

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 27 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25630318

研究課題名(和文)新規レーザー誘起転写法とナノ集積回路の作製

研究課題名(英文)Formation of a nanoscale integrated circuit by laser induced forward transfer

研究代表者

中村 貴宏 (Nakamura, Takahiro)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号：50400429

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、横断面強度分布を制御することで焦点付近において特異な集光特性を有するレーザー光を用いたレーザー誘起転写法(LIFT)により、10 nmオーダーの配線や素子で構成される極小集積回路の作製を試みることを目的に研究を行った。円環ビームを用いることで、通常の高スプレッドレーザー光に比べて焦点スポットサイズを大幅に低減することに成功した。また円環ビームを用いたLIFTによりこれまでに同手法を用いて形成された最小サイズの330nmを更新し、60nmのドットの直接描画に成功した。一方、二次元構造形成のためには基板と薄膜材料の独立走査が必要であることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In this study, the direct formation of sub-100 nm structures by LIFT using a single shot of femtosecond (fs) laser beam with different laser irradiation conditions was demonstrated. In the case of LIFT using a single shot of fs-laser pulse with Gaussian intensity profile, multiple deposition of Cr particles with wide size distributions were confirmed on the surface of the Si substrate when high laser energy was applied (> 5.5 nJ). However, spherical shaped Cr particles with the mean size of 150 nm were transferred at the exact position of the substrate on demand with the laser intensity of 5.0 nJ. Moreover, chromium particles with the size of 60 nm were successfully transferred by LIFT using a single shot of fs-laser pulse with annular intensity distribution due to the smaller spot size at the focal point compared to that of Gaussian beam.

研究分野：レーザープロセッシング

キーワード：レーザー誘起転写法 フェムト秒パルスレーザー ナノ構造

1. 研究開始当初の背景

急速に進む電子機器の小型化に伴い集積回路やそれを構成する配線ならびに素子のさらなる小型化が求められている。現在における集積回路の小型化はリソグラフィ技術をはじめとした最先端の微細加工技術によって達成されてきたが、複雑な工程やそれを担う高額な設備ならびに膨大な資源・エネルギー消費など半導体産業の抱える問題は日々大きくなりつつある。これらの問題を解決するために簡便かつ低コスト、省資源、省エネルギーな半導体製造技術の開発が期待されている。代表的なものとしてはインクジェット技術による直接描画法が挙げられるが、その描画サイズは現在のところサブミクロンオーダーであるためリソグラフィ技術を用いた加工精度には及ばず、そのうえ、粒径の揃った数ナノメートルの金属ナノ粒子を安定化する技術、濡れ性などを考慮した溶媒の選定や、不純物の除去や導電性の改善のための焼結プロセスが必要であり、基板として用いる材料に制限があるといった問題がある。

2. 研究の目的

上述した背景に基づき、本研究ではレーザー誘起転写法 (Laser-induced forward transfer, LIFT) に集光時の焦点スポットサイズの低減化が期待される、横断面強度分布を制御したレーザービームを応用することで、10 ナノメートルオーダーの配線や素子をワンステップで作製することのできる新規ナノ構造形成手法を提案し、これを用いて極集積回路の作製を図る。LIFT は、レーザー光の波長に対して透明な基材上に堆積した薄膜物質に対して、基材後方からパルスレーザーを照射することで、薄膜物質を対向する基板に転写する直接描画法である。この手法は金属だけでなく酸化物や生体材料など様々な物質をあらゆる基板にワンステップで転写することができる極めてシンプルかつクリーンな手法であり、マスクなどを用いることで任意形状の物質を堆積したりそれらを三次元的に積層することも可能であるが、その描画サイズはレイリー限界に制限されるため一般にマイクロメートルオーダーである。一方で近年、中心に穴のあいたドーナツ状の強度分布を持ち偏光が光軸に対して対称に分布する軸対称偏光ビームのうち偏光が半径方向に分布する“径 (ラジアル) 偏光”ビームを集光することで、レイリー限界を超えて波長の 1/2 程度のサイズに集光できることが報告されている (Kozawa and S. Sato, J. Opt. Soc. Am. A 24, 1793 (2007)). すなわち、LIFT を用いた直接描画の際に照射レーザービームの横断面強度分布を制御することでレイリー限界を超えた集光スポットを形成し、10 ナノメートルオーダーの配線や素子をワンステップで作製する。本研究で提案する手法はシンプルではあるが新しい発想に基づく新規ナノ構

造形成手法であり、従来の半導体産業に大きな革新をもたらすものと期待される。

3. 研究の方法

(1) 横断面強度分布を制御したレーザービームを用いた LIFT のための実験光学系の製作  
横断面強度分布を制御したレーザービームを用いた LIFT のための実験光学系を図 1 に示す。LIFT に用いるキャリア薄膜には、スパッタによりカバーガラス上に堆積した 30 nm の金属クロム薄膜を用いた。作製したキャリア薄膜をシリコン単結晶基板の上に配置し、カバーガラス後方からフェムト秒レーザーパルス (波長 800 nm, パルス幅 100 fs,) を対物レンズ (倍率 100 倍, 開口数 0.8) によりシングルショットモードで集光・照射した。ガウスビームに対して図に示すマスクを用いることで円環ビームを形成した。

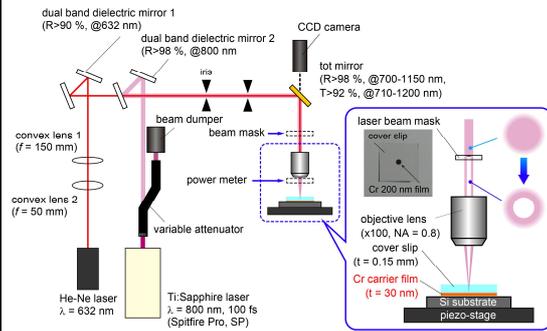


図 1 横断面強度分布を制御したレーザービームを用いた LIFT のための実験光学系

(2) 円環ビームを集光した際の焦点における電場強度分布についての検討

LIFT を用いた描画構造のサイズ低減化と焦点位置精度の改善のためには、焦点におけるスポットサイズが小さく、かつ焦点深度の大きい集光スポットを形成することが好ましい。そこで、円環状の横断面強度分布を持つビームの集光特性について着目した。本実験におけるレーザー照射条件 (波長 800 nm, 対物レンズ開口数 0.8, 瞳径 3.2 mm) において、ガウスビームおよび円環ビーム (外径 3.2 mm, 内径 1.2 mm または 2.2 mm) を用いた場合の焦点 XY 平面および XZ 平面での強度分布についてベクトル回折理論に基づき計算した結果を図 2 に示す。75% マスクした円環ビームの集光では通常のガウスビームに比べて焦点スポットサイズは約 30% 低減し、光

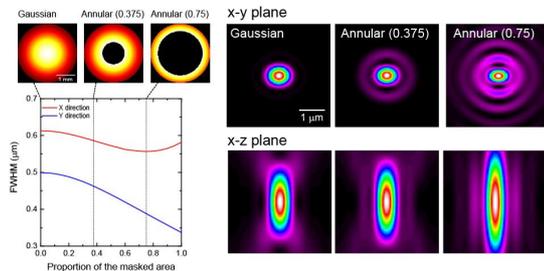


図 2 ガウスビームならびに円環ビームを集光した際の焦点近傍における強度分布の計算結果。

軸方向には 70% 伸長することがわかった。このことは、LIFT を用いた直接造形の際に円環ビームを適用することによって、描画サイズの低減化と Z 方向におけるアライメント精度に対する許容範囲の増大が図られると予想される。

#### 4. 研究成果

(1) ガウスビームならびに円環ビームを集光した際の焦点における強度分布の実験的検証

ガウスビームならびに円環ビームを集光した際の焦点における電場強度分布の実験的検証のために、シリコン単結晶基板表面へのレーザー照射によるアブレーション痕の観察を行った。図 3 にそれぞれガウスビームならびに円環ビームをシリコン基板上に照射した際に形成されるアブレーション痕を示す。この際レーザー焦点付近前後で 300 nm ステップで Z ステージを走査した。この結果から、円環ビームを集光することによりサイドローブを除く中心部分のアブレーション痕のサイズが小さくなっていることから、集光スポットサイズが小さくなっていることが分かる。さらに、アブレーションが起こる Z 方向の範囲が増大していることから、焦点深度が伸長していることがわかり、円環ビームを集光した際の XY 平面における焦点スポットサイズの低減ならびに光軸方向 (XZ 平面) の電場の伸長が実験的に確認された。

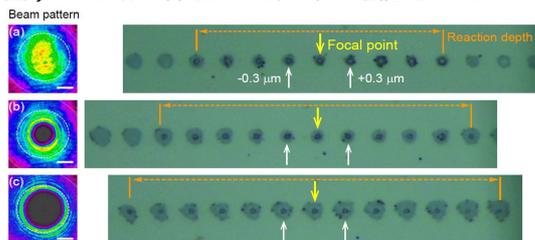


図 3 レーザー焦点付近において Z ステージを走査した際にシリコン単結晶表面でのレーザーアブレーション形状の推移。(a) ガウスビーム、(b) 37.5% マスクした円環ビーム、(c) 75% マスクした円環ビーム

(2) ガウスビームを用いた LIFT による微細構造形成

本研究ではまずガウスビームを用いた LIFT による微細構造形成を試みた。異なるレーザーエネルギーのガウスビームを照射した際に形成されたクロム堆積物の SEM 像を図 4 に示す。この際レーザー照射はシングルショット毎に基板を 2 μm 間隔で走査した。この結果から、照射レーザーのエネルギーが高い場合 (10 nJ) には大小様々な複数の転写物が形成されていることが確認された。一方、照射レーザーエネルギーを小さくすることによりキャリアの一部のみが選択的に転写されることがわかり、照射レーザーエネルギー 5 nJ の場合には単一のドットを ±0.13 μm 程度の位置精度で形成することに成功した。さ

らに、照射エネルギーが 5 nJ 以下の場合には構造物の形成が確認されなかったことから、本実験システムを用いた LIFT による照射レーザー閾値は 5 nJ であることが明らかとなった。一方、図 5 に示すように本実験で作製した最小のクロム粒子は 150 nm であり、これまでの研究で形成された最小の微小構造サイズ 330 nm に比べて大幅に低減していることが分かった。これは本研究における精緻な光学アライメントと、照射エネルギー照射条件の適切な選択に起因しているものと考えられ。また、照射レーザーエネルギーを変えた LIFT の際のキャリアフィルムの SEM 像を図 6 に示す。レーザー照射エネルギー 7 nJ および 6 nJ の場合はクレーター状の欠損が確認された。一方、最適レーザー照射条件であるレーザー照射エネルギー 5 nJ の場合には直径約 800 nm の凸構造が形成されていることが分かった。この結果から、最適レーザーエネルギー条件の LIFT では、レーザー照射部の中心部分のみが転写されることで単一のドットが形成されたものと考えられる。

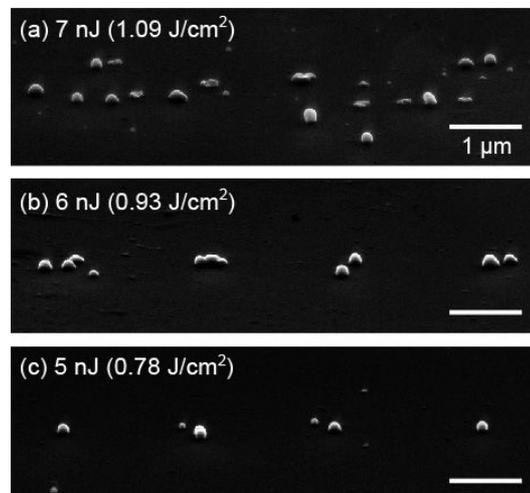


図 4 異なるレーザーエネルギーのガウスビームを照射した際に形成されたクロム堆積物の SEM 像。(a) 7 nJ、(b) 6 nJ および (c) 5 nJ の場合。

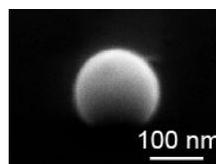


図 5 レーザー照射エネルギー 5 nJ での LIFT による形成されたクロム微小粒子。

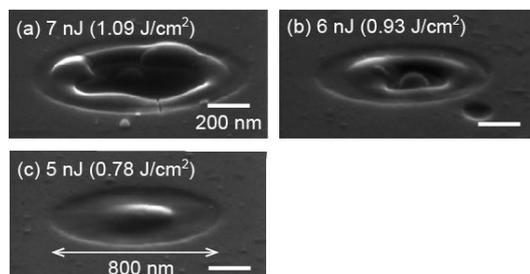


図 6 異なるレーザーエネルギーのガウスビームを照射した際のキャリアフィルムの SEM 像。

### (3) 75%円環ビームを用いたLIFTによる微細構造形成

シリコン単結晶基板へのレーザー照射により、スポットサイズの低減ならびに光軸方向の電場の伸長に効果が見られた75%マスクした円環ビーム(以下円環ビームとする)を用いたLIFT実験を行った。

異なるレーザーエネルギーの円環ビームを用いたLIFTにより形成された転写物質のSEM像を図7に示す。照射レーザーエネルギー10および9 nJの場合には、大小様々な複数の転写物が確認された。一方、照射レーザーエネルギー8 nJの場合には単ドットの形成が確認された。さらに、形成されたドットの大きさは最小で約60 nmであり(図8),LIFTに限らず直接描画手法により形成される構造としては世界最小の値を達成した。このことは、円環ビームを集光した際に生じる焦点スポットサイズの低減化に起因しているものと考えられる。また、照射レーザーエネルギーが8 nJよりも小さい場合にはナノ構造は形成されなかったことから、円環ビームを用いたLIFTによる照射レーザー閾値は8 nJであることが明らかとなった。この値はガウスビームを用いたLIFTによる最適レーザー照射条件(5 nJ)に比べ幾分高いものであったが、これは、円環ビームを集光した際に生じるサイドローブ(図2参照)にレーザーエネルギーが分散し、中心ピーク強度が相対的に低下したためであると考えられる。照射レーザーエネルギーを変えたLIFTの際のキャリアフィルムのSEM像を図8に示す。最適レーザー照射条件である8 nJでLIFT実験を行った際のキャリアフィルムではガウスビームの場合と同様に、凸構造の形成が確認されたが、その直径は約600 nmであり、ガウスビームの場合に比べて200 nm程度小さくなっていることが分かる。これは円環ビームを集光した際の焦点スポットサイズ低減によるものであり、このことが形成ドットサイズの低減化に寄与しているものと考えられる。

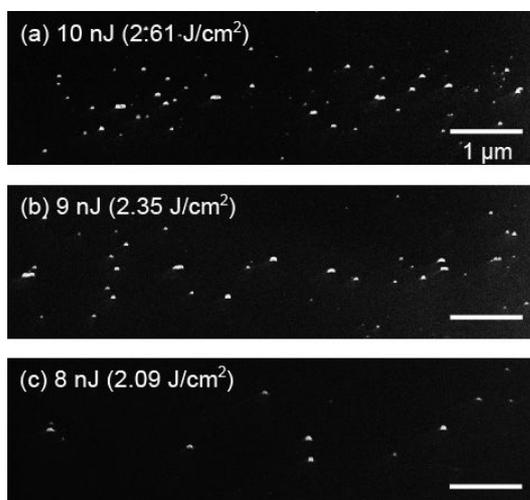


図7 異なるレーザーエネルギーのガウスビームを照射した際に形成されたクロム堆積物のSEM像。(a) 10 nJ, (b) 9 nJおよび(c) 8 nJの場合。

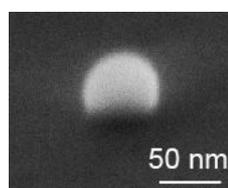


図8 レーザー照射エネルギー8 nJでのLIFTによる形成されたクロム微小粒子。

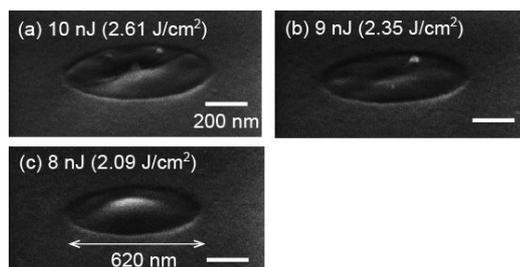


図9 異なるレーザーエネルギーの円環ビームを照射した際のキャリアフィルムのSEM像。

### (4) LIFTを用いた二次元構造形成についての検討

LIFTによる微小構造の形成のための最適レーザーエネルギー条件を明らかにしたのち、同手法を用いた二次元構造形成を目的とし、ステージ走査間隔を変えた実験を試みた。LIFTによる微細構造形成の際に、ステージ走査間隔をそれぞれ2, 1, 0.5 μmとして形成した微小構造のSEM像を図10に示す。なお、本実験はガウスビームを用いて行った。SEM観察結果から、ステージ走査間隔が2および1 μmの際には、クロムドットが位置選択的に形成されているのに対し、ステージ走査間隔が0.5 μmの場合、高エネルギー照射の際に見られるような不均一粒子の形成が確認された。上述したように、キャリアフィルムにレーザーパルスが照射された場合、レーザー照射領域において変形することが分かっているが(図6および9参照)、その形態変化の影響を受けるような短い走査間隔では、変形部にオーバーラップしてレーザー光が照射されることにより均一ドット形成に影響を及ぼしているものと考えられる。一方でこの結果から、キャリアフィルムとアクセプター基板とをそれぞれ独立に走査することによってLIFTを用いたサブ100 nmサイズの二次元・三次元構造の実現が可能となるものと考えられる。

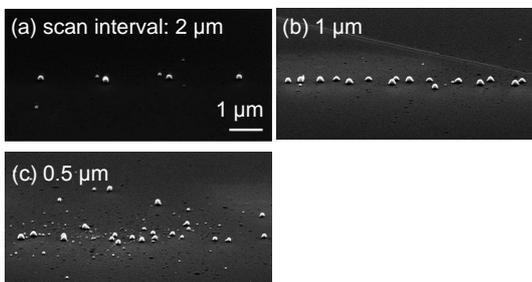


図10 照射レーザーエネルギー5 nJのガウスビームを用いたLIFTの際に、ステージを異なる間隔で走査して形成されたクロム堆積物のSEM像。(a) 2 μm, (b) 1 μmおよび(c) 0.5 μmの場合。

## 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0件)

〔学会発表〕(計4件)

大町 弘毅, 中村 貴宏, 佐藤 俊一“レーザー誘起前方転写法への円環ビーム適用”応用物理学会春季学術講演会, 2015年3月11 - 14日(平塚市)

Takahiro Nakamura, Koki Omachi, Shunichi Sato “Direct formation of 100 nm-sized structure by laser-induced forward transfer (LIFT) using femtosecond laser beam” SPIE Photonics West 2015, 2015.2.14-18 (San Francisco, CA, USA)

大町 弘毅, 中村 貴宏, 小澤 祐市, 佐藤 俊一“レーザー誘起前方転写法を用いたナノ構造の位置選択的直接造形と円環ビーム適用の検討”第70回応用物理学会東北支部学術講演会, 2015年12月3, 4日(平川市)

大町 弘毅, 中村 貴宏, 佐藤 俊一“フェムト秒レーザー誘起前方転写法によるクロムナノ構造体の直接形成”第76回応用物理学会秋季学術講演会, (2015年9.13 - 16日(名古屋市))

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

<http://satolab.tagen.tohoku.ac.jp/>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

中村 貴宏 (NAKAMURA TAKAHIRO)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号: 50400429

(2)研究分担者

( )

研究者番号:

(3)連携研究者

( )

研究者番号: