

レーザー誘起欠陥配列の機構解明

北見工業大学 工学部 機械工学科

助教 吉田 裕

(平成 28 年度 奨励研究助成 AF-2016230)

キーワード：レーザー照射，周期的ナノ構造，電子顕微鏡

1. 研究の目的と背景

高密度の光子は、ナノ・マイクロサイズの物体を操作する・固定するといった光学技術へと発展している。例えば、ファブリペロー共振のように設置されたミラー間の光共振はミラーを移動させ、そのミラーの振動は安定となることが知られている。この技術はさらなる高精度化とともに発展が期待されている。

一方でナノ秒パルスレーザー照射によるナノドット形成を伴うレーザー照射欠陥配列制御の研究が進められている。この技術はシリコン(Si)表面上に Vidro-nanodot と呼ばれる周期的なドット配列や基盤となる Si と Au の合金構造を伴う複合ナノ構造の作製など、様々な分野への応用が期待できる¹⁻³⁾。しかしながら、その形成機構はいまだよく理解されいない。これまでの研究よりトップダウンプロセスである光の干渉機構とボトムアッププロセスである自己組織化機構の競合現象であると考えられており、特に光の干渉機構において、レーザー照射時のナノ構造形成には散乱体間で干渉し合う散乱光による影響が示唆されたが、詳細は明らかではなかった。マイクロオーダーの領域で起こる現象であるため、高精度な検証が必要となる。

そこで本研究は電子線描画の利用した高精度な Au 細線パターンを準備してレーザー照射を行い、レーザー誘起欠陥配列の形成機構解明を目指すことを目的とし、特に Au 細線パターンを散乱体として散乱体間で干渉し合う散乱光による影響を明らかにすることで干渉機構を解明する。さらに高精度 Au 細線パターン利用により限られた領域に選択的な複合ナノ構造を一括作製することを試みたので、その結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 サンプル準備

実験は $10 \times 10 \text{ mm}^2$ のシリコン基板の上にレジスト(ZEP-520a; Zeon)を塗布し電子線描画(EBL: ELS-770H; Elionix)を施した。その後、現像、その後スパッタによって、Cr(2 nm), Au(30 nm)の順に蒸着を行い、リフトオフして散乱体となる Au 細線(30 nm \times 30 nm \times 6 mm)をシリコン基板の上に準備した。描画条件は電子線の加速電圧が 125 及び 130kV, ドーズ量は $280 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, 電流は 1.2 nA とした。散乱体となる Au 細線をレーザー波長の整数倍とそうではない間隔で配置した。Au 細線の間隔は 1100 ± 30 から $1600 \pm 30 \text{ nm}$ 及び 5800 ± 30 から $6200 \pm 30 \text{ nm}$ である(図 1)。さらに $1600 \text{ nm} \times 1600 \text{ nm}$ の Au 細線パターンも準備し、同様にレーザー照射を実施、照射前後の表面 SEM 観察を行った。

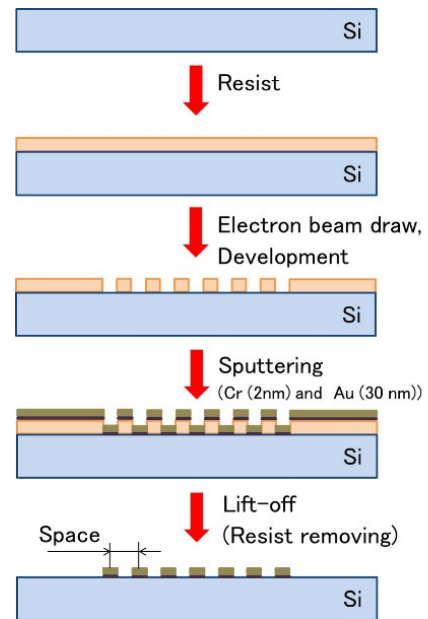


図 1 電子線描画を利用したシリコン表面ナノ構造の作製準備⁴⁾

2.2 レーザー照射条件

レーザー照射には Nd:YAG レーザー (Inlite II; Continuum Co., Ltd.) 532nm 波長,パルス幅は 5-7nm を用いた。ビーム径は $\phi 6$ mm, 平均エネルギー密度を 1.24 kJ/m², 周波数 2 Hz の条件で実施した。その後, 走査型電子顕微鏡(SEM : JSM-7001F; JEOL)により表面に形成するナノ構造配列を観察するとともに欠陥配列に関する考察を行った。

3. 研究成果⁴⁾

3.1 散乱体の影響

図 2 (a)は 1,096 から 1,580 nm の間隔で準備したラインアンドスペースサンプルを示す。実験ではこれらの Au 細線をレーザー光の散乱体として, Au 細線パターン間隔の違いによる影響を調査した。図 2 (b)から (f)は各サンプルにレーザー照射を施した後のある領域の表面 SEM 写真である。図 2 (b)1,096nm と(c)1,200nm では Au 細線間に形成するドットは整列していないが 1 列のドット配列が確認できた。これらの間隔はレーザー波長の約 2.06 と 2.26 倍である。図 2 (d)1,280nm では Au 細線間に散乱したドット形成が確認できた。この間隔は, 波長の約 2.41 倍であった。図 2 (e)1,393nm では不完全であるが 2 列のドット列の形成を見ることができる。この間隔は波長の約 2.62 倍であった。図 2 (f)1,580nm ではついに完全に整列した 2 列のドット配列を見つけることができた。そのドット配列間隔は 526 nm であり, レーザー波長の 2.97 倍と最も波長の整数倍に近い値である。

図 3 (a)と(b)は 1280nm と 1580nm の照射後の広い領域での SEM 像を示している。図 3 (a)の 1,280nm ではある領域は 1 列であり, 溶けた Au 細線は元の位置よりドット側に引き寄せられるように移動している。また, ある領域では 2 列が確認でき溶けた Au 細線はドット配列から遠ざかるように移動している。図 3 (b)1,580nm で Au 細線の移動は見られない。これらの結果より, 散乱体 (Au 細線) 間隔が入射レーザー波長の整数倍ではない場合, 散乱体間では位相が一致せず, ナノ構造配列は不完全となり, 整数倍($n\lambda$)であれば, 散乱光は強め合い完全なナノ構造配列が形成されることを示唆した(図 2, 図 3 (c))。

図 3(d)は Au 細線の間隔が 1,580 nm の時の完全な 2 列

のナノドット配列を傾斜した状態で観察した SEM 像を示している。ドットはシリコン基板表面から突起した形状であり高さは約 120 nm,直径は平均 $\phi 50$ nm であった。これらは Vidro-nanodot と同じ構造である。²⁾

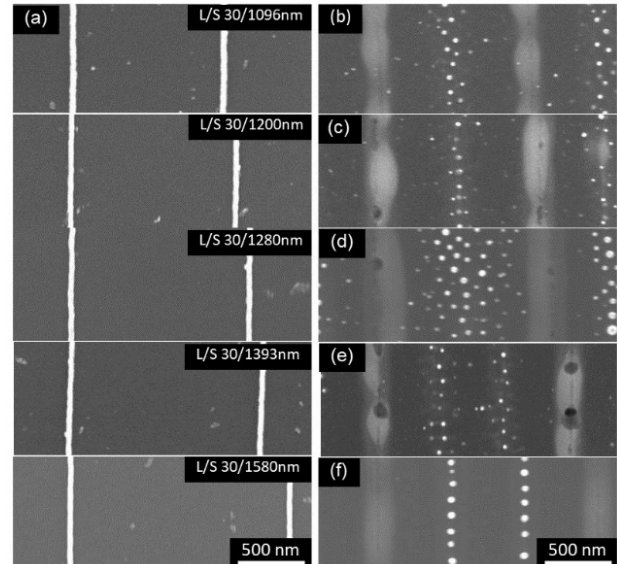


図 2 レーザー照射前後のシリコン表面ナノ構造の表面走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察 (a) 照射前の各ラインアンドスペースの観察, (b-f) 500 パルスのレーザー照射後, (b) 1096 nm; (c) 1,200 nm; (d) 1,280 nm; (e) 1,393 nm; (f) 1,580 nm。⁴⁾

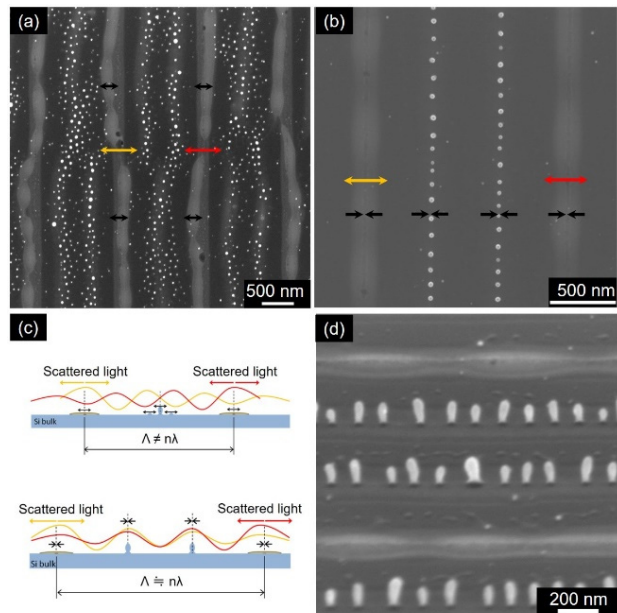


図 3 (a) 1,280 nm と (b) 1,580 nm のラインアンドスペースでの SEM 像の比較及び(c)イラスト (d) レーザー照射(1,580 nm のラインアンドスペースサンプル)を傾斜した観察写真⁴⁾

3.2 散乱体距離の影響

この現象をより理解ため、ラインアンドスペースの間隔を拡大して実験を実施した。図4は(a)5,700 nm から 6,200 nm の間隔の異なるサンプルを準備し、(b)から(f) レーザー照射(500 パルス)をした後の SEM 像を示している。

図4 (b)5,793nm では不完全なドット配列の形成が確認できる。波長に対して 10.89 倍となる。図4 (c)5,871nm ではラインアンドスペース間に完全なドット配列を見つけることができる。これらのドット配列間隔は 533 nm であり、波長に対しては 11.03 倍とほぼ整数倍であり、

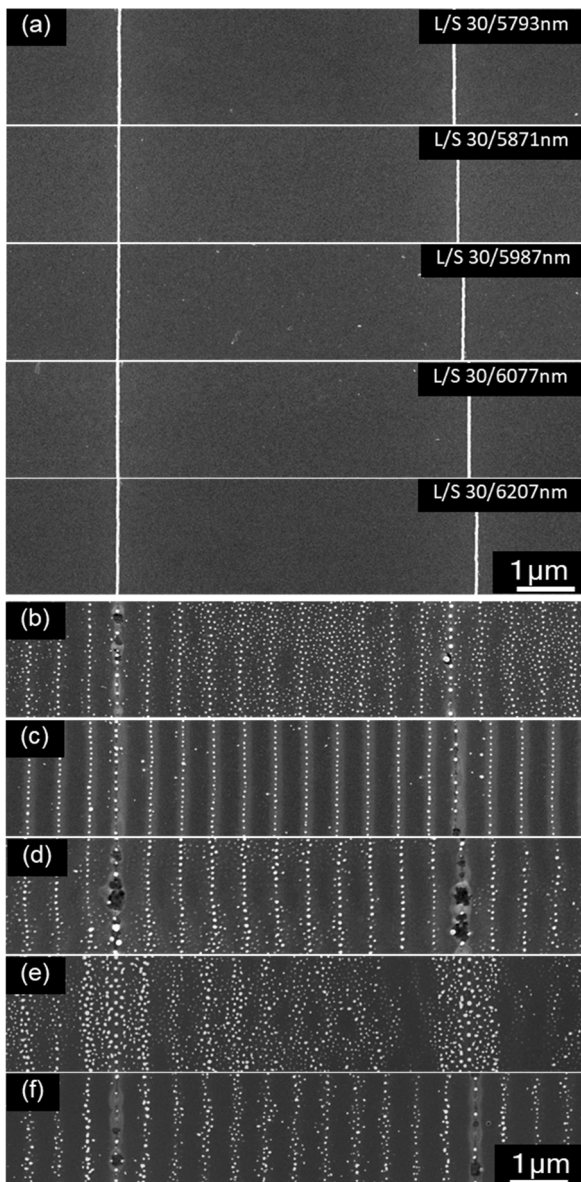


図4 レーザー照射前後のシリコン表面ナノ構造表面の走査型電子顕微鏡 (SEM) 観察 (a) 照射前の各ラインアンドスペースの観察, (b-f) 500 パルスのレーザー照射後, (b) 5,793 nm; (c) 5,871 nm; (d) 5,987 nm; (e) 6,077 nm; (f) 6,207 nm. ⁴⁾

照射したレーザー波長に一致していると言える。図4 (d)から (f)では不完全な配列となり、特に図4 (e)6,077nm は波長に対して 11.42 倍と位相のズレが半波長に近い。表面には散乱したドット形成が確認できる。また、図4 (f)6,207nm では(b)から(e)とは異なり、ドット配列が 1 列増えていることからレーザー照射による周期的ドット配列機構において、散乱体の間隔の影響が明らかである。よって、本研究結果からレーザー照射による配列構造の形成において、完全なドット配列が出現する条件は、散乱体となるラインアンドスペースの間隔が $\Delta = n\lambda$ となる条件であると考えられる。また、その効果は、散乱体間の距離が波長の 10 倍以上でも成り立つことも明らかとなった。

3.3 選択的パターン化技術への応用

さらに、図5には Au 細線によって、約 1600nm × 1600nm の格子状のパターンを準備して、レーザー照射した結果を示す。図5 (a)は照射前の表面 SEM 像である。図5 (b)は照射後の表面 SEM 像である。波長間隔に対して 3.01 倍と高精度で製作された Au 細線の限られた領域に完全なナノ構造配列をパターン化させることに成功した。しかしながら、ドット位置や数などの精度に関しては未解決な部分もある。これについて今後の課題としたい。

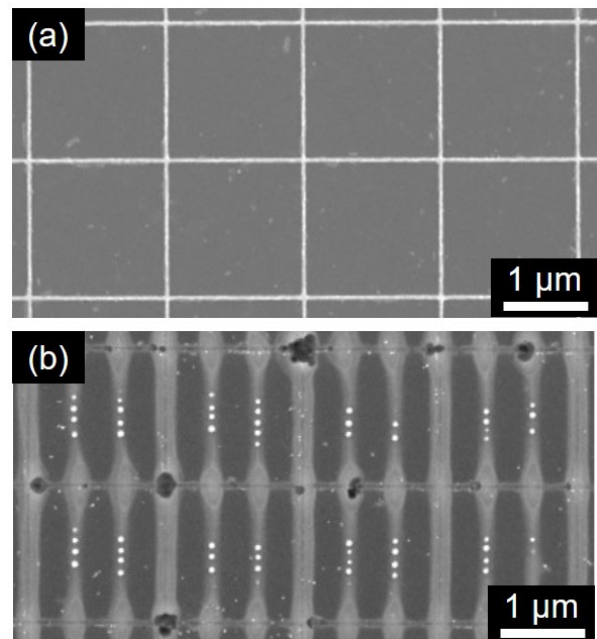


図5 シリコン表面に準備した 1,600 × 1,600 nm 格子のレーザー照射前後の構造観察 (a) 照射前; (b) 500 パルスのレーザー照射後 ⁴⁾

4. まとめ

本研究では電子線描画の利用した高精度な Au 細線パターンを準備してレーザー照射を行った結果, 以下のことが明らかとなった.

完全なドット配列が出現する条件は,

- (1) 散乱体の間隔が $\Lambda = n\lambda$ の時である.
- (2) 散乱体間の距離が波長の 10 倍以上でも成り立つ.
- (3) 限られた領域にナノ構造配列をパターン化させる技術への応用が期待できる.

謝 辞

本課題は公益財団法人天田財団の平成 28 年度奨励研究助成 AF-2016230 の補助を受け, 遂行されました. また, ナノテクプラットホーム事業による装置利用を通じて実施されました. ここに深く感謝の意を表します.

参考文献

- 1) S. Watanabe, Y. Yoshida, S. Kayashima, S. Yatsu, M. Kawai, and T. Kato, *J. Appl. Phys.*, 108, 103510 (2010).
- 2) Y. Yoshida, N. Sakaguchi, S. Watanabe, and T. Kato, *Appl. Phys. Express* 4, 055202 (2011).
- 3) Y. Yoshida, S. Watanabe, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa, and T. Kato, *Nanotechnology* 22, 375607 (2011).
- 4) Y. Yoshida, K. Ohnishi, Y. Matsuo, and S. Watanabe, "Design of a patterned nanostructure array using a nanosecond pulsed laser", *AIP Advances*, 8(4), 045122 (2018).