

ホログラフィック回折イメージングの実験的実証のための ナノメートルサンプルの作製技術の開発

Fabrication technique of nanosample for experimental demonstration of
holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation.

(HERALDO)

澤田 和寛 (B4)

Sawada Kazuhiro

Abstract

We developed the technique of fabrication of nanosamples for experimental demonstration of HERALDO. The patterns of object and reference are successfully fabricated on the thin membrane film on the condition of 100nm~200nm width. The high contrast of the edge of the line slit, which determines the resolution of the HERALDO, was successfully fabricated. In addition, the nanosample is consisted of the Au film, Si₃N₄ membrane, which corresponds to the holographic imaging system using coherent "water window" X-ray.

1 はじめに

コヒーレントでかつ高強度なX線光源の発展により、そのイメージング技術に注目が集まっている。特に、軟X線領域においては、生体分子の可視化に適している波長帯を含んでいることが知られている。生体分子の構成元素である炭素がX線を吸収し、水素はX線を透過すること性質から、「水の窓」と呼ばれ、後に未知のタンパク質の構造解析から、創薬、病理といった新しい科学の発展が期待出来る。

近年、ホログラフィックイメージングがめざましく発展を遂げ、XFELや高次高調波を光源とした、ナノメートルサイズのサンプルの可視化に成

功した。[1][2] 近い将来には、このアプローチで生体分子を可視化することが研究の大きな動向である。今後このイメージングアプローチをベースに、アト秒パルスを用いた時間分解能をもたせることや、高次高調波の時間コヒーレンスを活かしたイメージング、新しい再構築アルゴリズムの開発等のさらなる発展が期待できる。[3] しながら、このようにイメージングの発展をさらに進めていくためには、現在どのくらいの分解能があって、どのような性能があるのか、どんな問題点があるのか、といったことを定量的に評価するため、ナノメートルサイズのターゲットが不可欠になる。

本研究ではその一歩として、ホログラフィックイメージングアプローチの代表例である、Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operation (HERALDO)の実験的実証のための、サンプル作製技術の開発に取り組んだ。

2 HERALDO の理論

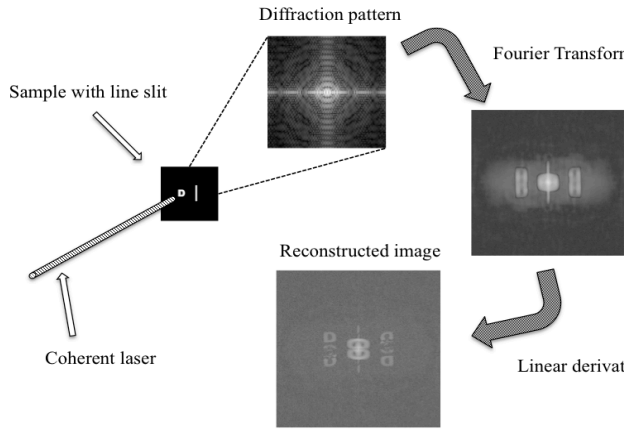


Fig.1 Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operation (HERALDO) [4]

サンプル作製を考えるためには、イメージングアプローチの理論背景を把握することが重要である。

Fig.1 は 2007 年に James R. Fienup によって開発された、拡張スリットを用いたホログラフィックイメージング法の概念図である。[4] コヒーレントな光をサンプルに照射し、その回折パターンから、コンピュータアルゴリズムによって画像を再構築するものである。まず、参照光と物体光の回折強度分布から、2次元フーリエ変換することで、自己相関の画像が得られる。この画像は、参照光と物体光の相互相関情報を含んでおり、この情報を微分することで、物体光の情報だけ抜き取るという概念である。

物体光(o)、参照光(r)を式(1)のように定義し、

$$f(x, y) = o(x, y) + r(x, y) \quad (1)$$

遠方における回折パターンは、フーリエ変換の関係にあるため、この強度分布 $|F(u, v)|^2$ を逆フーリエ変換すると、

$$\mathcal{F}^{-1}\{|F(u, v)|^2\} = f \otimes f = o \otimes o + r \otimes r + o \otimes r +$$

$$r \otimes o \quad (2)$$

となる。 $o \otimes r + r \otimes o$ 積分の情報なので、物体光の情報を得るために n 次微分をすると、式(3)になる。

$$\mathcal{L}^{(n)}\{f \otimes f\} = \mathcal{L}^{(n)}\{o \otimes o\} + \mathcal{L}^{(n)}\{r \otimes r\} + (-1)^n [o \otimes \mathcal{L}^{(n)}(r)] + [\mathcal{L}^{(n)}(r) \otimes o] \quad (3)$$

ここで、注目すべきことは、式(3)の第3項目と第4項目の $\mathcal{L}^{(n)}(r)$ である。物体光 o と $\mathcal{L}^{(n)}(r)$ の相互相関情報から物体光 o のみを抜き取るためには、 $\mathcal{L}^{(n)}(r) = \delta$ となる必要である。

この条件を実空間上でどのように実現するかを考えるために Fig.2 を参照されたい。

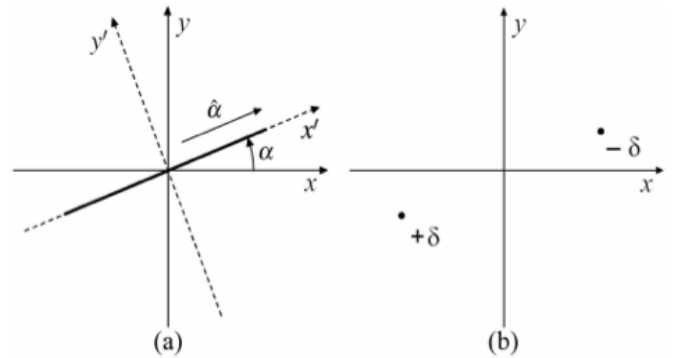


Fig.2 (a) Finite line Dirac delta along the direction of $\hat{\alpha}$. (b) After applying the directional derivative along $\hat{\alpha}$, we obtain two point Dirac delta functions at the line ends.

Fig.2 は、 r が α 方向に傾いた状況を示している。 r は数学的には 0-1 の情報なので、Fig.2 のように α 方向に微分すると、 r の両端の境界部分で δ 関数が形成されることがわかる。したがって、 r の両端が 0-1 のように鋭く変化させられるか。すなわち、実物のスリットのエッジを鋭く加工できるかが HERALDO の分解能決めることになる。

3 実験方法

3.1 実験の方針

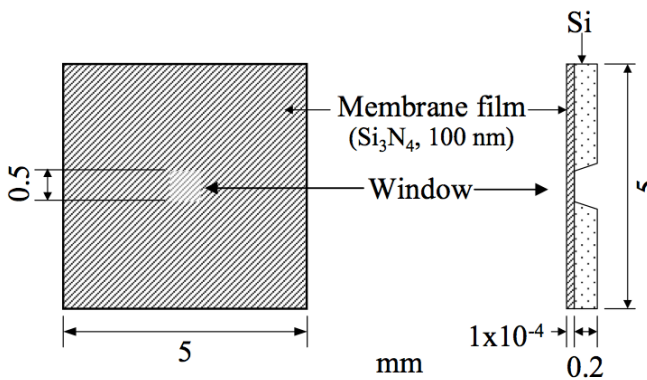


Fig.3 Default sample;

Si: size (5mm×5mm), thickness (200nm) ;

Si₃N₄: size (500 μ m×500 μ m), thickness (100nm);

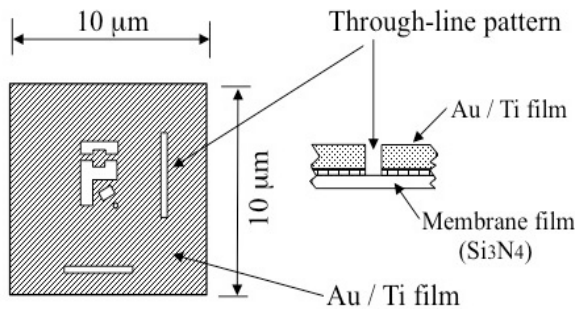


Fig.4 The side view of the nanosample

Fig.3 は、初期状態のサンプルである。5mm 角の Si 基盤の上に、厚さ 100nm で 500 μ m 角の Si₃N₄ の Window を含んでいる。この Window に、Fig.4 のような「P」パターンと 2 本の直線スリットを作製することにした。

サンプルを作製する上での条件は以下のように記述できる。

条件 A. 水の窓に対応させる。

条件 B. スリットのエッジを鋭く加工する。

軟 X 線を光源に、生体分子の可視化を目的としているため、「水の窓」の条件をサンプルに含ませる必要がある。(条件 A) 今回、X 線を透過する厚さ 100nm の Si₃N₄ の薄膜の上に、X 線を吸収する

Au を 100nm 蒸着し、生体分子の X 線に対する C と H の関係を人工的に表現することにした。

次に、HERALDO の分解能を決めるスリットのエッジの鋭さを実現することが、サンプルの条件として重要である。(条件 B)

パターン作製においては、半導体プロセッシングでよく用いられる、Lift-Off と呼ばれる手法を用いて、コントラストのよいスリットを作製した。具体的には Fig.3 のような Si₃N₄ の薄膜に、フォトレジストをコーティングの後、電子ビーム露光でパターン描画をし、現像、Lift-Off を行うことにした。

通常、Lift-Off は金属の細い配線を引く際に使用されるものであるが、今回作製したいものは、Fig.4 のような金属膜上での細いギャップである。すなわち、反転したパターンを作らなければならない。したがって、ギャップの場所以外の部分を露光することにより、反転パターンを作製することにした。

この手法において、気をつけなければならないことが主に 3 つの制約が存在する。(a) 露光後のレジストパターンは細いことから、コントラストをつけすぎると現像液やその他のリンス液によって、パターンが壊れてしまうこと。(b) パターンのコントラストが低いと、リフトオフの際に除去剤が金属とレジストの間に入ることができず、金属がレジストパターンを覆ってしまうこと。(c) 軟 X 線を吸収するために必要な金属膜の厚みが、ある程度必要だということだ。一般的に、電子ビームをハイドーズにするとレジストパターンのコントラストが良くなるため、(b)の状態をクリアすることができるが、あまりコントラストをつけすぎると、(a)の状態が起こってしまい、パターンが崩れてしまう。細いパターンが崩れないように、レジストを薄くしてアスペクト比を下げようとした

が、(c)の制約が入るため、金属膜をある程度は厚くしなければならない。したがって Lift Off に必要なレジストのアスペクト比の下限は自ずと決まってしまう。よって実験をする上で (a)と(b)と(c)の制約を吟味しながら、パターン幅 200nm、直線スリット幅 100nm のギャップを実現すべく、最適ドーズを割り出した。

3.2 実験方法

1. レジストコーティング

Resist: ZEP520A 1drop;

Spinner: 500rpm 5sec, 6000rpm 40sec;

Baking: 180°C 2min

この工程を2回行い、膜厚 580nm に設定。

2. 露光 (EB lithography)

V_{acc} :100 keV; I_p :100 pA

Scan area : 600 μ m, Dot number: 60000dots

3. 現像

Development: ZEP-RD 40sec,

Rinse: IPA 30sec,

Dry: N₂ gas

4. 金属蒸着

Base pressure: $<5 \times 10^{-5}$ Pa

Film thickness: Ti (5 nm) /Au (100 nm)

Ti Deposition rate : 0.1- 0.2 A/sec at beam current of 15 - 25mA, Pressure : $< 3 \times 10^{-5}$ Pa

Au : Deposition rate : 0.8 - 1.5 A/sec at beam current of 20 - 30mA, Pressure : 1×10^{-5} Pa

5. Lift-Off

・ Remover : ZDMAC (Zeon Cop.), one night.

・ Rinse : IPA, 1min. ・ Dry :N₂ gas dry

コントラストの良いパターンを作るために、ポジ型のレジストであるZEP520Aを選択した。

4 実験結果

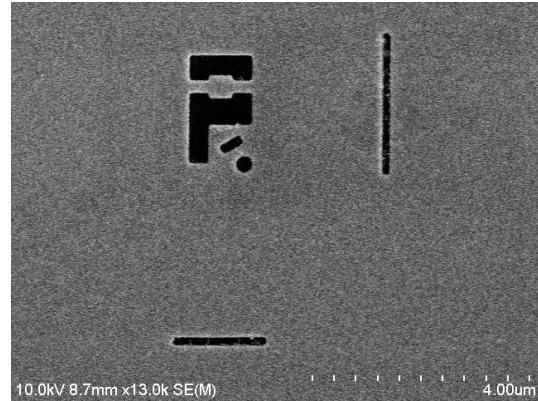


Fig.5 Successful nanosample including the two line slits on the 100nm width and the character P pattern on the 200nm width

Fig.5 は、SEM で見たサンプルの画像である。黒い部分は Au のギャップであり、Si₃N₄ が見えている状態である。黒いパターン以外の場所は Au が蒸着されている。

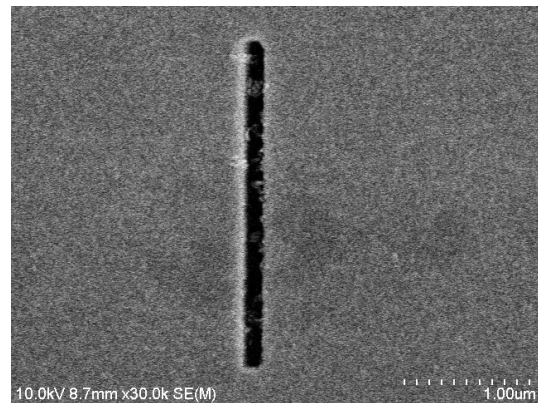


Fig.6 Enlarged view of the reference slit

The edge of the slit is sharply fabricated.

Fig.6 は直線スリットの拡大図である。金粒子の大きさは数ナノメートルであることから、スリットの先端部分に於いて、コントラスト良く色の変化をしている。すなわち、HERALDO の分解能を決

めるスリットの先端が鋭く加工されていることが分かる。

5 まとめ

HERALDO の実験的実証のためのナノメートルサイズのサンプルを作製することができた。今後 X 線領域でのイメージングを意識して、水の窓に対応する X 線の吸収する

特に、HERALDO の分解能を決める直線スリットのエッジを鋭く加工することができた。

Reference

[1] D. Gauthier, M. Guizar-Sicairos, X. Ge, W. Boutu, B. Carre, J. R. Fienup, and H. Merdji: PRL 105, 093901 (2010)

[2] Yoshinori Nishino, Yoshihito Tanaka, Makoto Okada, Motohiro Okaya, Yoshihito Uozaki, Kimihiko Nozaki, Makina Yabashi, Mitsuru Nagasono, Kensuke Tono, Hiroaki Kimura, Haruhiko Ohashi, Shinji Matsui, Tetsuya Ishikawa¹, and Eiichiro Matsubara: Applied Physics Express 3 (2010) 102701

[3] Pengfei Lan, Eiji J. Takahashi, and Katsumi Midorikawa : 12 March 2012 / Vol. 20, No. 6 / OPTICS EXPRESS 6669

[4] Manuel Guizar-Sicairos and James R. Fienup : 24 December 2007 / Vol. 15, No. 26 / OPTICS EXPRESS 17592