

非線形リソグラフィーによるガラスの立体的表面加工

¹北海道大学 電子科学研究所, ²大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻

西山 宏昭¹, 平田 好則²

Three-dimensional glass surfaces fabricated using nonlinear lithography

Hiroaki Nishiyama¹ Yoshinori Hirata²

¹Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University, ²Graduate School of Engineering, Osaka University

はじめに

SiO₂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SiO₂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一見、非の打ちどころがなく、これまでに、フォトリソグラフィやエレクトロニクスにおいて、様々な微細構造形成に用いられてきたのも頷けるが、

同プロセスの平面性は如何ともし難い。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¹。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い。この問題は、数百μmオーダの段差構造を含むMEMS分野では、“Nano on MEMS”とも絡めて議論されており、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。本稿では、半導体加工プロセスへの立体性付与を目指して、筆者らが最近取り組んできた非線形二光子リソグラフィーを用いたガラスの立体的表面加工について報告する²⁻⁵。

〒001-0021 札幌市北区北21条西10丁目
TEL 011-706-9349
FAX 011-706-9346
E-mail: nishiyama@es.hokudai.ac.jp

立体的表面加工プロセス

図1に、立体的表面加工プロセス（FLAM: Femtosecond-laser lithography-assisted micromachining）の一例として、凹部への微細構造形成プロセスを模式的に示す。FLAMは、立体基板上に塗布したフォトレジスト内部に、フェムト秒レーザー（波長780 nm, パルス幅127 fs, 繰返し周波数100 MHz）が誘起する二光子吸収過程を用いて微細パターンを描き、プラズマによって下地基板へと転写する複合プロセスである。レジスト表面からエネルギーが吸収される通常の紫外光や電子ビームを用いたリソグラフィーでは、均一な厚膜分布を得ることは微細パターンを形成する上で必須であるが、立体基板上に塗布したレジストは、表面張力のために場所によって膜厚が異なる。特に凹部はレジスト内に深く埋まり、微細パターンニングを阻害する。これに対し、二光子吸収過程を利用すれば、レジスト内に直接にサブ波長構造を描画でき有用である。二光子吸収を利用した光造形は、これまでも報告があるが、高い空間分解能を得るために、超高NAレンズ（1.2~1.45）が使用される場合がほとんどである^{6,7}。このため、作動距離は100~300 μm と極端に短く、

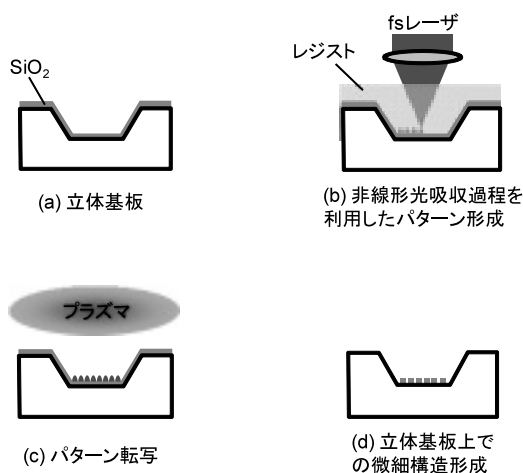


図1 立体的表面加工プロセスの模式図。非線形光吸収過程を導入することで、半導体加工プロセスの適用範囲を立体基板上に拡張した。

また油浸レンズであるため、露光は基板越しに背面から行うこととなる。この結果、薄く透明なカバーガラス（厚み150 μm 程度）を基板とした樹脂造形あるいは特性評価に注力されており、半導体加工プロセスへの導入は検討されてこなかった。これに対し、FLAMでは、作動距離の大きな低NAレンズを採用しているため、Siのような不透明かつ厚みのある汎用材料をも加工対象とすることができる。一方で、フェムト秒レーザーの低NAレンズ集光に起因した特異な光伝搬が起こるが、これについては後節で述べる。

立体的表面構造の形成

図2は、FLAMによって段差上に作製したSiラインのSEM像である。段差上に塗布したポジレジストの内部から表面にかけて壁状パターンを描画し、それらを CHF_3 プラズマによって下地へと転写した。二光子吸収は楕円形状の領域で起こり、その形状は主として焦点近傍の電界強度によって決まる。このため、レーザー照射条件が同一であれば、レジスト表面からの距離によらず、常に一定サイズの改質径を得ることが期待できる。実際、高低差はおよそ65 μm であるが、どの高さ位置であっても、同一線幅のパターンが観察されている。また、シャープなエッジも確認できる。MEMS分野では、段差上に均一線幅のパターンを形成する場

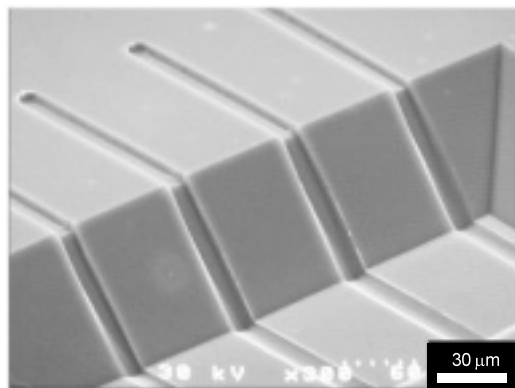


図2 高低差65 μm の段差上の形成したSiライン構造のSEM像³。

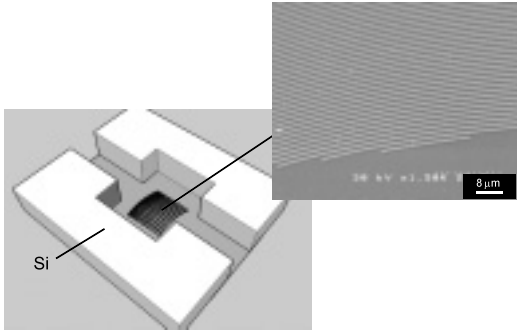


図3 立体的表面加工プロセスによってSiマイクロ流路内に形成した反射型SiO₂オフアクシス・グレーティング集光器。不均一周期の曲線パターンで構成される。

合、スプレーコート法で均一膜厚の薄膜レジストを塗布し、長焦点光学系で露光を行われる。この場合、空間分解能は平面基板の場合の1000分の1にまで低下し、数十μm程度となるが、本手法は、それに比べ、立体上であっても高い分解能を実現している。図3は、FLAMによってSiマイクロ流路内に形成した反射型SiO₂オフアクシス・グレーティング集光器のSEM像を示す。入射角30度のプローブ光(波長632.8nm)をこの集光器によって、レンズ直上1mmの位置で集光するよう設計している。集光器の回折効率、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。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。ただし、このような集光構造を得るには100μmオーダの高低差を有する流路底部あるいは側壁に、グレーティング周期が徐々に変化する精密な微細曲線を描く必要があり、通常の半導体加工プロセスや機械加工では困難である。これに対し、本手法では、複雑なサブ波長構造であっても流路底部に形成することが可能である。図4に、オフアクシス・グレーティングによる集光スポットの光学顕微鏡像を示す。設計値に近い集光スポット

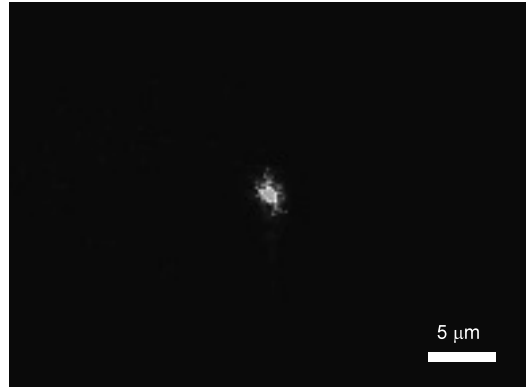


図4 反射型SiO₂オフアクシス・グレーティングによる集光スポットの光学顕微鏡像。

径が焦点距離で得られており、本手法の有用性が分かる。

パターンニング特性

低NAレンズを用いてレーザ光をレジスト中に集光すると、現像後に、図5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、露光時のレーザ集光位置が異なるためであり、図には、基板表面を原点としたときの、集光位置を示している。図中のパターンの最大高さは50μm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

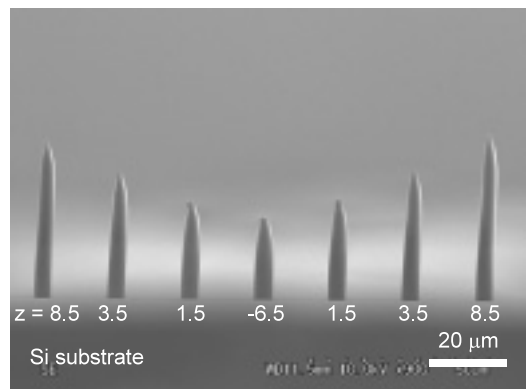


図5 低NAレンズ集光によって形成された柱状のレジストパターン²⁾。

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^{2,8}。

図6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100 $\mu\text{m/s}$ 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⁹。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。化学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

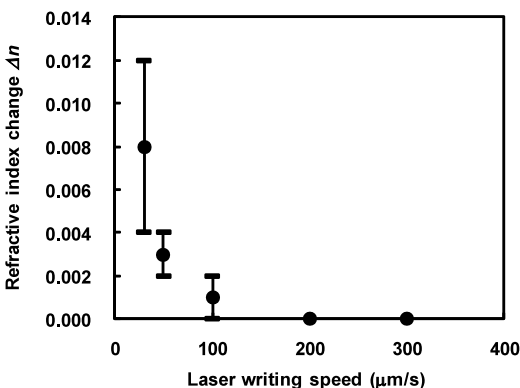


図6 フェムト秒レーザー露光によるフォトレジストの屈折率変化量⁸。露光後のポストベイクは行っておらず、露光直後に測定した。

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、レーザー共振波長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ても、導波することはできない。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 SiO_2 構造の形成が期待できる。

終わりに

本稿では、非線形二光子リソグラフィーの導入による半導体加工プロセスへの立体性付与に

ついて報告した。半導体加工プロセスの微細性や高い加工品質を立体基板へと適用することができる。ただし、汎用材料を加工対象とするには、低 NA レンズで集光を行う必要があり、このとき、集光部での光改質に基づいたチャネル伝搬が生じ得る。Si マイクロ流路底部に、SiO₂ 反射型オフアクシス・グレーティング集光器を作製し、その集光特性を確認した。今後、FLAM の高度化のためには、光伝搬の制御・解析を行っていく必要があるが、広い適用範囲が期待できるため、マイクロシステムの高機能化やプラズモニクスの機能探索にも利用できると考えている。

【参考文献】

1. Micro-Optics-Elements, Systems and Applications -, ed. H. P. Herzig, Taylor & Francis Ltd. (1997) chapter 4.
2. H. Nishiyama, M. Mizoshiri, T. Kawahara, J. Nishii and Y. Hirata, Opt. Express, 16 (2008) 17288.
3. M. Mizoshiri, H. Nishiyama, T. Kawahara, J. Nishii and Y. Hirata, Appl. Phys. Express, 1 (2008) 127001.
4. M. Mizoshiri, H. Nishiyama, J. Nishii and Y. Hirata, Appl. Phys. A, 98 (2010) 171.
5. H. Nishiyama and Y. Hirata, Femtosecond laser nonlinear lithography, Lithography ed. M. Wang, IN-TECH. Ltd. (2010).
6. S. Kawata, H.-B. Sun, T. Tanaka and K. Takada, Nature, 412 (2001) 697.
7. K. K. Seet, V. Mizeikis, S. Matsuo, S. Juodlasis and H. Misawa, Adv. Matter., 17 (2005) 541.
8. M. Mizoshiri, H. Nishiyama, J. Nishii and Y. Hirata (submitted).
9. A. S. Kewtisch and A. Yariv, Opt. Lett., 21 (1996) 24.