

令和 2 年 6 月 11 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2019

課題番号：18K18811

研究課題名（和文）グラフェンと電子ビームによる原子モアレを用いた大面積3次元微細加工法

研究課題名（英文）Large area of 3D fabrication by atomic Moire using graphene and electron beam

研究代表者

水谷 康弘（Mizutani, Yasuhiro）

大阪大学・工学研究科・准教授

研究者番号：40374152

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：本申請課題では、既存のリソグラフィ技術の課題を解決すべく、回折格子に光が透過した後に生じる三次元の微細周期強度分布をリソグラフィに応用するタルボットリソグラフィの高精度化および汎用化を目的とする。ここでは、(1)回折格子の角度を変更するなどの多重露光を行う、(2)照明する光強度分布を空間位相変調器を用いて制御することで光強度分布を制御することを試みた。その結果、これまでには実現が不可能とされていた高アスペクト比構造や、任意形状を広範囲に作り出すことができるようになった。なお、当初は、グラフェンを用いた電子ビーム露光を方法として検討していたが、加工効率や装置校正の効率化の観点から方法を変更した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、タルボット効果を利用した三次元リソグラフィの応用可能性が広がった。これまでは、主要構成光学系である回折格子の特性に加工形状が依存していたが、ホログラフィ技術と機械学習を併用することで任意分布制御が可能となった。また、高アスペクト比の構造は既存のリソグラフィ技術でも困難であったが、本手法を用いることで容易に大面積で形成することができるようになった。装置の価格などがボトルネックとなり使用者が限られていた微細加工技術が容易に応用展開できるようになった点で社会的意義が高く、この技術を応用することでバイオフィルタや光学スイッチングデバイスを構築できる。

研究成果の概要（英文）：Recently, there has been considerable interest in fabrication methods of three-dimensional nano-periodic structures in a large area. Furthermore, there is also a need for a highly flexible method that can fabricate complex periodic or locally aperiodic structures. To meet these requirements, we propose a hologram-assisted and oblique incidence Talbot lithography. In order to control the shape of the structure by the proposed method, it is necessary to perform inverse calculation from the Talbot effect to incident light. In this project, we have developed two type 3D lithography by using convolutional neural network enabled inverse calculation to incident light of the diffraction grating from the light intensity distribution of the Talbot effect. The phase and intensity distribution of incident light can be predicted with high accuracy from the target Talbot effect. This inverse calculation method is expected as a technique for fabricating arbitrary complex periodic structures.

研究分野：光応用工学

キーワード：3次元リソグラフィ タルボット効果 高アスペクト比構造 機械学習 ホログラフィ

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

半導体リソグラフィ用途の加工技術は微細化の最先端であり 10nm 以下の精度で加工が実現している。しかしながら、縮小投影露光方式であることから加工領域が狭く、また、社会的には、装置が高額なことや製造ルールが厳密に決められていることから一部の限られたグループでしかその恩恵を受けることができない。一方で、汎用性の高い微細加工技術としては、ナノインプリンティングに代表される技術が注目を集めており、また、実用化の目処がつつある。しかしながら、加工精度に限界があるだけでなく、ナノ精度の型が高価であることなど課題が多く、新たなブレイクスルー技術が求められている。

2. 研究の目的

本申請課題では、既存のリソグラフィ技術やナノインプリンティング技術の課題を解決すべく、回折格子に光が透過した後に生じる三次元の微細周期強度分布をリソグラフィに応用するタルポットリソグラフィの高精度化および汎用化を目的とする。特に、原子レベルで高精度に配列されたグラフェンを用いて電子ビームを光学的に取り扱うことで、加工レベルを現行の半導体リソグラフィと同等とすることで、高精度、広範囲かつ安価な三次元加工を目指す。これは、社会的には微細構造の使用拡大による新たな市場効果が期待できるとともに、学術的には、世界初のサブナノレベル三次元一括加工だけでなく、波動光学的見地を加えることも可能であることからホログラフィ技術との融合など新たな微細加工の潮流を生み出す可能性を秘めている。

3. 研究の方法

(1) グラフェンを用いた電子ビームタルポットリソグラフィの検討

周期的な格子を 2 枚重ねた時に生じるモアレ現象と格子に光が入射した際に生じるタルポット効果を基本原理とする。周期的格子にはグラフェンを用いて電子顕微鏡の電子ビームを利用することでリソグラフィを行う。

(2) 高精度任意形状加工の実現

既存の光学的なタルポットリソグラフィの露光方法を改良する。具体的には、回折格子の角度を変更するなどの多重露光を行う、照明する光強度分布を空間位相変調器を用いて制御することで生成する光強度分布を制御する方法で研究に取り組んだ。

申請当初は、上記順番で研究を進める予定であったが、研究の効率性と緊急性から(2)を先に取り組んだ。また、機械学習などの新たな技術を組み合わせることで想定以上の進捗が見られたため(2)を重点的に取り組んだ。

4. 研究成果

(1) 斜入射露光による高アスペクト比構造作製法の確立

図 1 に、高アスペクト比構造の作製原理を示す。一般的なタルポットリソグラフィは、図 1(a) に示すとおり、レジスト上に設置した回折格子の直上から露光用レーザーを入射させると、回折格子透過直後に三次元周期が現れる。この周期強度分布を用いてレジストを露光することで三次元微細周期構造を一括加工できる。また、回折格子の大きさを大きくすることで広範囲の露光が実現する。ここで、露光レーザーの入射角度を図 1(b) に示すとおり傾けていくと、周期分布を形成するための高次回折光が傾き、適切な角度にすることで(c)に示すとおり、2 光波干渉となり直線上の光強度分布が得られる。この直線上の光強度分布を用いて露光すると高アスペクト比の露光が可能となる。なお、一般的な 2 光波干渉に比べ、タルポットリソグラフィは共通光路であることから環境的な要因に左右されにくい安定的な加工が可能である。

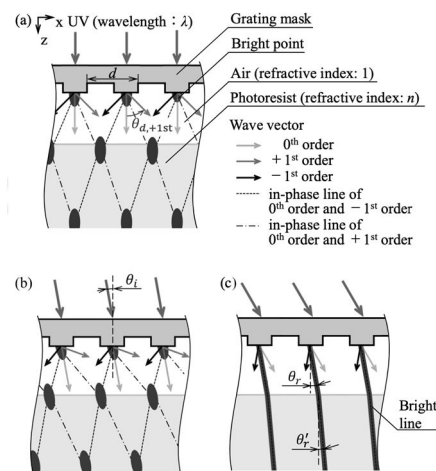


図 1 斜入射露光方式による高アスペクト比構造を作製するためのタルポットリソグラフィの原理。

図 2 に、露光プロセスを示す。まず、図 2(a) に示すとおり、ガラス基板の上にレジストを 6 μ m の厚さでスピコートしたのちに、(b) で示したプリベークを行うことで溶媒を気化させた後に、(c) で示したようにレジスト上に設置した回折格子に対して斜めからレーザーを照射し露光を行う。その後、図 2(d) に示すように現像処理を行い、(e) および (f) で示したように洗浄および乾燥処理を行うことで加工を実現した。

図 3 に、厳密結合波解析(FDTD)法によりレジスト内に生じる光強度分布を計算した。回折格子の格子間隔にたいして適切な入射角度が存在することがわかった。また、各格子で得られるレジ

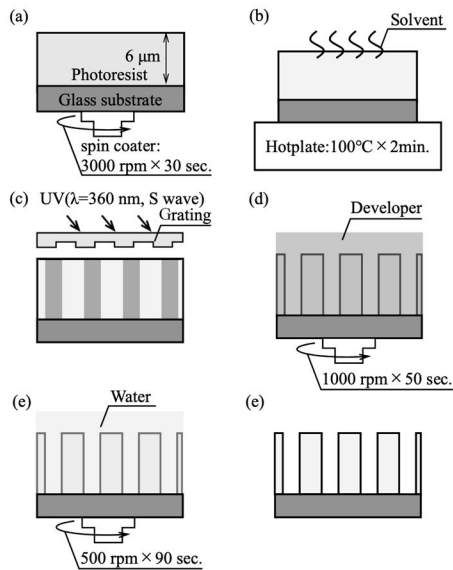


図2 斜入射タルボットリソグラフィのプロセス。

高アスペクト比の加工が実現した。また、このときの加工領域は光の照射範囲である 10mm であった。

高アスペクト比の微細周期加工は、これまで実現が非常に困難であったが、本手法を用いることで安価に広範囲に加工が実現できる。例えば、バクテリアなどを除去するバイオフィルタや光干渉により生じる構造色の生成に応用できる。

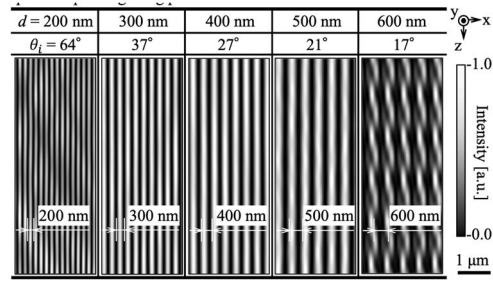


図3 斜入射露光方式により得られる三次元光強度分布の数値計算結果。

スト内の光強度分布は格子ピッチに依存することが分かる。

図4に、実際に作製した加工結果を示す。レジストにはSU-8を用い、回折格子のピッチは390nmとした。入射角度が0度のときは、一般的なタルボットリソグラフィと同様に三次元の周期的な分布が得られた。この加工結果のピッチは、横方向に390nm、縦方向に1.92μmとなった。入射角度が増加するにつれて、縦方向の格子ピッチが増加し、入射角度30度で縦方向につながった高

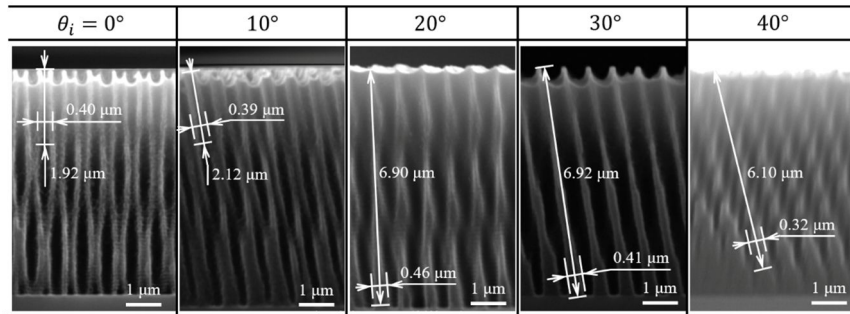


図4 斜入射露光方式により得られた高アスペクト比三次元周期構造。

(2) 機械学習を用いた任意形状作製法の確立

機械学習と空間位相変調器を用いることで任意の構造を得ることができた。図5に、任意の三次元構造を作製するための原理を示す。回折格子透過後の光強度分布は一義的に決定することができないため、数値計算を用いる必要がある。また、所望の光強度分布を得るためには逆問題を解くことが要求されるが数値解としてしか得られないため機械学習を用いた。具体的には、所望の強度分布を設定した後に、畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いて回折格子に入射させる光の強度と位相の分布を算出する。この入射させる光の制御には空間位相変調器を用いた。また、CNNの学習には、ランダムな位相と強度から得られる光強度分布を多数組用意することで実現した。

図6に、露光光学系を示す。露光光源であるUV光はビーム径を拡大された後に、空間位相変

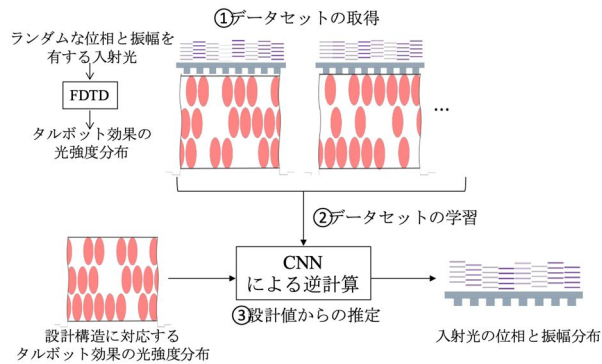


図5 任意形状を得るためのタルボットリソグラフィの原理。

調器 (SLM) に入射させることで強度および位相分布を制御する。レンズに入射させた後に回折格子に投射した。回折格子の格子間隔は 750nm とした。図 6 の右下に示すとおり、一様な光強度分布のときは格子のピッチが転写できていることは事前に確認した。

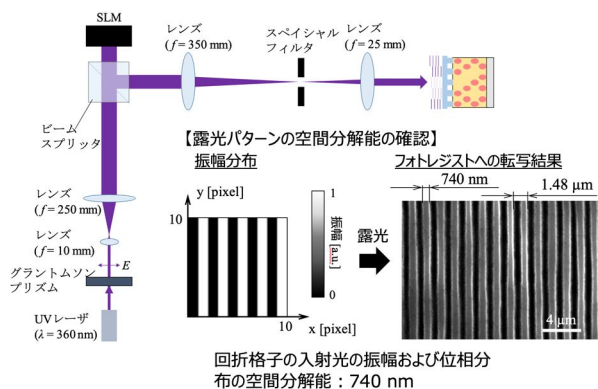


図 6 空間位相変調器を用いたタルボットリソグラフィの光学系。

図 7 に、露光プロセスを確認した結果を示す。適当な構造を設定し学習させた CNN から得られた位相分布を SLM に表示させたところ、FDTD による数値計算の結果と作製した構造の結果に良い一致が見られた。そこで、図 8 に示すとおり、一部の光強度分布を欠如させた構造の作製を試みた。作製された構造は、縦方向の構造が消滅した構造となり、設計構造とは完全には一致しなかった。実験に用いた入射光強度分布により得られる光強度分布を FDTD により計算してみたところ、作製構造と良い一致を示した。このことより、設計形状が得られなかった原因が CNN による推定が不十分であることが考えられる。今後は、CNN の推定精度を向上させる必要がある。しかしながら、空間位相変調器を用いた加工が可能であることも同時に示されており、任意形状の三次元分布を得る手法の確立ができたといえる。任意の三次元微細周期構造を得ることができると、一般的なリソグラフィで三次元制御するためには多数解の露光工程を繰り返す必要があることを鑑みると、効率的な観点から非常に優位である。また、光スイッチングデバイスや Lab on Chip の飛躍的な発展に貢献できるため、社会的に有用な技術を構築できたと結論できる。

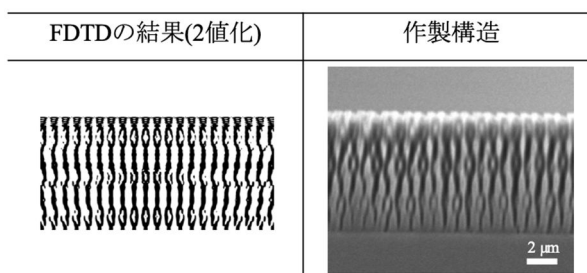


図 7 学習させた CNN を用いて作製した三次元周期構造。

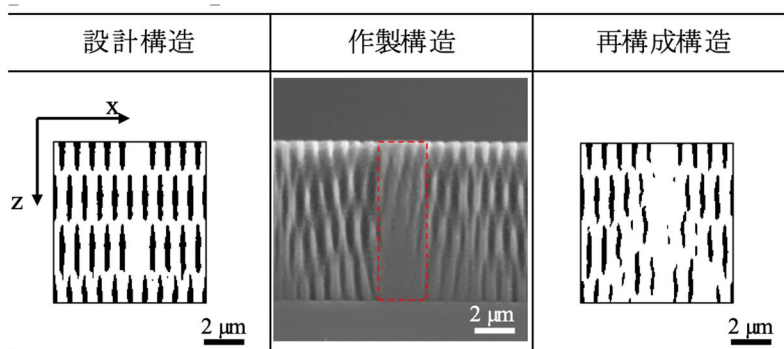


図 8 機械学習により推定した強度および位相分布を用いて作製した三次元微細周期構造。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 中西弘樹, 篠崎充, 水谷康弘, 高谷裕浩	4. 巻 85
2. 論文標題 タルボット効果による多重露光リソグラフィを用いた3次元ナノ周期構造の作製	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 精密工学会誌	6. 最初と最後の頁 710-719
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.2493/jjspe.85.710	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 中西弘樹, 水谷康弘, 高谷裕浩
2. 発表標題 タルボット効果を用いた広範囲3次元リソグラフィ(第2報)多重露光を援用した3次元ナノ周期構造の作製
3. 学会等名 2019年度精密工学会春季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroki Nakanishi, Yasuhiro Mizutani, Yasuhiro Takaya
2. 発表標題 Fabrication of three dimensional nano-periodic structure by the Talbot lithography using multiple exposure
3. 学会等名 Proc. SPIE 11142 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroki Nakanishi, Yasuhiro Mizutani, Yasuhiro Takaya
2. 発表標題 Shape control of nano periodic structure using hologram-assisted Talbot lithography
3. 学会等名 ISMTI 12019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Mizutani, Hiroki Taguchi, Otoki Yagi, Yasuhiro Takaya
2. 発表標題 Computational Ghost Imaging with deep learning
3. 学会等名 6th International Conference on Instrumentation, Control, and Automation 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中西弘樹, 水谷康弘, 高谷裕浩
2. 発表標題 タルボット効果を用いた広範囲3次元リソグラフィ (第2報) -多重露光を援用した3次元ナノ周期構造の作製-
3. 学会等名 2019年度精密工学会春季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Mizutani, Hiroki Taguchi, Yasuhiro Takaya
2. 発表標題 High-speed ghost imaging
3. 学会等名 ISOT2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中西弘樹, 水谷康弘, 牧浦良彦, 横田博, 高谷裕浩
2. 発表標題 タルボットリソグラフィにおけるホログラムを用いたナノ周期構造の形状制御
3. 学会等名 日本光学会年次学術講演会Optics&PhotonicsJapan2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中西弘樹, 上野原努, 水谷康弘, 牧浦良彦, 高谷裕浩
2. 発表標題 タルボット効果を用いた広範囲 3 次元リソグラフィ (第4報) -入射光の複素振幅分布制御による構造の周期および形状制御-
3. 学会等名 2020 年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryu Ezaki, Yasuhiro Mizutani, Yoshihiko Makiura, Hiroshi Yokota, Yasuhiro Takaya
2. 発表標題 Fabrication of Three Dimensional High Aspect Ratio Structure by Talbot Lithography
3. 学会等名 ASPEN2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 江崎隆, 水谷康弘, 高谷裕浩
2. 発表標題 タルボット効果を用いたフォトリソグラフィによる高アスペクト比構造の作製
3. 学会等名 日本機械学会 関西学生会2018年度学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 江崎隆, 水谷康弘, 金子新, 牧浦良彦, 横田博, 高谷裕浩
2. 発表標題 タルボット効果を用いた広範囲3次元リソグラフィ (第3報) -高分子膜への構造転写手法の開発-
3. 学会等名 2019年度精密工学会秋季大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 微細構造体及びその製造方法	発明者 水谷康弘, 高谷裕 浩, 中西宏樹, 江崎 隆, 牧浦良彦	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-203528	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 微細構造体及びその製造方法	発明者 水谷康弘, 高谷裕 浩, 中西宏樹, 江崎 隆, 牧浦良彦	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-203525	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	高谷 裕浩 (Takaya Yasuhiro) (70243178)	大阪大学・工学研究科・教授 (14401)	