

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名 :量子相関光子ビームナノ加工

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)

研究代表者

三澤 弘明 (北海道大学電子科学研究所 教授)

主たる共同研究者

笹木 敬司 (北海道大学電子科学研究所 教授)

松嶋 朝明 (松下電工(株)R&D企画室TMC担当 参事)

鎌田 賢司 ((独)産業技術総合研究所関西センター光技術研究部門 主任研究員)

3. 研究内容及び成果:

従来の光リソグラフィが有する高いスループットを活かし、かつ、光の回折による制約を受けないナノ加工技術の開発は、ナノテクノロジーの産業応用を図る上で重要である。本研究は新しい光物理現象である「量子相関を有するもつれ合い光子」の多光子吸収を用い、回折限界をはるかに超える高い加工分解能を実現する多光子ナノ加工技術を開発することを目的に進めた。主な研究成果は以下のとおりである。

### 高効率量子相関光子ビーム源の開発

モードインバータをシンプルな光学系で構成し、それを用いることによりパラメトリック下方変換によって生じた光子対を空間的に重ね合わせ、従来技術の2倍から10倍の高効率で量子相関光子対を生成させることに成功した。さらに、理論的にも多量の量子もつれ光子対の生成が期待できる8の字共振器構造を用いた光子対増幅装置の開発を進めた。signal光とidler光の共振器モードとのマッチングを行い、共振器内のロスを軽減すし、利得を十分に得る上でレーザー光源や、光学系の最適化の方向性を明らかにした。

### もつれ合い光子干渉用光学系の開発

光子対ビームの空間伝搬特性の実験的解析により、量子相関光子対のコヒーレンスに依存した最適な開口サイズが存在することを明らかにした。さらに伝搬特性を数値解析的に計算するチューニングカーブフィルタリング法を提案し、フィッティングパラメータなしに定量的に光子対の空間伝搬特性を解析する手法を確立した。

これによって、実験条件を決定すれば空間伝搬特性を予測する事が可能となり、もつれ合い光子の投影用光学系の設計を数値解析的に行うことが可能となった。

### 回折限界を越える干渉縞の直接測定

安定かつ波長オーダーの干渉縞発生用光学系の提案、構築、評価を行い、もつれ合い光子の干渉用光学系の作製に成功した。その内容は次の通りである。

もつれ合い光子源の品質が干渉縞に及ぼす影響について解析する手法を提案し、光源の入力状態を表す密度行列から干渉縞を推定することが可能となった。

実験的に得られたもつれ合い光子の密度行列から最適な補正方法を数値解析的に推定することが可能となつた。

もつれ合い光子の干渉による回折限界を超えたナノメートルオーダーの2光子干渉縞の直接測定に成功した。

### 多光子励起過程に基づく3次元ナノ加工技術の開発

多光子多光束干渉露光用光学系の構築では、以下の成果を得た。

高密度もつれ合い多光子ビーム源が開発された場合に不可欠となる、多光子多光束干渉露光用光学系の

構築に成功した。

多光束干渉ビームをネガ型フォトレジストに照射することにより、多光子励起過程を介して干渉パターンをレジストに転写可能であることを明らかにした。

多光束干渉ビームのビーム数や位相制御によって、作製する周期構造の次元性や構造パターンを制御することが可能であることを明らかにした。

わずか数分の光照射で直径  $500 \mu\text{m}$  の照射領域に 3 次元ダイアモンド構造を作製することが可能であることを明らかにし、フォトニック結晶としての有用性を示した。

また集光ビームによる多光子 3 次元ナノ加工技術の構築においては、フェムト秒レーザーを光硬化性樹脂に集光照射することにより、30 nm の加工分解能で構造パターンを形成することが可能な 3 次元ナノ加工光学システムの構築に成功した。

#### 多光子反応を効率的に誘起することが可能な材料・反応場の創出

2 次元層状ナノシート中に配列させた分子の 2 光子吸収断面積の増大においては、無機ナノシート内部に有機色素を配列させて分子配向の自由度を制御することにより、配向の次元性を低下させ、2 光子吸収断面積を 2.5 倍増強することに成功した。

集光フェムト秒レーザーによる 3 次元フォトニック結晶の作製では、光を閉じ込め、光の群速度を制御する媒体である 3 次元フォトニック結晶を、もつれ合い光子による多光子反応を効率的に誘起することが可能な反応場と位置づけ、その中でも光を最も効率的に閉じ込めることが可能なダイアモンド型フォトニック結晶となるウッドパイル構造、および四方・円形螺旋構造の作製に成功した。さらに 集光ビームによる多光子励起過程により、屈折率の高いサファイアや SiC などの無機透明材料を用いてもフォトニック結晶を作製することが可能であることを明らかにした。

金属ナノ構造による光電場増強を利用した多光子増強反応場の構築では、金属ナノ構造に局在する表面プラズモンによる光電場増強を利用して、金属構造がもつれ合い光子による多光子反応を効率的に誘起することが可能な反応場となることを提案し、もつれ合い光子とプラズモンが強く共鳴することができる金属ナノ構造の形状やサイズ、構造間の距離をシングルナノメートルの加工分解能で制御し作製することに成功した。加えて、金属ナノ構造による光電場増強を、構造体自身の金の 2 光子励起発光、表面増強ラマン散乱、時間領域差分法による数値解析、および非線形光重合反応により検討し、金属ナノ構造が光電場増強に及ぼす種々の効果についての詳細を解明した。

多くの成果は要素的に積み上げた。直接的な量子リソグラフィパターンの実証にはいたらなかったものの、極めて高い光電場増強(入射光電場の約  $10^5$  倍)を示す金属ナノ構造のギャップにおいては、ハロゲンランプからの微弱なインコヒーレント光を用いても、非線形光重合反応が進行することを明らかにした。 $10^5$  倍にも及ぶ光電場増強は、現況の量子相關光子ビーム源を用いてもランダムな 2 光子反応が起こらない程度の最適な光強度を実現するものであり、もつれ合い光子による多光子反応を効率的に誘起する反応場として極めて有用であることを明らかにした。

## 4. 事後評価結果

### 4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

本研究は、もつれ合い光子対によって、光の回折限界を大きく破った微細加工への応用技術の期待が大きな量子リソグラフィを見据え、それに必要な要素技術の開発と、原理実証を目指して行い、多くの知見、成果を得た。科学的な知見や、期待されるフォトニック結晶などの光学デバイス加工へも展開可能な基盤技術的データは論文発表 82 件(和文 14、英文 68)招待講演 55 件(国内 31/国際 24)、口頭(ポスター含)発表 139 件(国内 88/国際 51)を通じて公開され、国際的に評価の高い学会誌や国際会議で注目された成果を多く含んでいる。

特許は国内 17 件、海外 5 件が出願され、実現性の高い独自技術からなる重要特許出願がなされている点は大いに評価できる。国内外から高い評価を得た微細加工技術の基盤となる成果は量子リソグラフィが従来のリソグラフィに対してどのようなアドバンテージがあるかを微細パターンとして示すにはいたらかったものの、これまでの光リソグラフィ技術の分解能向上のスキームと異なった全く新しい概念に基づく超解像ナノ加工技術に向けた要素技術開発や問題点の解明、原理検証に成功した点で、ナノ加工技術の将来的な進展にとって大きな寄与を果たしたといえる。

さらに、本プロジェクトで得られた各要素技術は、量子リソグラフィ技術構築の設計指針を明らかにするのみならず、もつれ合い光子を用いた他の量子光学分野に応用可能な技術を構築したことや従来の概念にはなかった微弱光による多光子反応を可能にする新しい反応場の創出を促し、関連する多くの分野に大きなインパクトを与えたといえる。例えば、もつれ合い光子の伝搬特性や高効率発生に関する成果は量子情報・通信分野においては非常に基礎的な知見を与えるものであり、応用の範囲は今後広まることが期待される。また、波長以下の干渉縞を長時間安定に発生できる干渉系の構築は、量子リソグラフィの原理検証のみならず、量子光学における超解像位相測定技術や計測光学等の位相の精密測定が必要な分野において応用が期待される。さらに光増強場の構築は、量子相關光子に対してのみならず、微弱な古典光の光増強反応場の実現や共振器光学、プラズモニクスの分野に対して応用が可能である。従って、関連する多くの分野に大きなインパクトを与えたと考えられる。本プロジェクトで得られた研究成果が今後さらに発展し、広がって行く事が期待される。

#### 4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

量子通信や量子コンピュータを実現する上で重要であると位置づけられている量子もつれ合い光子の研究は、活発化している。その中にあって、本提案は光の回折限界を凌駕したナノ加工の世界を拓こうとするもので希少な挑戦であった。もつれ合い光子の增幅機構、もつれ合いを安定に保持する光学系や多光子吸収に適した反応や材料設計合成等難度の極めて高い課題に取り組み、多くの技術を蓄積し、安心安全の高度化要望にひとつつの解を与える量子通信や、大量の情報をグローバルに流通させる光ネットワークに展開可能な基盤技術の創出に貢献した。シリコンテクノロジーにおける先端のリソグラフィでの短波長光源が 2 次元リソグラフィであるのに対して 3 次元加工の分解能を高めていく本研究は差別化のドメインを有しており、次世代光デバイスナノ加工技術への応用に貢献しうるものである。

#### 4-3. その他の特記事項(受賞歴など)

本 CREST 研究の成果が基礎となって、科学技術振興機構の産学共同シーズイノベーション化事業顕在化ステージにおいて「金ナノチェイン構造による光学素子の開発」(シーズ顕在化プロデューサー、ローム株式会社)において社会還元への展開や、独創的な 3 次元構造体のナノ加工技術を活かした新たな共同研究の展開などに拡大しており、今後の発展が待たれる。

受賞については、三澤弘明、2005 年度光化学協会賞「高強度レーザー光による固体の光反応制御」(平成 17 年 9 月 13 日)、および第 24 回(平成 18 年度)日本化学会学術賞「超高密度フォトン束による固体の光反応制御」(平成 19 年 2 月)があげられる。