	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 Thanh-Hung Dinh, Masahiko Ishino, Toshiki Kitamura, Yoshiteru Yonetani, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino
2. 発表標題 フェムト秒極端紫外線レーザーによる自己組織微細構造体の形成に関する研究
3. 学会等名 一般社団法人レーザー学会学術講演会第41回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Thanh-Hung Dinh, Masahiko Ishino, Yoshiteru Yonetani, Toshiki Kitamura, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino
2. 発表標題 Self-organization of nano-structures induced by an intense pulse of femtosecond EUV laser
3. 学会等名 研究会「光の軌道角運動量の発生機構と物質相互作用の理解」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Thanh-Hung Dinh, Masahiko Ishino, Yoshiteru Yonetani, Toshiki Kitamura, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino
2. 発表標題 Formation of self-organized periodic nano-structures by an intense pulse of femtosecond EUV laser
3. 学会等名 International Conference on X-Ray Lasers 2020 (ICXRL 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Thanh-Hung Dinh
2. 発表標題 Highly precise material processing by ultrashort pulse soft x-ray laser
3. 学会等名 The 15th Symposium of Japanese Research Community on X-ray Imaging Optics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Thanh-Hung Dinh, Michiaki Mori, Kiminori Kondo, Alexander S. Pirozhkov, Noboru Hasegawa, Masaharu Nishikino, Tetsuya Kawachi
2. 発表標題 Recent activities of ultra-high intensity laser-driven x-ray generation at KPSI Japan
3. 学会等名 SPIE Optics+ Photonics2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Thanh-Hung Dinh, Noboru Hasegawa, Masahiko Ishino, Shinichi Namba, Masaharu Nishikino
2. 発表標題 Plasma-based X-ray Laser: Recent progress at the QST-KPSI
3. 学会等名 Eleventh International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 表面造形方法及び表面造形装置	発明者 石野雅彦, タンフン ヂン, 錦野将元 et al.	権利者 量研、宇都宮 大、東大
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-195528	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

超短パルス軟X線レーザー特有の表面加工メカニズムを解明 - ナノスケールの超精密・直接加工が可能に！ - https://www.qst.go.jp/site/press/35558.html

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------