

軸対称偏光ビームによるレーザー誘起転写法と ナノ電子デバイス作製への応用

東北大学 多元物質科学研究所
准教授 中村 貴宏
(平成 27 年度 一般研究開発助成 AF-2015213)

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，ビーム制御

1. 研究の目的と背景

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、多岐にわたる工程やそれに伴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。近年、インクジェット技術を用いた直接描画法によるプリンテッドエレクトロニクスが注目されているが、その描画サイズはサブマイクロメートル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、さらに、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、描画後の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。

これらの背景に基づき、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ナノ構造形成手法を確立することを目的に研究を行った。LIFT は、レーザー光の波長に対して透明な基材 (キャリア) 上に堆積した薄膜物質 (ドナー) に対して、基材後方からパルスレーザー光を単パルス照射することで、薄膜物質の一部を対向する基板 (アクセプター) 上に転写する直接描画法である。この手法は、金属¹⁻³⁾だけでなく酸化物^{4, 5)}や生体材料^{6, 7)}など様々な物質を任意基板上にワンステップで転写することができるため極めてシンプルであり、洗浄や焼結などの後工程なども必要としないことから省エネルギーな手法である。近年では、ビームを成形するマスクなどを用いることで任意形状の物質を転写したりそれらを三次元的に積層するという研究も報告されている⁸⁾。しかしながら、その描画サイズはレーザー光の回折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、近年中心に穴の開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象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ラジアル偏光ビームを特定の条件で集光することで、光の回折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⁹⁾。したがって、照射レーザービームの横断面プロファイルを制御して回折限界を超えた集光スポットを形成することで、LIFTを用いた直接描画により 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ができるものと考えた。

2. 実験方法

2・1 ビームプロファイルを制御したレーザーを用いた LIFT のための実験光学系の製作

ビームプロファイルを制御したレーザーを用いた LIFT のための実験光学系を図 1 に示す。LIFT に用いるドナー物質には先行研究¹⁰⁾を参考にスパッタによりカバーガラス (キャリア) 上に堆積した膜厚 30 nm の金属クロム薄膜を用いた。キャリア基板をシリコン単結晶基板の上にドナー薄膜が面合わせとなるように配置し、キャリア基板後方からフェムト秒パルスレーザー (波長 800 nm, パルス幅 100 fs) の単パルスを対物レンズ (倍率 100, 開口数 0.8) を通じてキャリア基板とドナー薄膜の界面に集光・照射した。またこの際、ビームプロファイル制御のためまずはガウスビームに対して図に示すマスクを用いて円環ビームを形成した。

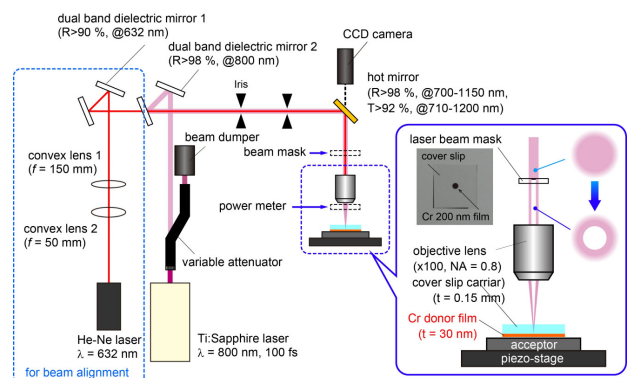


図 1 横断面プロファイルを制御したレーザービームを用いた LIFT のための実験光学系

2・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、レーザービームを集光した際の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。したがって、まずは形成が比較的容易な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, 対物レンズの開口数 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解説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が 30 %低減し、高軸方向には 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横断面プロファイルを制御したビームを用いることで、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ものと予測された。

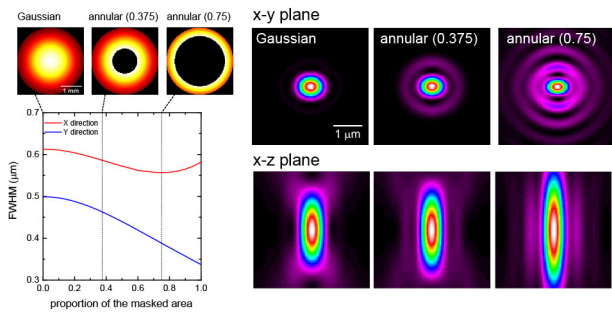


図2 ガウスビームならびに円環ビームを集光した際の焦点近傍における強度分布の計算結果。

3. 実験結果

3・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 にガウスビームならびに円環ビームをシリコン基板に集光・照射した際に形成されるアブレーション痕の光学顕微鏡観察結果を示す。この際基板の位置をレーザーの焦点付近前後で z 軸方向に対して 300 nm ステップで走査した。この結果から、ガウスビームを集光した場合に比べて円環ビームを集光した際に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の低減化が実験的に明らかとなった。さらに、アブレーションが生じる z 軸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

ことが分かり、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。

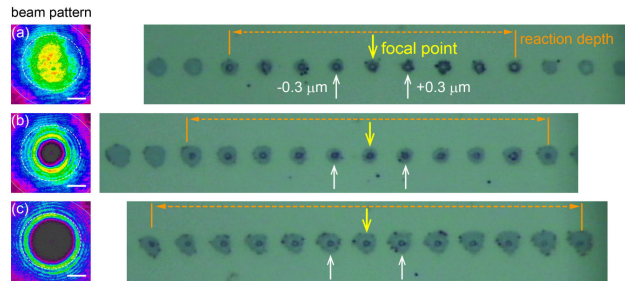


図3 レーザー焦点付近においてシリコン基板高さを走査した際に形成されたアブレーション形状の推移。(a) ガウスビーム, (b) 37.5 %円環ビーム, ならびに (c) 75 %マスク円環ビーム。

3・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。キャリアに対して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堆積物の SEM 像を図 4 に示す。この際、レーザー照射位置はシングルショット毎に 2 μm 間隔で移動した。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) には大小さまざま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ていることが分かり、照射レーザーエネルギー 5 nJ の場合に、単一のドットを $\pm 0.13 \mu\text{m}$ 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できなかったことから、本実験システムを用いた LIFT による構造物形成のための照射レーザーエネルギー閾値は 5 nJ であることが明らかとなった。一方、本実験において作製された最小の構造物の直径は約 150 nm であり、先行研究⁶⁾で報告されている微小構造サイズの 330 nm に比べて大幅な低減が確認された。これは本研究において用いた光学系における精緻なアライメントと、適切な照射エネルギー条件の選定に起因しているものと考えられる。照射レーザーエネルギーを変えた LIFT 後のキャリア表面の SEM 像を図 5 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、LIFT による微小構造形成のための最適エネルギー条件である 5 nJ の場合は、直径約 800 nm の凸構造が形成されていることがわかった。この結果から最適レーザーエネルギー条件の LIFT の際には、レーザー照射部の中心部分のみがアクセプター基板上に転写されることで独立したドットが位置選択的に形成されたものと考えられる。

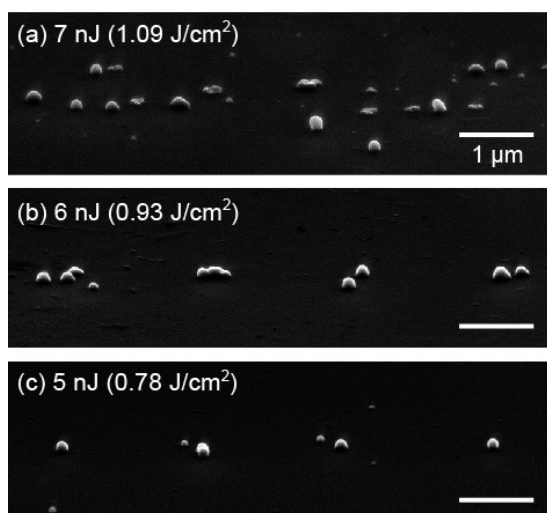


図 4 異なるレーザーエネルギーのガウスビームを照射した際に形成されたクロム堆積物の SEM 像. (a) 7 nJ, (b) 6 nJ および (c) 5 nJ の結果.

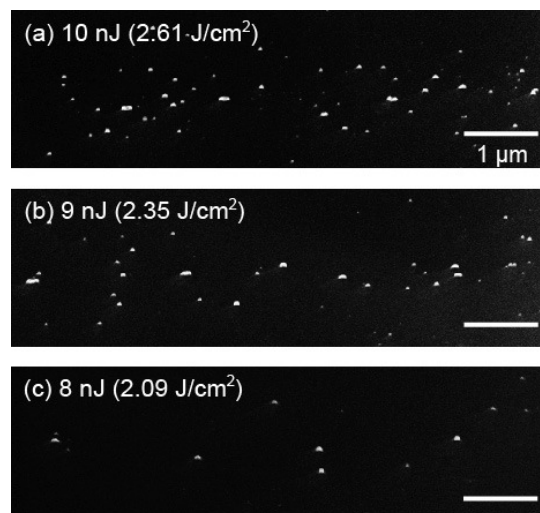


図 6 異なるレーザーエネルギーの円環ビームを照射した際に形成されたクロム堆積物の SEM 像. (a) 10 nJ, (b) 9 nJ および (c) 8 nJ の結果.

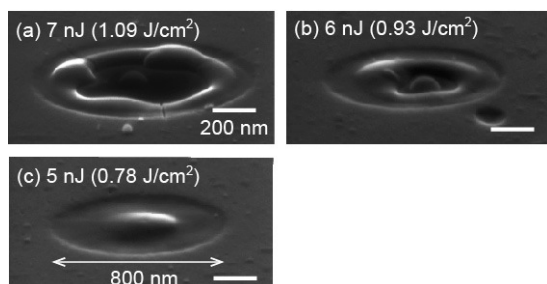


図 5 異なるレーザーエネルギーのガウスビームを照射した際のキャリアの SEM 像. (a) 7 nJ, (b) 6 nJ および (c) 5 nJ の結果.

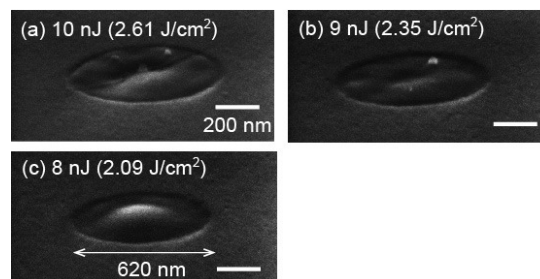


図 7 異なるレーザーエネルギーの円環ビームを照射した際のキャリアの SEM 像. (a) 10 nJ, (b) 9 nJ および (c) 8 nJ の結果.

3・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上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（以下単に円環ビームとする）を用いた LIFT 実験を行った。

図 6 に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 像を示す。照射レーザーエネルギー 10 nJ および 9 nJ の場合には、大小さまざま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 の場合には単一ドットの形成が確認された。この時、形成されたドットの直径は最小で約 60 nm であり、直接描画手法では世界最小の構造体の形成に成功した。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 による微細構造形成のための照射レーザーエネルギー閾値は 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 による微小構造作製のための最適レーザー照射エネルギー条件 (5 nJ)

に比べて高いものとなった。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) 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る。一方、円環ビームを用いた LIFT により形成されたドットは、ガウスビームを用いた場合に比べて位置精度が乏しいことがわかる。これはサブ 100 nm の構造がドナー基板へと転写される際の空気抵抗によるものであると考えられ、系を真空に排気することで改善可能であると予測される。照射レーザーエネルギーを変えた LIFT 後のキャリア表面の SEM 像を図 7 に示す。微細構造形成のための最適レーザーエネルギー条件である 8 nJ でレーザー光を照射した際のキャリア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、ガウスビームに比べて 75% となっていることがわかる。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。

3・4 LIFT を用いた二次元構造形成についての検討

LIFTによる微細構造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目的としてステージ走査間隔を変えて実験を行った。本実験は転写物の位置精度に優れるガウスビームを用いて照射レーザーエネルギーを5 nJとし、ステージ走査間隔をそれぞれ2, 1, 0.5 μm としてレーザー照射を行った。レーザー照射後のドナー基板のSEM像を図7に示す。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、キャリアにレーザーパルスが照射された場合、照射領域のキャリアが変形することが明らかとなっているが、その形態変化の影響を受けるような短いステージ走査間隔では、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。すなわち、キャリアとアクセプターとをそれぞれ独立に走査することによって、LIFTを用いた微小二次元・三次元構造の形成が可能となるものと予測される。

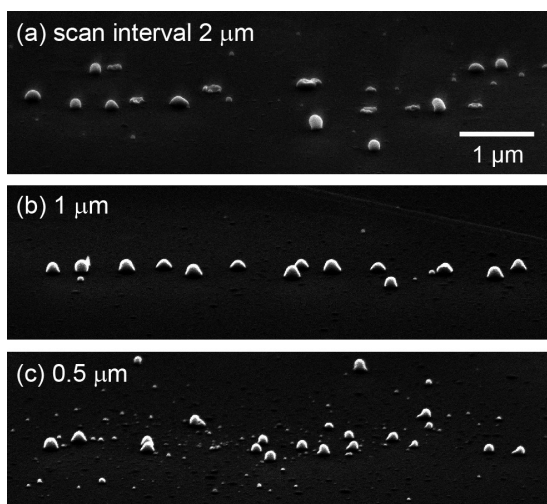


図8 照射レーザーエネルギー5 nJのガウスビームを用いたLIFTの際に、ステージを異なる間隔で走査して形成したクロム堆積物のSEM像。(a) 2 μm 、(b) 1 μm および(c) 0.5 μm の場合。

4. まとめ

本研究では、パルスレーザーの横断面プロファイルを制御することで焦点付近において微小スポットを形成し、それを用いたレーザー誘起転写法(LIFT)により、10 nmオーダーの構造を直接作製することを目的に研究を行った。ガウスビームの中心をマスクすることで形成した円環ビームを集光することで、通常のガウスビームに比べて焦点スポットサイズを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

形成された構造の最小サイズを大幅に更新し、直径が60 nm程度のドットの直接形成に成功した。一方、LIFTを用いた二次元・三次元構造形成のためには、キャリアとアクセプターをそれぞれ独立して走査することが必要であることが明らかとなった。

謝辞

本研究の遂行にあたり、レーザー照射実験ならびに構造評価を行った大町弘毅氏に感謝する。また、レーザー光の電場強度分布計算やビーム形成に関してご協力いただいた東北大学多元物質科学研究所准教授小澤祐市氏に感謝する。

本研究は、公益財団法人天田財団平成27年度一般研究開発助成(AF-2015213)の助成により行われた。

参考文献

- 1) L. Yang, C. Wang, X. Ni, Z. Wang, W. Jia, and L. Chai, *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006) 161110-1-3.
- 2) A. I. Kuznetsov, C. Unger, J. Koch, and B. N. Chichkov, *Appl. Phys. A*, **106** (2012) 479-487.
- 3) A. Narazaki, R. Kurosaki, T. Sato, Y. Kawaguchi, W. Watanabe, and H. Niino, *J. Laser Micro/Nanoeng.*, **7** (2012) 77-80.
- 4) F. Claeysens, A. Klini, A. Mourka, and C. Fotakis, *Thin Solid Films*, **515** (2007) 8529-8533.
- 5) M. Sanz, M. Walczak, M. Oujja, C. Domingo, A. Klini, E. L. Papadopoulou, C. Fotakis, and M. Castillejo, *Thin Solid Films*, **518** (2010) 5525-5529.
- 6) V. Dinca, M. Farsari, D. Kafetzopoulos, A. Popescu, M. Dinescu, and C. Fotakis, *Thin Solid Films*, **516** (2008) 6504-6511.
- 7) F. Guillemot, A. Souquet, S. Catros, B. Guillotin, J. Lopez, M. Faucon, B. Pippenger, R. Bareille, M. Rémy, S. Bellance, P. Chabassier, J. C. Fricain, and J. Amédée, *Acta Biomater.*, **6** (2010) 2494-2500.
- 8) J. Wand, R. C. Y. Auyeung, H. Kim, N. A. Charipar, and A. Pique, *Adv. Mater.*, **22** (2010) 4462-4466.
- 9) Y. Kozawa and S. Sato, *J. Opt. Soc. Am.*, **24** (2007) 1793-1798.
- 10) D. P. Banks, C. Grivas, J. D. Mills, R. W. Eason, and I. Zergioti, *Appl. Phys. Lett.*, **89** (2006) 193107-1-3.