

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月28日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22760042

研究課題名（和文） フェムト秒レーザーパルスの特異的なチャンネル伝搬とそのリソグラフィへの応用

研究課題名（英文） Channel propagation of femtosecond laser pulses for lithographic applications

研究代表者

西山 宏昭 (NISHIYAMA HIROAKI)

北海道大学 電子科学研究所 准教授

研究者番号：80403153

研究成果の概要（和文）：

フェムト秒レーザーパルスレジストに集光すると、特異的なチャンネル伝搬が観察される。紫外レーザー光を用いた光硬化性樹脂では既報があるが、フェムト秒レーザーでは、本来露光だけでは架橋反応が生じない化学増幅型レジストであってもチャンネル伝搬が生じた。露光部を光学測定すると、ベイク処理なしで 10^{-3} ～ 10^{-2} もの屈折率変化が起きたことが分かった。この変化は蓄熱効果による架橋反応であり、露光部で生じる導波モードと後続のレーザー光の高効率な結合がチャンネル伝搬の起源であることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Femtosecond laser pulses, which are focused into photoresists, exhibit unique channel propagation phenomena. Although similar propagation was previously reported as for ultraviolet laser exposure using photosensitive resins, femtosecond laser enabled to the channel propagation even in chemically amplified resists, which was not polymerized by ultraviolet exposure alone. Optical measurements revealed that refractive index changes were as large as 10^{-3} to 10^{-2} without post baking treatments. Such refractive index changes were induced by cross-linking reactions related to heat accumulation effects. Additionally, the origin of the channel propagation was high coupling efficiencies between guiding-modes in the exposed region and the laser pulses.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用光学・量子光工学

キーワード：フェムト秒レーザー，リソグラフィ，非線形光学

1. 研究開始当初の背景

SiO_2 系ガラスは、広い波長域での高い透過性と優れた物理的/化学的安定性を有し、集

積光学素子や光センシング用の光制御材料として重要な役割を担っている。しかしながら、一般に難加工材であり、機械加工では、

チップングやクラックなどの問題があり、一方、高い透過性が裏目となって、紫外光を用いても、ガラス組成を工夫しなければレーザー直接加工も容易ではない。これに比べ、半導体加工プロセスは SiO_2 を含む Si 系材料の微細加工に有用である。極めて高い加工分解能、優れた加工品質、高スループット、パターンニング自由度などの特徴を有するが、同プロセスの適用範囲は平面に限定される。また半導体加工プロセスで作製される構造の断面形状は矩形であり、種々のマイクロシステムにおいて複雑に見える構造であっても、よく見れば基本的には平面工程の繰返しであることが分かる。単純な斜面形状でさえも、作製するには複雑な繰返し工程が必要で、特に、段差など高低差がある立体的な基板上に精密な微細パターンを形成することは困難である。緩やかな曲面にパターンを形成した例はあるが、非常に高価なアライメント機能が必須で、また曲率や対称性など試料形状への制限も大きく、半導体加工プロセスの立体構造上への適用が強く望まれている。

2. 研究の目的

我々は、これまでに半導体加工プロセスの適用範囲を立体基板上へと拡張するため、非線形光リソグラフィの導入を提案している[1,2]。本研究では、半導体加工プロセスへの立体性付与を目指して、フェムト秒レーザー誘起非線形リソグラフィの特性評価とそのについて調べた。特に、低開口数レンズでの集光時にレジスト内で観察される特異的なチャンネル伝搬現象の解明と非線形リソグラフィを用いた光集積素子作製への展開を行った。

3. 研究の方法

非線形リソグラフィ光源として、フェムト秒ファイバーレーザー（中心波長 780 nm, パルス幅 127 fs, 繰返し周波数 100 MHz）を用いた。レーザー光は開口数 0.5 の対物レンズで化学増幅型レジスト KMPR に集光した。プラズマエッチングには、 CHF_3 ガスおよび O_2 ガスを原料とする電子サイクロトロン共鳴プラズマを使用した。

4. 研究成果

(1) チャンネル伝搬

低 NA レンズを用いてレーザー光をレジスト中に集光すると、現象後に、図 1 に示すような柱状のパターンが形成される。これらのパターンは、二光子吸収過程を経てレジスト内部に形成されたものであるが、光軸方向にレーザー走査していないにも関わらず、アスペクト比は非常に大きくなる。パターンごとに高さが異なるのは、露光時のレーザー集光位置が異なるためである。図中のパターンの最大

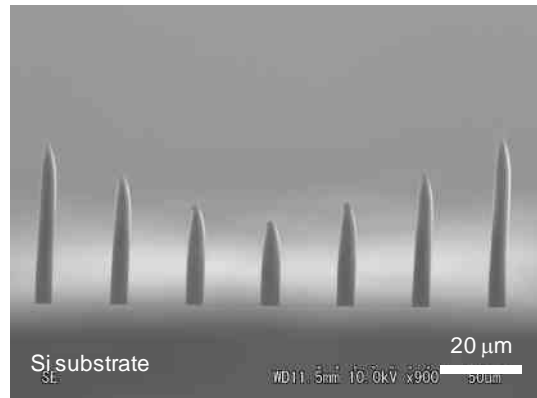


図 1 フェムト秒レーザーパルスのチャンネル伝搬で作製されたレジスト構造の SEM 像。

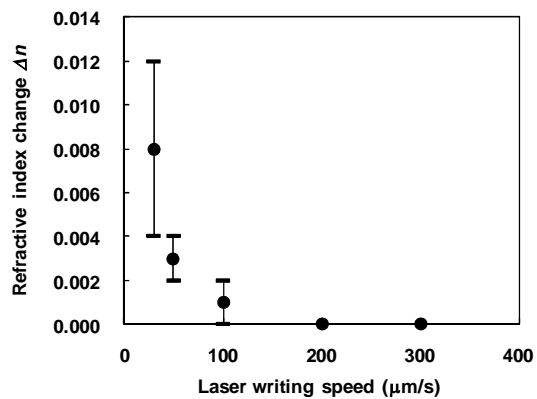


図 2 フェムト秒レーザー露光による化学増幅型レジストの屈折率変化量。測定は、露光直後に行い、ベイク処理は行っていない。

高さは $50 \mu\text{m}$ ほどあり、これは露光光学系の焦点深度の 3 倍以上に相当する。今の場合、パターン高さはレジスト膜厚に制限されているが、条件によっては、よりアスペクト比の大きなパターンの形成も可能かもしれない。このような特性は、フェムト秒レーザーパルスのチャンネル伝搬を示唆しているが、パターン形状の変化に、明確なパワー閾値は観測されておらず、Kerr 効果に起因した現象ではない。また、露光時にブレイクダウンも生じていないため、プラズマチャネリングとも異なる。

図 2 は、プリベイク後のレジストに、フェムト秒レーザー露光を行ったときの屈折率変化量（波長 632.8 nm）を示している。ここで露光後のベイク処理は行っていない。レーザー走査速度が $30 \mu\text{m/s}$ より小さくなると、高速の場合と異なり、 $10^{-3} \sim 10^{-2}$ もの大きな屈折率変化が観測される。これは通常の紫外光源のランプやレーザー露光では生じない特異な

変化である。Kewitschらは、光硬化性樹脂に紫外レーザーを照射したときに、フィラメント状パターンが形成されることを報告し、これが、露光部の架橋反応に基づいた“self-trapping on photopolymerization”に起因すると説明した[3]。この考えは、自己形成導波路の原理として知られるが、本実験で用いた化学増幅型レジストに適用することはできない。増幅型レジストでは、露光だけでは触媒酸が発生するのみであり、それに続く加熱処理によって初めて架橋反応が誘起される。そのため、露光段階では、大きな屈折率変化は通常期待できない。しかしながら、本実験では、滑らかなパターンを描くために、高い繰返し周波数（100 MHz）のレーザー光を用いており、露光部での熱蓄積によって酸生成だけでなく、架橋反応までもが生じた可能性がある。実際、FT-IR測定から、紫外露光では生じないが、フェムト秒レーザー露光によって架橋反応が特異的に生じることを確認している。

この屈折率変化量は、後続のパルスの光伝搬に影響を与えるほどに大きく、露光部を導波路コア、周囲をクラッドと見なしたときの規格化周波数から、レーザー発振波長 780 nm では、導波モード（単一モード）への結合が予測される。後続レーザーパルスと露光部での導波モード間の結合効率は 90%ほどであり、単一モードでのピーク強度は、レジストの二光子吸収閾値を超えることが分かった。このことは、フェムト秒レーザー露光時には、露光部での光改質により、一光子としての光閉じ込めが生じ、その状態で二光子吸収を用いた触媒酸生成と架橋反応が誘起され、更に続けて、一光子過程で光閉じ込めが起こり、二光子吸収を励起といった具合に、「一光子過程での光伝搬」と「二光子過程での光熱反応」が複合的に繰返し起こり、チャンネル状に伝搬し得ることを示している。ただし、この複合過程は、高い結合効率が期待できる低 NA 集光時に起こり得る現象で、これまで多く検討されてきた超高 NA 集光時には、電界分布の不整合のために結合効率は一桁小さくなるため、光閉じ込めは起きても、導波することはない。このチャンネル伝搬は、ビームが入り込みにくい狭い凹部などへのパターンニングには有用であり、今後、露光部での光閉じ込め効果について詳細な検討を行うことで、より精密で微細な SiO₂ 構造の形成が期待できる。

(2) オフアキシス・グレーティング集光器を内装したマイクロ流体素子

前項までに得られた知見を用いて、非線形リソグラフィの微小流体の特性変化をセンシングするマイクロ流体デバイスの作製

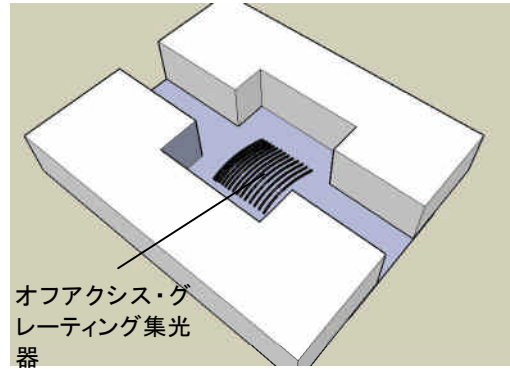


図3 オフアキシス・グレーティング集光器を内装したマイクロ流体デバイスの模式図。

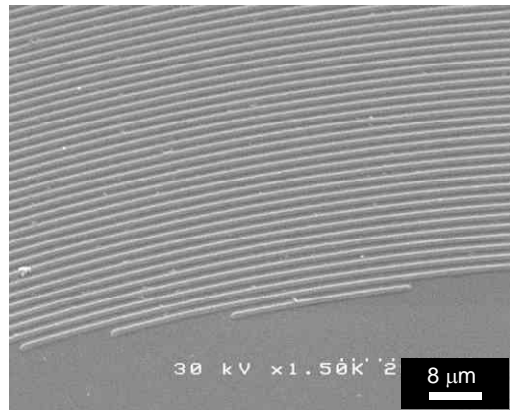


図4 Si 流路底部に作製した SiO₂ オフアキシス・グレーティング集光器の SEM 像。

を行った。図3に、デバイスの模式図を示す。流路底部にオフアキシス・グレーティング集光器を配置しており、グレーティング直上の液体試料の屈折率変化を回折光のパワー変化として検出する。集光器の回折効率は、SiO₂と周囲の液体との屈折率差に応じて変化するため、流路内に液体を流した場合、微量であっても液体の屈折率を高精度に測定することが出来る。図4は、Si マイクロ流路内に形成した SiO₂ オフアキシス・グレーティング集光器の SEM 像を示す。入射角 20 度のプローブ光（波長 632.8 nm）をこの集光器によって、レンズ直上 1 mm の位置で集光するよう設計している。グレーティング母材は SiO₂ であるため化学的に安定であり、また回折型素子の優れた集積性から、液体の流れへの影響を抑えた上で微小空間での光計測を行うことが出来る。一定のプローブ光入射角に対して、グレーティングの各位置では異なる回折角を与える必要があるため、グレーティングは、周期が徐々に変化する曲線群で構成される。希薄な水溶液試料に対する素子検出感



図 5 SiO₂ オフアクシス・グレーティングによって得られた集光スポット像.

度を見積もったところ、グレーティング深さ 1-2 μm のとき、 2×10^{-7} と見積もられた。図 5 は、プローブ光を入射したときのオフアクシス・グレーティングからの集光像である。設計値 1 mm 付近で集光スポット径が焦点距離で得られており、本手法の有用性が確認された。

(3) まとめ

フェムト秒レーザを化学増幅型レジスト内に集光したときに観察される特異的なチャネル伝搬について報告した。露光部では蓄熱効果により架橋反応が露光と同時に進行し、屈折率変化が生じる。この屈折率変化量は、後続レーザパルスに対して光閉じ込め効果を生み、導波モードを生成し得る。この導波モードとレーザ光の結合効率は、90% 近い値が見積もられ、この高効率な結合がチャネル伝搬の起源であると考えられた。フェムト秒レーザ非線形リソグラフィを用いて、オフアクシス・グレーティング集光器を内装したマイクロ流体デバイスの設計と作製を行い、設計値に近い光学特性を確認した。

参考文献

- [1] H. Nishiyama, et. al., Opt. Express, 16 (2008) 17288.
- [2] M. Mizoshiri, et. al., Appl. Phys A, 98 (2010) 171.
- [3] A. S. Kewitsch, et. al., Opt. Lett., 21 (1996) 24.

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 5 件)

1. M. Mizoshiri, Y. Hirata, J. Nishii, H. Nishiyama, “Large refractive index

changes of a chemically amplified photoresists in femtosecond laser nonlinear lithography”, Optics Express, vol. 19 (2011) 7634-7679. (査読有)

2. H. Nishiyama, Y. Sagawa, N. Furukawa, S. Okamoto, Y. Hirata, J. Nishii, “Off-axis diffractive focusing reflectors for refractive index sensing in microfluidic devices”, Japanese Journal of Applied Physics, vol. 50 (2011) 06GL02-1-3. (査読有)
3. H. Nishiyama, M. Mizoshiri, Y. Hirata, J. Nishii, “Fabrication of SiO₂ hybrid microlens structures using femtosecond laser nonlinear lithography”, IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, vol. 18 (2011) 072011-1-4. (査読有)
4. 西山宏昭, 岡本晋太郎, 佐川雄一, 平田好則, 西井準治, “オフアクシス集光型回折格子を内装したマイクロ流体素子による屈折率センシング”, 第 28 回センサマイクロマシンとシステムシンポジウム論文集, vol. 1 (2011) 671-674. (査読有)
5. 西山宏昭, 平田好則, “非線形リソグラフィによるガラスの立体的表面加工”, NEW GLASS, vol. 25 (2010) 11-15. (査読有)

[学会発表] (計 3 件)

1. 西山宏昭, 岡本晋太郎, 佐川雄一, 平田好則, 西井準治, “オフアクシス集光型回折格子を内装したマイクロ流体素子による屈折率センシング”, 第 28 回センサマイクロマシンと応用システムシンポジウム, 2011/9/27, タワーホール船堀 (東京都)
2. 岡本晋太郎, 西山宏昭, 平田好則, 西井準治, “集光型回折格子内装マイクロ流体素子による屈折率センシング”, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 2011/9/1, 山形大学 (山形市) .
3. 西山宏昭, 溝尻瑞枝, 平田好則, 西井準治, “フェムト秒レーザ直接重合による露光部での導波モード生成”, 第 72 回応用物理学会学術講演会, 2011/8/31, 山形大学 (山形市) .

[図書] (計 2 件)

1. H. Nishiyama and Y. Hirata, Lithography (In-tech. Co. Ltd.) ed. by M. Wang, “Femtosecond laser nonlinear lithography (chapter 4)”, pp. 41-56 (2010).
2. H. Nishiyama and J. Nishii, Laser pulse

phenomena and applications (In-tech. Co. Ltd.) ed. by Dr. F. J. Duarte, "Photo-induced structural changes of doped SiO₂ glasses using ultraviolet laser pulses (chapter 17)", pp. 353-368 (2011).

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西山 宏昭 (NISHIYAMA HIROAKI)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：80403153

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし