

平成22年6月1日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19540414
 研究課題名（和文）計算機ホログラムを用いた原子リソグラフィーの描画自由度拡張に関する研究
 研究課題名（英文）Researches on the atom lithography using the computer-generated holograms
 研究代表者
 大向 隆三（OHMUKAI RYUZO）
 埼玉大学・教育学部・准教授
 研究者番号：40359089

研究成果の概要（和文）：新たなナノ加工技術になると期待される原子リソグラフィー技術において、計算機ホログラムと近接場で発生させた光マスクで原子の微細構造物を作製する基盤技術を開発した。具体的には、原子源となる極低温原子の発生効率を100倍程度高める技術の開発に成功するとともに、光マスク生成用に紫色半導体レーザーをベースとした光源を開発した。さらに原子描画性能に大きな影響を及ぼす光マスクの安定性について、2時間にわたり周波数にして0.4 MHz以下の変動以内で高安定に発生する技術を開発した。

研究成果の概要（英文）：We developed the fundamental techniques of atom lithography using the computer-generated holograms and the evanescent wave, which is a promising candidate for the novel nanofabrication. We improved the efficiency in generating the ultra-cold atoms for the atom source of lithography. We also developed the light source near a wavelength of 400 nm with a violet laser diode. The frequency of the 780nm-light was stabilized less than 0.4 MHz for 2 hours with the saturation signal of the rubidium atoms, which is applicable to stabilizing the optical mask in lithography.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|---------|-----------|
| 2007年度 | 1,700,000 | 510,000 | 2,210,000 |
| 2008年度 | 800,000 | 240,000 | 1,040,000 |
| 2009年度 | 600,000 | 180,000 | 780,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,100,000 | 930,000 | 4,030,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・原子・分子・量子エレクトロニクス・プラズマ

キーワード：原子リソグラフィー

1. 研究開始当初の背景

近年の周波数可変で狭スペクトルなレーザー技術の進歩により、原子の運動を光によって非接触かつ高精度に制御することが可能となった。レーザー冷却に代表されるこのよう

な技術は、「原子」という物質の最小構成単位の集団（原子線）を効果的に運動制御できる唯一の方法がレーザー光を用いる方法であるというメリットと相俟って、高精度な3次元マテリアル・デザインの実現を通じて量子効

果デバイス、イオン注入を利用した新奇材料探索・創製、ナノ領域における新しい長さ標準への活用など工業応用的観点から多岐にわたる波及効果が期待されている。原子線を光の双極子力で微小領域に集束させ、その集束原子を基板へ堆積させて原子構造物を作製する原子リソグラフィ技術は、基礎的・物理的原理を上記のような実用的技術へ深化・展開させるためのキー・テクノロジーと考えることができると同時に、それ自体が次世代ナノ・ファブリケーションに向けたユニークな基盤技術として高い技術的潜在能力を有している。従って、その研究進展は極めて大きな技術的重要性を持つ。しかし、今までの原子リソグラフィ研究では、実際に作製された原子構造物が1次元周期構造(グレーティング・パターン)か、二次元周期構造(ドット・パターン)に限定されてきた。現在試みられている研究がうまく進展しても、生成パターンの自由度は原理的にそれらの派生形にとどまるであろうと考えられている。この原子リソグラフィの描画自由度に関する課題は、当該技術を汎用的なナノ・ファブリケーション技術へ展開していく上で極めて深刻な問題であると考えられる。

2. 研究の目的

上記のような内容を踏まえ、本研究では任意のパターンを原子で描画することのできる原子リソグラフィの開発にむけた基盤技術開発を主たる目的として研究を実施した。我々は今までに世界で初めて希土類元素であるイッテルビウム(Yb)原子を使った原子リソグラフィ実験に成功し、原子リソグラフィの適応原子種の拡大に貢献してきた。さらに高強度・遠共鳴レーザー光を使った原子リソグラフィを提案し、原理的にあらゆる原子を対象に適応できる原子リソグラフィの実現に向けた基盤技術を開発してきた。これらの研究の中で、描画パターンの自由度を制限する本質的問題は、原子の運動制御に用いる光の場(光マスク)として光定在波しか用いられてこなかった点にあるという結論に達した。光定在波は比較的簡単に数百ナノメートルのサイズで光の強度分布変化を作ることができる反面、強度分布変化にバリエーションをもたせることが極めて困難である。本研究の核心部分は、光マスクを光定在波で供給するという発想を捨て去り、新たに透過型の計算機ホログラムによって発生させる方法を確認し、その光の場で運動制御された原子を基板上に堆積させ微細構造を作製することである。計算機ホログラムはあらかじめ再生

するパターン形状から数値計算によってホログラムを製作することができる。本研究の遂行により、極めて自由度の高い光マスク生成法を確認し、原子リソグラフィの描画自由度に関する制限を一気に解消すること狙う。このこと自体学術的価値は高いが、加えて実際のデバイス設計に向けて応用可能な原子加工技術が実現することとなり、例えば光の波長程度の周期を持つ微細構造物加工が求められる3次元フォトニック結晶の研究や、制御された均一な量子ドット作製に基づく単一光子光源開発などの量子通信技術、原子の核スピンを利用した量子コンピューティング素子の開発などの飛躍的な進展に直接貢献できると期待される。いずれも次代を担う重要なコア技術であり、それゆえ本研究成果は極めて大きなインパクトを与えるアウトカムを創出すると期待される。

3. 研究の方法

(1) 極低温原子発生の高効率化に関する研究

我々の原子リソグラフィ・スキームでは、基板表面で発生させた近接場光(エバネッセント波)を光マスクとして使用する。近接場光を用いれば原子に対して効果的に双極子力を作用させることが期待できるが、その反面、双極子力ポテンシャルは室温での原子の運動エネルギーと比べても格段に小さく、近接場で原子の微細構造物を生成するためには、運動エネルギーの抑制された極低温原子を用いる必要がある。ここでは、原子の微細構造物作製を念頭におき、単に極低温原子を発生させるだけではなく、効率的にそれを発生させることのできる技術の開発に取り組んだ。

本実験では今までにレーザー冷却実験の報告例が豊富にあるルビジウム(Rb)原子を使用した。本実験で用いた真空チャンバーと磁気光学トラップ(MOT)の実験装置をFig. 1に示す。MOTは四重極磁場(反ヘルムホルツコイルにより供給)と3組の円偏光レーザー光ペアで構成され、レーザー光と磁場の作用によって原子をドップラー冷却限界温度にまで冷却し、ほぼ静止した状態の原子を四重極磁場の中心に捕獲することができる実験技術である。この実験では、前述の目標を達成するためにMOTのレーザービーム径を可能な限り大きくとるよう光学配置を工夫した。これにより原子の冷却・捕獲領域が飛躍的に拡大し、冷却原子数は従来に比べて大幅に増大すると期待される。Rb原子はアンブルから真空層へ供給される。光源は単一周波数のリングレーザー(出力500 mW)と半導

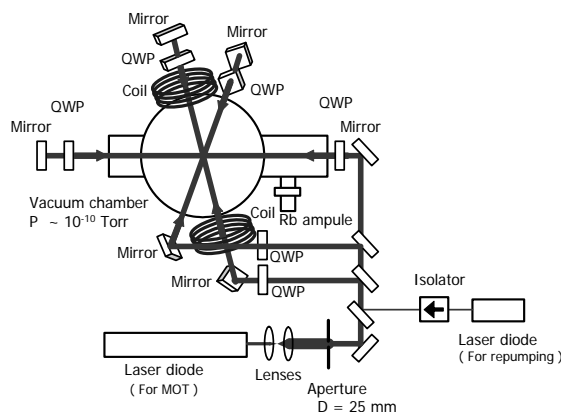


Fig. 1 Setup for efficient generation of ultracold atoms

体レーザー（出力 5 mW）を使用した。両方のレーザーとも、参照共振器を用いて発振周波数を安定化している。リングレーザーは冷却・捕獲用、半導体レーザーはリポンプ用光源として使用した。光ビーム径はレンズのペアとアパーチャーを用いて直径 25 mm まで拡大したあとビームスプリッターで 3 本に等分割し、それらのビームを真空チャンバー中へ互いに垂直な 3 軸 (x, y, z 軸) 方向から照射させ、チャンバーを出たあと全反射ミラーで反射した。

(2) Yb 原子用 LD ベースレーザー光源研究

我々がリソグラフィーの対象物質としている Yb 原子は 399 nm に共鳴波長を持つ。従来、Yb 原子を光で運動制御するには、グリーンレーザー励起のチタンサファイアレーザーから得られる出力光の第二高調波を使用するのが一般的であった。しかし我々は、このような光源の新しい候補として紫色 LD を用いた光源開発を行なった。紫色 LD チップの単体動作では不可避のモードホップや多モード発振などの現象を取り除くため、回折格子を用いた光フィードバックの手法を駆使し、LD 光源のシングルモード発振とチューナビリティの向上を同時に達成することを試みた。

本実験で採用した実験配置を Fig. 2 に示す。紫色 LD チップ (Nichia NDHV310APC) を、温度制御機能の付いた LD 専用ドライバー (ネオアーク DPS - 6001) を用いて動作させた。紫色 LD から出射した光をコリメーティングレンズで平行化し、浅い角度で回折格子 (溝数 1200 本/mm) に入射させた。このときに発生した 1 次回折光をミラーで反射させた。このミラーは、反射光を来た経路を逆に進ませるような配置をしていて、これにより回折格子で波長選択した光を LD にフィードバック (光フィードバック) させ、スペクトル線幅の狭窄化をはかる。波長のチューニングは、まずミラーの角度を変えてフィードバックさせる光の波長を調節し粗調を行い、そのあとミラーの位置をアクチュエーターで制御し共振器長を変化させることにより微調した。目安として共振器長が約 5 cm となるようミラーを配置した。回折格子からの反射光は、高分解能分光用レーザー出力光として取り出し、その一部をファブリーペロー干渉計 (周波数分解能 3 MHz) 及び波長計 (Coherent Wavemate-DX) に入射させ、LD 光源の特性 (スペクトル線幅と発振波長) を評価した。

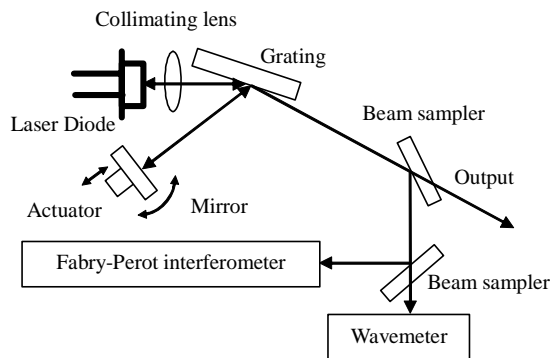


Fig. 2 Experimental setup for violet LD

ドバック (光フィードバック) させ、スペクトル線幅の狭窄化をはかる。波長のチューニングは、まずミラーの角度を変えてフィードバックさせる光の波長を調節し粗調を行い、そのあとミラーの位置をアクチュエーターで制御し共振器長を変化させることにより微調した。目安として共振器長が約 5 cm となるようミラーを配置した。回折格子からの反射光は、高分解能分光用レーザー出力光として取り出し、その一部をファブリーペロー干渉計 (周波数分解能 3 MHz) 及び波長計 (Coherent Wavemate-DX) に入射させ、LD 光源の特性 (スペクトル線幅と発振波長) を評価した。

(3) 高安定光マスク生成の開発研究

原子リソグラフィーには、原子間力顕微鏡等の装置を用いて観測可能な微細構造物を作製するために、10 分以上の時間を要する。この描画作業の間、レーザー光源は外的な環境変化に影響されず安定して発振周波数を維持する必要がある。そこで我々は、高安定な光マスク生成を実現するために、参照共振器と高安定近赤外光を用いた光源システムを提案し、その実現のために不可欠な高安定近赤外光の発生技術に関する研究を行なった。

研究で用いた実験配置を Fig. 3 に示す。外部共振器型近赤外 LD (出力 3 mW) からの

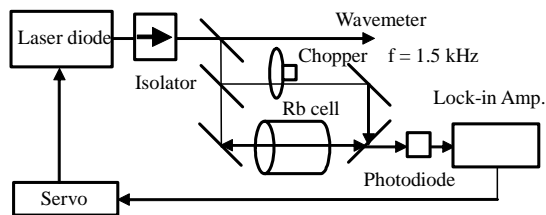


Fig. 3 Setup for frequency stabilization

出力光を光アイソレータに通し、ビームサンプリャーで2つのビームに分けた。一方は波長計に入れて波長の値をモニターするために使用し、もう一方を原子分光用の光とした。原子分光用の光はさらにハーフミラーで等分され、2つの光はRb原子の封入されたガラスセルに対して逆向きに同じ経路で入射させた。LDの発振波長を変化させながらRbセルの透過光強度をフォトダイオードでモニターし、チョッパーを用いてロックイン検出を行なうことにより、高感度にRb原子の飽和吸収信号を検出した。得られた信号はサーボ回路に入力した。この回路は、オフセット操作回路、比例制御回路、積分制御回路、加算回路により構成されている。これらの制御のあとサーボ回路から出力される信号を誤差信号としてLDの注入電流へフィードバックさせることにより、外部共振器型近赤外LDの発振周波数をRb飽和吸収信号のフリンジ（吸収スペクトルのスロープ）へ安定化させるよう試みた。

4. 研究成果

(1) 極低温原子発生の高効率化に関する研究

真空チャンバーに備えたビューポートからCCDカメラを使いRb原子の捕獲・冷却の様子を観察した。その結果をFig. 4に示す。加えた磁場勾配は10 G/cmである。中央の白い部分がRb原子の放つレーザー誘起蛍光である。原子がほぼ静止した状態でこの位置に集められ局在化しているために、Rb原子がMOTのレーザー光を吸収して蛍光を発生し、強い蛍光スポットとして観測されている。MOTによる原子の冷却・捕獲が確認された。この蛍光スポット（原子雲）のサイズを計測したところ、10mm×7mm×7mmであった。

次に、この原子雲に存在する原子の空間密度を決定するため、冷却Rb原子雲による共鳴プローブ光（強度2 mW/cm²）の吸収率を計測した。MOT動作時における冷却Rb原子雲による透過率は15%（吸収率は85%）で

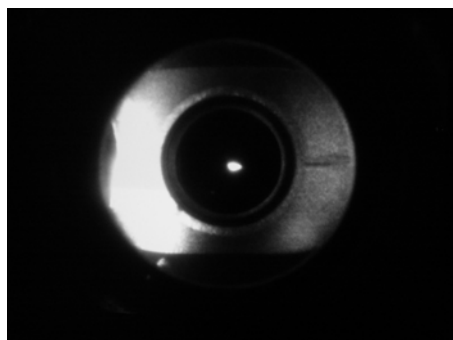


Fig. 4 Laser induced fluorescence of atoms

あった。この透過率からMOT原子雲の空間原子密度は 1×10^9 (1/cm³)と見積もることができた。この密度の値と前述の原子雲サイズを用いて我々のMOTで捕獲・冷却できた原子の総数を算出すると、 5×10^8 という値が得られた。通常のMOTによる捕獲原子数は 10^6 個程度であるから、本実験では捕獲原子数を従来よりも2桁以上増加できたことになる。

(2) Yb原子用LDベースレーザー光源研究

Fig. 2の実験配置でLDを動作させたところ、波長計で1 pmの精度で値を表示させることができた。このことは単体ではシングルモード発振しないLDチップが、Fig. 2の実験配置で光源を構成することにより著しくスペクトル線幅を狭窄化されたことを示している。次にLDからの光をファブリーペロー干渉計へ入射させてスペクトル線幅を計測した。このときの結果がFig. 5である。この図の横軸は周波数、縦軸は光強度に対応する。2つの鋭い干渉フリンジ間隔は250 MHzであるので、これよりレーザー光のスペクトル線幅を見積もると、10 MHzという値が得られた。Yb原子の吸収スペクトルの自然幅は28 MHzなので、この光源のスペクトル線幅のほうが半分以下の狭さであり、Yb原子の高分解能分光用光源として相応しい性能を発揮できたと言える。

続いて、Fig. 2で構成した光源のチューナビリティと出力パワー値を計測した。今回の測定では、もっとも短い波長の値で398.774 nm、もっとも長い波長で399.738 nmが測定された。Yb原子は波長398.912 nmに吸収線を有しており、この値は今回の実験で開発した光源のチューニング・レンジに含まれていることも判った。光出力も上記の波長範囲で2 mWを超えたパワーが観測されており、LD単体での出力値（5 mW）の約半分の値は確保することができた。

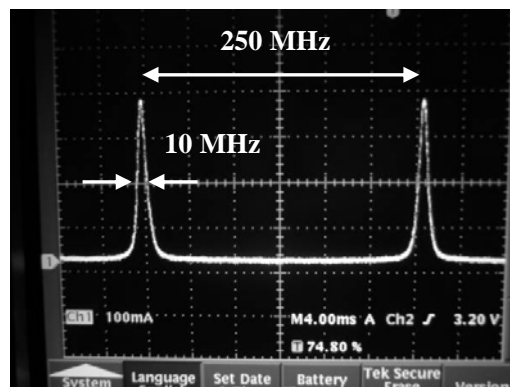


Fig. 5 Frequency spectrum of violet laser

(3) 高安定光マスク生成の開発研究

Rb 原子の飽和吸収スペクトル測定結果を Fig. 6 に示す。横軸は周波数、縦軸は吸収強度である。飽和吸収測定に使用した2つの光強度は両方とも 0.36 mW/cm^2 であった。Fig. 6 の結果では、 ^{85}Rb の基底状態 ($5 S_{1/2}$) $F=3$ から励起状態 ($5 P_{3/2}$) $F=2, 3, 4$ への吸収ピーク (①、③、⑥) と交差共鳴 (②、④、⑤) のピークを観測できた。これら6個の吸収スペクトル線幅は 14 MHz であり、Rb 原子の自然幅に対するレーザー光による飽和広がりを考慮した値 (約 10 MHz) と合致した。

次にこの信号を用いて実際に近赤外 LD の出力光周波数を安定化する実験に移った。Fig. 6 で観測された6個の吸収スペクトルのうち、もっとも吸収強度の大きかった交差共鳴のピーク⑤にレーザー周波数をロックさせることを試みた。LD の出力光周波数が揺らげば、その出力光を用いてモニターしている飽和吸収強度も変化する。我々は、その変化の大きさから LD の出力光周波数の安定度を見積り、評価した。実験結果は Fig. 7 の通りであった。この図では横軸が安定化制御時間 (制御開始を0とした) であり、縦軸は制御時にモニターされた飽和吸収強度を示す。安定化制御後では、100 秒間で飽和吸収強度はほとんど変化せず、ほぼ一定の値を示した。Fig. 7 で得られた飽和吸収強度の変動幅を、

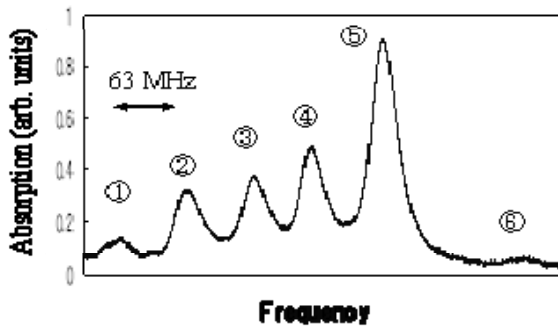


Fig. 6 Saturated spectrum of Rb atoms

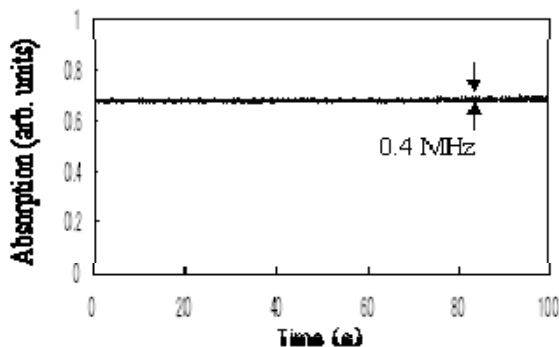


Fig. 7 Experimental result for frequency stability

Fig. 6 のスペクトルと対応させた結果、制御後の光周波数安定度は100秒で 0.4 MHz という値を得た。測定時間を7200秒まで延長させて同様の実験を行っても、安定度は 0.4 MHz を保つことができた。LD のフリーラン時では、この出力光周波数は100秒で 54 MHz 、7200秒では 260 MHz もの周波数ドリフトを示したので、我々の制御機構により当該光源から得られる出力光の周波数安定度は飛躍的に改善し、フリーラン時に比べて100倍以上にまで向上できたことが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

- ① R. Ohmukai, M. Hyodo, M. Watanabe, H. Kondo, "Efficient generation of cold atoms towards a source for atom lithography", *Opt. Rev.* 査読有 **16** No.1 Jan/Feb (2009) 11-14.
- ② Hitoshi Kondo, Masataka Hayakawa, Kunio. Ichiji, Ryuzo Ohmukai, Takamitsu Masuda, Toshinobu Tsuda, "The negative lens", *Proceedings of the International Conference on Physics Education 2006, Journal of the Physics Education Society of Japan* 査読有 Supplement (2008) 198-199.
- ③ Takamitsu Masuda, Masahiro Tamaki, Hitoshi Kondo, Ryuzo Ohmukai, Kunio. Ichiji, Toshinobu Tsuda, "The no darkroom development system for the pinhole camera", *Proceedings of the International Conference on Physics Education 2006, Journal of the Physics Education Society of Japan* 査読有 Supplement (2008) 202-203.
- ④ M. Hyodo, K. Nakayama, M. Watanabe, R. Ohmukai, "Mirror magneto-optical trap exploiting hexapole-compensated magnetic field", *Phys. Rev. A*, 査読有 **76** (2007) 013419.

[学会発表] (計4件)

- ① 大向隆三、上敷領静香、兵頭政春、近藤一史「半導体レーザーを用いた原子分光実験装置の開発」第58回応用物理学関係連合講演会、2010年3月31日、東海大学
- ② 兵頭政春、中山和之、渡辺昌良、大向隆三「冷却原子のスピン偏極の計測と磁気トラップへの捕獲効率の最適化 (Measurement of spin polarization and optimization of capturing efficiency for laser-cooled atoms)」、*Optics & Photonics Japan 2008*, 2008年11月4日、つくば国際会議場
- ③ M. Hyodo, K. Nakayama, M. Watanabe, R.

Ohmukai, “Experiment on Mirror Magneto-Optical Trap Using Hexapole-Compensated Magnetic Field”, International Symposium on Coherent Optical Science, 2007 年 12 月 15 日, Univ. of Electro-Communications, Tokyo

- ④ M. Hyodo, K. Nakayama, M. Watanabe, R. Ohmukai, “Characterization of Magnetic-Hexapole-Compensated Mirror Magneto-optical Trap”, CLEO/ Pacific Rim '07, 2007 年 8 月 29 日, Convention & Exhibition Center (COEX), Seoul, Korea.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大向 隆三 (OHMUKAI RYUZO)

埼玉大学・教育学部・准教授

研究者番号：40359089

(2) 研究分担者

近藤 一史 (KONDO HITOSHI)

埼玉大学・教育学部・准教授

研究者番号：40178421

(3) 連携研究者

なし