

# 表面を原子層レベルで形状制御するための 超精密フェムト秒レーザー加工プロセスの開発

東京大学 理学系研究科化学専攻

助教 本山 央人

(2020年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2020238-C2)

キーワード：レーザー加工, 極端紫外光, 高次高調波

## 1. 研究の目的と背景

人類の科学技術の発展は、構造物の加工技術をマイクロ・ナノレベルまで微細化することにより、支えられてきた。半導体回路の線幅微細化による電力効率の向上や、ナノ精度の表面加工技術による超精密光学素子の開発およびそれを利用した先端光学計測機器開発など、微細加工技術が科学技術の発展に貢献した例は枚挙に暇がない。

これまで、横分解の微細化・加工深さ分解能の微細化、それぞれの戦略に沿った様々な加工技術が開発されてきた。収束イオンビーム加工や微細放電加工技術、砥粒研磨加工など、様々な物理現象に基づいた加工法が開発され、その多くは実用化されている[1-3]。その中でも、近年、フェムト秒レーザー加工技術の発展が著しい。

フェムト秒レーザー加工では、光のパルス幅が物質内での熱拡散のタイムスケールよりも短い。そのため、照射領域周辺に照射エネルギーが拡散する前に、効率的に物質の温度を上昇させ、加工が進行する。また、熱拡散領域が少ないということは、すなわち、熱ダレなどによる影響の少ない加工が可能であることを意味する[4]。したがって、フェムト秒レーザー加工は、マイクロメートルからミリメートルオーダーの微細形状を、精密かつ高速に加工する技術として発展してきた。

フェムト秒レーザー加工には、Ti:SapphireあるいはYb系の増幅媒質を用いたレーザー光源が用いられるのが一般的である。その波長帯域はおおよそ800 nm、1030 nmであり、近赤外領域にあたる。光の回折限界サイズDは、波長を $\lambda$ 、収束光の開口数をNAとしたとき、次の式で計算される。

$$D = 0.62 \times \lambda / NA$$

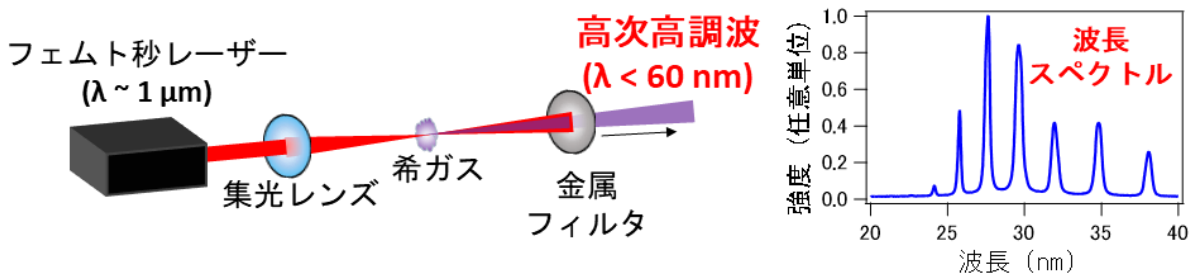


図 1. 加工に用いた極端紫外レーザー光発生システムの概略図。近赤外領域の高強度フェムト秒レーザーを希ガス原子雰囲気中に集光照射して、極端紫外領域の高次高調波を発生させる。本実験では、波長30 nm前後の高次高調波を加工試験に利用した。

そのため、近赤外領域の光を持ちいた場合のフェムト秒レーザー加工における一般的な加工分解能は数マイクロメートルレベルとなる。この回折限界よりも微細な加工を施すために、様々な光学系が提案されている。

一方で、極端紫外領域のフェムト秒レーザーを利用したレーザー加工が報告され始めている[5-7]。その波長帯域は10~30 nm程度であるため、先の回折限界の式に従えば、近赤外領域の光よりも微細なレーザー加工が原理的に可能となる。また、この帯域の光は多くの物質に対する光侵入深さが短いため、照射した熱エネルギーが表層のみで吸収される。そのため、表面を原子層レベルで除去する加工プロセスになり得る可能性がある。

本研究では、極端紫外領域の高次高調波を光源として、高精度フェムト秒レーザー加工プロセスの開発を実施した。高精度な極端紫外レーザー用集光ミラーを用いて、サブミクロンサイズの集光ビームを加工に利用した。本稿では、加工システム、およびいくつかの材料に対する加工結果について述べる。

## 2. 実験方法

本研究では、高次高調波発生を利用して極端紫外領域のフェムト秒レーザーパルスを生じた(図1)。チタンサファイアレーザー装置から発振した、中心波長800 nm、パルスエネルギー $\sim 4 \text{ mJ/pulse}$ 、パルス幅 $\sim 40 \text{ fs}$ のレーザー光を真空容器内のsemi-infinite gas cell内に集光する。このセルは、片側に直径500  $\mu\text{m}$ 程度のピンホールが開けられており、コンダクタンスが低下するピンホール付近でガス濃度が高くなる構造となっている。近赤外レーザーパルスをピンホール付近に集光することで、効率的に高次

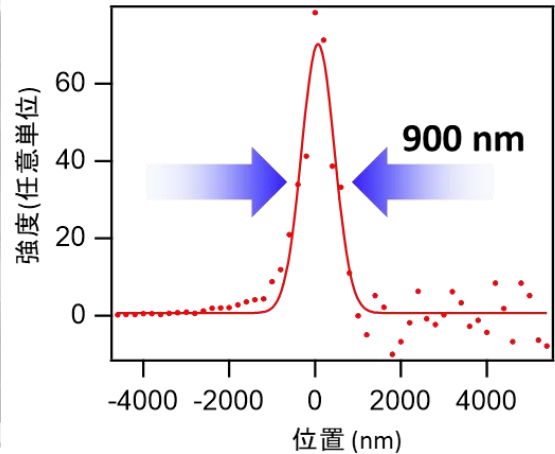
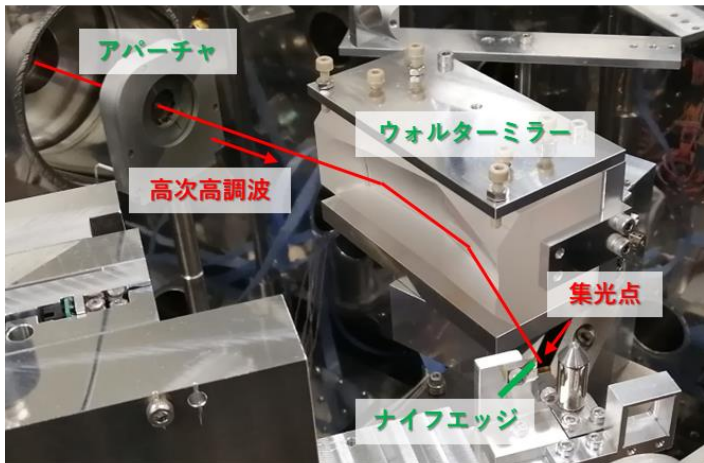


図 2. 集光装置内部の写真と典型的な集光ビームの強度プロファイル。アパーチャを通過した高次高調波はウォルターミラーで反射した後、加工試料に照射される。試料ステージには、集光サイズ計測用のナイフエッジも取り付けられている。サブミクロンレベルの集光ビームを形成することができる。

高調波を発生させることができる。本研究では、高次高調波発生媒質として Ar を用いた。Semi-infinite gas cell 内の Ar 圧力はガス圧力調整器を用いて一定に制御される。ピンホールに対する近赤外レーザー光の相対集光位置は、高次高調波の出力が最大となるように調整する。

発生した高次高調波の光軸上には Al 薄膜フィルタが設置されている。極端紫外領域の光を透過し、高次高調波に変換されずに同軸上を伝搬する近赤外レーザー光を除去する、バンドパスフィルターとして機能する。ビームラインの途中には、光路を切り替えるための平面ミラーを挿入することができる構造となっており、平面ミラーを挿入した際の光路の最下流端には極端紫外領域用の分光器が設置されている。図 1 のように、波長 30 nm 前後の高次高調波が発生する。

平面ミラー退避時の光路の最下流に、加工実験用の真空容器が設置されている。集光ミラーと加工試料駆動ステージが設置されている (図 2)。極端紫外レーザーの集光には、表面の形状精度を PV 10 nm レベルにまで高精度加工

した合成石英製の Wolter ミラーを用いた。直径約 6 mm までの極端紫外レーザーを受講可能であり、また、30 mm 程度の長いワークディスタンスを確保したまま、サブミクロン集光が可能な光学設計となっている。図 2 に、ナイフエッジスキャン法で計測された、集光点での典型的なビーム強度プロファイルを掲載する。このように、サブミクロンサイズの集光ビームを形成することができる。

照射試料は光軸方向、および面内方向において直交する 2 方向に移動させることができる。照射毎に試料を移動し、常にフレッシュな面に加工を施した。

### 3. 実験結果

#### 3.1 金属材料への加工例

金属材料試料への加工例として、ニッケル薄膜上に極端紫外レーザーを集光照射した際の加工特性を示す。ニッケル薄膜は、マグネトロンスパッタリング成膜法によりシリコンウエハ基盤上に 115 nm 程度堆積させた。図 3 に、ニッケル薄膜上の同一箇所へ 100 ショットの極端紫外集光ビ

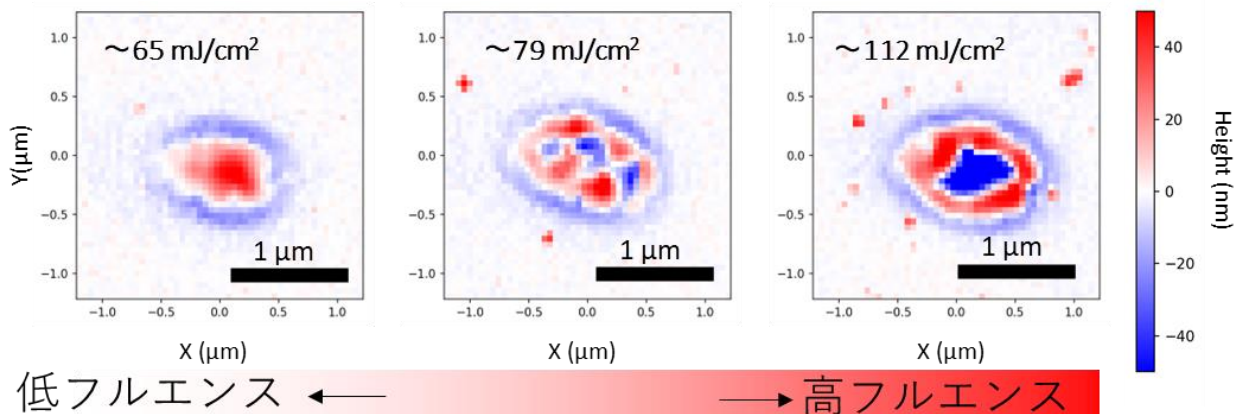


図 3. シリコンウエハ上に堆積した Ni 薄膜上に集光ビームを照射し、照射箇所表面形状を原子間力顕微鏡で計測した結果。高フルエンス領域では穴あけ加工が進行する一方で、低フルエンス領域では周りを円形溝に囲まれた突起形状が形成された。

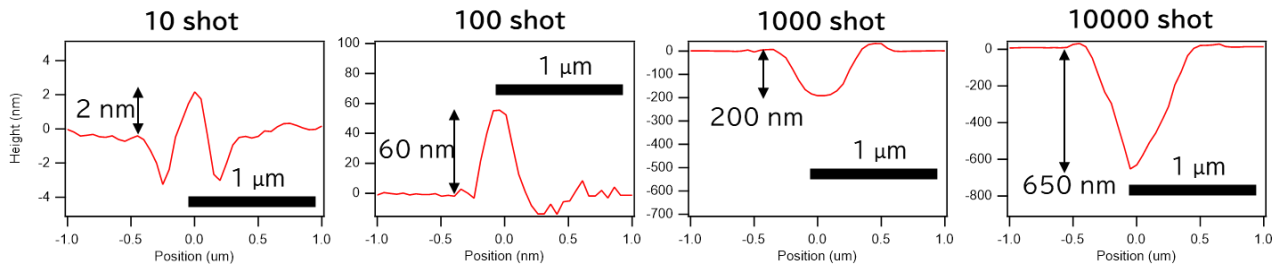


図 4. GaAs ウエハに対して 10, 100, 1000, 10000 ショットの集光極端紫外フェムト秒レーザーを照射して形成した加工痕の断面プロファイル。10, 100 ショットの場合は突起形状が形成され、1000, 10000 ショットの場合は穴形状が形成された。

ームを照射し、照射箇所を原子間力顕微鏡で計測した結果を示す。試料表面を焦点からわずかにずらして照射することにより、複数の照射フルエンスで加工痕を形成した。フルエンスが  $112 \text{ mJ/cm}^2$  の場合は、一般的なレーザー加工と同様、穴あけ加工が進行した。一方で、フルエンスが  $65 \text{ mJ/cm}^2$  程度の場合は、周囲を円形の溝に囲まれた突起形状が形成された。これらの値の中間程度に相当する  $79 \text{ mJ/cm}^2$  の場合は、両加工痕の間のような非対称な加工痕が形成された。エネルギー加工において、低エネルギー照射時に材料の熱膨張などの影響で突起形状が形成されることは一般的であるが、本実験で得られた加工痕は周囲を円形溝に囲まれているという特徴が見られた[8]。

### 3.2 半導体材料への加工例

半導体材料への加工例として、GaAs および SiC への加工例を示す。図 4 は、GaAs ウエハに集光極端紫外ビームを照射して形成した加工痕の断面プロファイルを示している。10, 100 ショットの場合には突起形状が形成され、1000, 10000 ショットの場合は穴加工が進行した。ショット数の増加に伴い、突起形状形成から穴加工形成へと加工特性が極端に変化していることから、徐々に熱が蓄積され、材料温度が融点を超えた時点から穴加工が進行したものと考えられる。一度融点を超えた照射箇所には、後続の照射パルスから熱エネルギーを受け取り続けるため、穴加工が進行し続けたと推測される。

SiC に照射した場合の加工痕形状を図 5 に示す。GaAs

の場合と比較すると、加工量のはるかに少ない結果となった。図 5 左図に示すように、100 ショットの場合は底部が平坦な深さ約  $1 \text{ nm}$  の加工痕が、1000 ショットの場合は、底部が平坦な深さ約  $1 \text{ nm}$  の加工痕の中心に、深さ約  $5 \text{ nm}$  の穴形状が形成された。同一箇所への照射数を 100 ショット程度に制限すれば、任意の箇所の表層  $1 \text{ nm}$  を除去可能であることが示唆された。

## 4. まとめと今後の展望

本研究では、現在広く普及している近赤外レーザーを用いたフェムト秒レーザー加工に対して、極端紫外領域のフェムト秒レーザー加工プロセスを確立することを目的として実施した。近赤外レーザーパルスの高次高調波として低出力の極端紫外領域のフェムト秒レーザーパルスを生成し、高精度に加工された Wolter ミラーでサブミクロン集光することで照射フルエンスを加工閾値以上まで増強した。金属材料や半導体材料への照射試験を実施した結果、 $1 \mu\text{m}$  からサブミクロンレベルの横分解能での加工が可能であることが示された。加工特性も材料によって大きく異なり、例えばニッケルの場合はフルエンスに応じて円形溝に囲まれた凸形状から穴形状へと加工特性が変化することが示唆された。GaAs の場合はショット数に応じて凸形状から穴形状へと加工特性が変化した。SiC の場合は、最初の 100 ショット程度までの照射で深さ約  $1 \text{ nm}$  の低初が平坦な穴形状が形成され、その後深さ数  $\text{nm}$  の穴形状が

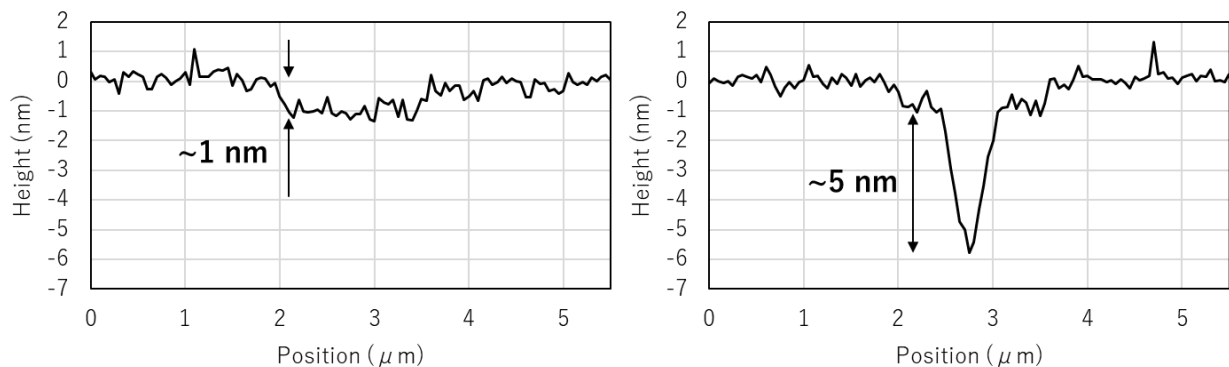


図 5. SiC ウエハ表面に集光極端紫外ビームを照射して形成した加工痕形状の断面プロファイル。(左図)100 ショット照射した場合と、(右図)1000 ショット照射した場合の断面プロファイル。

平坦部の中心に形成された。

本研究を通して、高次高調波光源と高精度集光ミラーによるサブミクロン集光技術を組み合わせることにより、一部の金属材料や半導体材料に対して極端紫外フェムト秒レーザー加工が可能であることを実証した。極端紫外光の光子エネルギーは各種材料の仕事関数を上回るため、通常の近赤外レーザーを用いたフェムト秒レーザー加工とは異なる加工プロセスが進行することが推察される。

本研究を通して開発したレーザー加工プロセスは、集光素子の形状を工夫し集光ビームサイズを微小化することで、加工分解能をさらに向上させることが可能である。本研究で得られた知見を活かして光源システムから集光システムまでを最適化することにより、100 nm に迫る加工分解能も実現可能であると考えられる。また、SiC を対象とした加工試験結果から、表層のみの選択的な加工プロセスの可能性も示唆される。超高精度な新規レーザー加工プロセスになることが期待される。

### 謝 辞

本研究を遂行するにあたり、公益財団法人天田財団から多大なご支援をいただきました。ここに感謝申し上げます。

### 参考文献

- 1) S. Reyntjens, R. Puers, J. Micromech. Microeng. 11, 287–300 (2001).
- 2) D. T. Pham, S. S. Dimov, S. Bigot, A. Ivanov, K. Popov, J. Mater. Process. Technol. 149, 50–57 (2004).
- 3) Y. Mori, K. Yamauchi, K. Endo, Elastic emission machining. *Precis. Eng.* 9, 123–128 (1987).
- 4) B. N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. Alvensleben, A. Tünnermann, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* 63, 109–115 (1996).
- 5) T. Shibuya, T. Takahashi, K. Sakaue, T.-H. Dinh, H. Hara, T. Higashiguchi, M. Ishino, Y. Koshiba, M. Nishikino, H. Ogawa, M. Tanaka, M. Washio, Y. Kobayashi, R. Kuroda, *Appl. Phys. Lett.* 113, 171902 (2018).
- 6) T.-H. Dinh, N. Medvedev, M. Ishino, T. Kitamura, N. Hasegawa, T. Otobe, T. Higashiguchi, K. Sakaue, M. Washio, T. Hatano, A. Kon, Y. Kubota, Y. Inubushi, S. Owada, T. Shibuya, B. Ziaja, M. Nishikino, *Communications Physics.* 2, 1–9 (2019).
- 7) K. Sakaue, H. Motoyama, R. Hayashi, A. Iwasaki, H. Mimura, K. Yamanouchi, T. Shibuya, M. Ishino, T.-H. Dinh, H. Ogawa, T. Higashiguchi, M. Nishikino, R. Kuroda, *Opt. Lett.* 45, 2926–2929 (2020).
- 8) H. Motoyama, A. Iwasaki, H. Mimura, K. Yamanouchi, Submicron structures created on Ni thin film by submicron focusing of femtosecond EUV light pulses. *Appl. Phys. Express.* 16, 016503 (2023).