

2020 年度 博士論文



# レーザー干渉リソグラフィーによる 次世代光学機能構造加工法の開発

Development of fabrication method for next-generation optically  
functional structures by laser interference lithography

指導教員 高橋 哲 教授

東京大学大学院 工学系研究科 精密工学専攻

学生証番号 03-187039

増井 周造

---

# 目次

第1章 序論.....	1
1.1 次世代光学機能構造.....	2
1.2 微細加工技術の整理.....	7
1.3 研究目的.....	12
1.4 本論文の構成.....	14
第2章 干渉リソグラフィーの基礎.....	17
2.1 緒言.....	18
2.2 レーザー干渉の理論.....	18
2.2.1 二光束干渉.....	18
2.2.2 多光束干渉法と多重露光干渉法.....	20
2.3 干渉リソグラフィー.....	22
2.3.1 加工プロセス.....	22
2.3.2 感光性レジスト.....	23
2.3.3 エッチング.....	25
2.3.4 干渉露光装置.....	26
2.4 干渉リソグラフィーの微細化.....	28
2.5 結言.....	30
第3章 サブ波長格子偏光フィルタの理論モデル構築と加工検討.....	31
3.1 緒言.....	32
3.2 サブ波長格子偏光ビームスプリッタ(SWGPBS).....	32
3.3 SWGPBS の理論モデル構築.....	33
3.3.1 SWGPBS の薄膜多重干渉理論モデル.....	33
3.3.2 理論モデルに基づく SWGPBS 設計方法の提案.....	38
3.4 RCWA 解析による理論モデルの妥当性検証.....	39

3.5 干渉リソグラフィーによる加工検討 .....	42
3.6 結言 .....	45
第4章 二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルの構築 .....	47
4.1 緒言 .....	48
4.2 二重周期回折格子の現状と課題 .....	48
4.3 二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルの構築 .....	50
4.3.1 単一周周期回折格子のスカラー回折理論 .....	50
4.3.2 二重周期回折格子のスカラー回折理論 .....	55
4.4 回折特性計測による理論モデルの検証 .....	59
4.4.1 二重周期回折格子造形装置と回折特性計測装置の開発 .....	59
4.4.2 うなりを伴う二重周期回折格子の造形, 回折特性計測結果 .....	61
4.5 結言 .....	65
第5章 多重露光干渉リソグラフィーの加工プロセス計測 .....	66
5.1 緒言 .....	67
5.2 多重露光干渉リソグラフィーの加工プロセス制御方法提案 .....	67
5.3 露光中/現像後のレジスト形状の二重周期回折格子モデル .....	68
5.4 単一周周期回折格子のインプロセス計測基礎実験 .....	71
5.4.1 インプロセス回折光計測装置の開発 .....	71
5.4.2 インプロセス回折光計測実験の基礎実験 .....	72
5.5 二重周期回折格子のインプロセス計測方法の実証 .....	79
5.6 結言 .....	82
第6章 多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーの開発 .....	85
6.1 緒言 .....	86
6.2 多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーの提案 .....	86
6.3 エバネッセント光干渉の理論解析 .....	87
6.4 多光束エバネッセント光干渉露光装置の開発 .....	90
6.5 二光束エバネッセント光干渉による基礎造形実験 .....	92
6.5.1 サブ波長格子構造の造形実験 .....	92
6.5.2 造形サンプルの複屈折性評価 .....	93
6.6 四光束エバネッセント光干渉によるナノ・マイクロ二重周期構造の造形実験 .....	96
6.7 結言 .....	100
第7章 結論と展望 .....	103
7.1 結論 .....	104
7.2 展望 .....	106
付録 .....	109
付録 A. 回転ロイドミラー露光装置 .....	110

---

付録 B.	回転ロイドミラー露光装置による基礎造形実験 .....	117
付録 C.	回折特性計測装置の開発 .....	120
参考文献	.....	125
業績	.....	133
謝辞	.....	135

# 第1章 序論

---

1.1 次世代光学機能構造 .....	2
1.2 微細加工技術の整理 .....	7
1.3 研究目的 .....	12
1.4 本論文の構成 .....	14

---

## 1.1 次世代光学機能構造

光学における最先端の研究課題は、その時代における微細加工技術の発展とともに、幾何光学、波動光学、電磁光学と進歩してきた。1950年頃は、John Hopkins 大学で開発されたルーリングエンジンによる高精度な回折格子の加工[1]、1947年の G. Denes によるホログラフィーの発明[2]など、波動光学を最先端とした研究がなされていた。そして、1960年頃から現在にかけては、波長よりも小さな共振器を用いた人工的な光学物性の実現を目指すメタマテリアル[3]-[7]・メタサーフェス[8]-[11]、光の伝搬を制御するフォトニック結晶[12]-[14]、サブ波長格子構造の共振、構造複屈折性[15]-[19]、金属の自由電子の集団振動に利用したプラズモニクス[20]-[23]、モスアイ形状による反射防止機能[24]-[27]など、波動光学よりもより厳密な電磁光学に基づく微細な構造の研究・応用が盛んに報告されている。さらに、既存の周期構造を多重周期化することで多機能、多波長化を目指すアプローチも多く見られる。代表的なものとして、複数の構造周波数を含む超格子フォトニック結晶[14]、多重周期回折格子[28]-[34]が挙げられる。このように、近年の研究のトレンドとして、光の波長よりも微細な構造による人工的な物性の発現と構造の多重周期化・階層化を組み合わせた、微細かつ多重周期性を有する構造が注目されている。そして、今後もより高度で自由な光の制御を目指して、次世代光学素子の微細化・多重周期化は加速していくと考えられる。そこで、上記の研究トピックでの具体例に挙げて、その重要性とそれらの素子に求められる加工技術への要求を整理する。

### ① メタサーフェス

1960年頃から、自然界に存在しない電磁気学的特性(負の屈折率など[3])を示す人工的な物質「メタマテリアル」に関する理論が研究され始め、2000年代にはスーパーレンズ[4]、クローキング[5]などの魅力的な応用に関する研究が盛んに行われた。しかし、このようなメタマテリアルを実際のデバイスとして作成するには、波長のよりも小さな共振器[6]を三次元的に配置する必要がある。そのため、マイクロ波領域においては、負の屈折率が実証されているものの[7]、可視光や赤外線領域では加工技術の微細性や金属材料による光量のロスなどがボトルネックとなり殆ど実用化はなされていない。そこで、2次元構造によって、人工的な光学特性を実現しようとする「メタサーフェス」という概念が2015年頃から急速に注目を集めており、世界的にも大きな研究課題となっている。メタサーフェスの具体例を図 1-1 に示す。図 1-1(a)では長方形、図 1-1(b)では円柱状の構成単位がメタアトムと呼ばれ、メタアトムの形状によって、それぞれが異なった振幅、位相、偏光変調を波面に及ぼす。そのため、任意の光学特性をもったメタアトムをマイクロオーダで配列することで、面内でのマクロな位相、振幅、偏光の変調を可能としている。具体的には、ブレード回折格子のような構造[8][9]や位相変調が可能なメタアトムをフレネルレンズ状に配置したメタレンズ[10]、計算機ホログラム(Computer Generated Holography, CGH)を応用したメタサーフェスホログラム[11]なども報告されている。これらの例から、メタサーフェスの加工に求められる要件としては、メタアトムを動作波長の  $1/5 \sim 1/8$  程度の周期で配列させる微細性や、メ

タアトムをマイクロオーダの周期で変調する多重周期性といった2点が重要である。また、小型光学素子の加工を想定すると、数mm~数cm角の一括加工が可能な加工技術の適用必要となる。

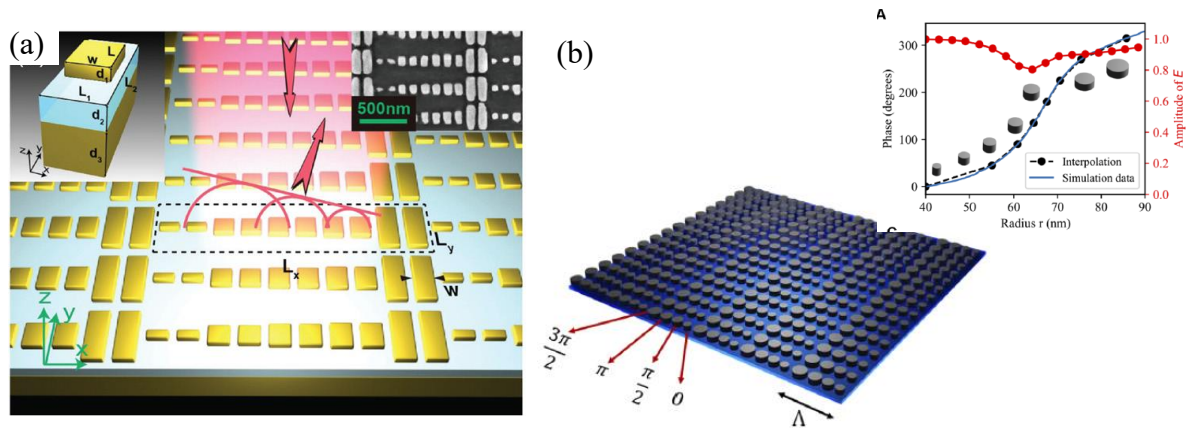


図 1-1 異常反射メタサーフェス (a)金属構造([8]より転載) (b)誘電体構造([9]より転載)

((a) and (b) reprinted with permission from [8] and [9]. Copyright (2012) American Chemical Society and Copyright (2020) Optical Society of America.)

## ② 多重周期フォトニック結晶

光学特性の異なる媒質が、光の波長と同程度の周期で1~3次元的に配列した構造は、フォトニック結晶と呼ばれ、光の伝搬制御が可能なることから応用が盛んに研究されている。1次元フォトニック結晶は、多層膜としてすでに応用が盛んになされているが、2, 3次元フォトニック結晶では、光の伝搬を2, 3次元的に制限することができ、微細な共振器の実現、光ファイバと組み合わせ分散特性を設計可能なことが知られている。また、伝搬を制限する周期的なフォトニック結晶の内部に欠陥を導入することで、導

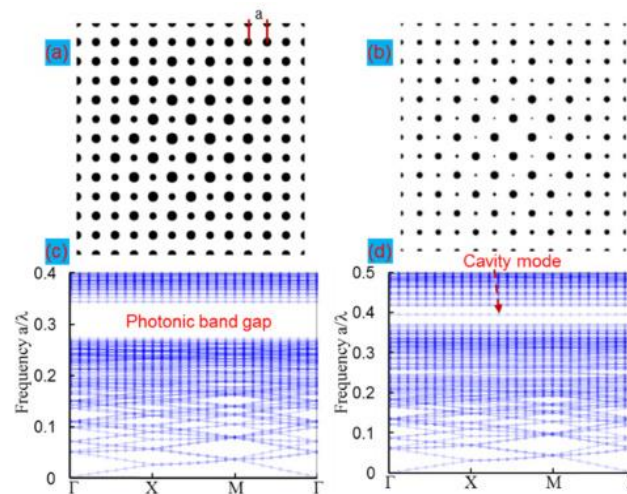


図 1-2 超格子フォトニック結晶とバンドダイアグラム([14]より引用. Reprinted with permission from [14]. Copyright (2017) Optical Society of America.)

波路の形成[12], 欠陥での発光[13]といった機能が報告されている. いずれも, 波長の1/2程度の周期構造が. さらに, 従来のフォトニック結晶は, 単一周期構造が一般的だったが, 近年では多重周期のフォトニック結晶が着目され始めている. 図 1-2 示したような2つの周期を併せ持つ2次元超格子フォトニック結晶では, 2次元の共振器アレイの実現が期待できることが報告されている[14].

### ③ サブ波長格子構造

可視光(波長 400-700 nm)や近赤外(波長 700-1400 nm)程度の光に対して, 同程度かそれ以下の周期的な構造は, サブ波長格子と呼ばれ回折に由来する共振現象[15]や構造複屈折性[16]などを利用した光学素子の応用が盛んに行われている. 特にサブ波長格子によって入射光と導波モードが結合することによって生じる導波モード共振(Guided-Mode Resonance, GMR)は, 共振波長の光を強く反射するため, 波長選択フィルタ[17], 偏光分離素子[18]などに広く応用されている. 他にも, 格子構造の異常分散によって波長分散をキャンセルしたアクロマティック波長板[16][19]などは, 従来の結晶を使った波長板と比べ強い複屈折性を示し, 素子の小型化や生産性の向上が示されている. 特に, 近年のメタサーフェスへの注目を受けて, コンパクトかつ同じ加工プロセスで製造可能なサブ波長光子構造の加工方法の確立は, 多機能デバイスの実現に非常に重要である.

他にも, サブ波長格子の回折によって励起される表面プラズモン共鳴(Surface Plasmon Resonance, SPR)を利用したバイオセンサ[20], 屈折率センサ[21], 赤外吸収分光[22]なども注目されている. Ag を材料とした二重周期サブ波長格子では, 2波長での表面プラズモン共鳴による吸収ピークが確認されている[23]. これまで単一波長での計測が行われていたバイオセンサ, 屈折率センサに対して, 多波長での測定が可能になることで, 複数の物質の一括検出, 分散特性計測, 高感度化が期待される.

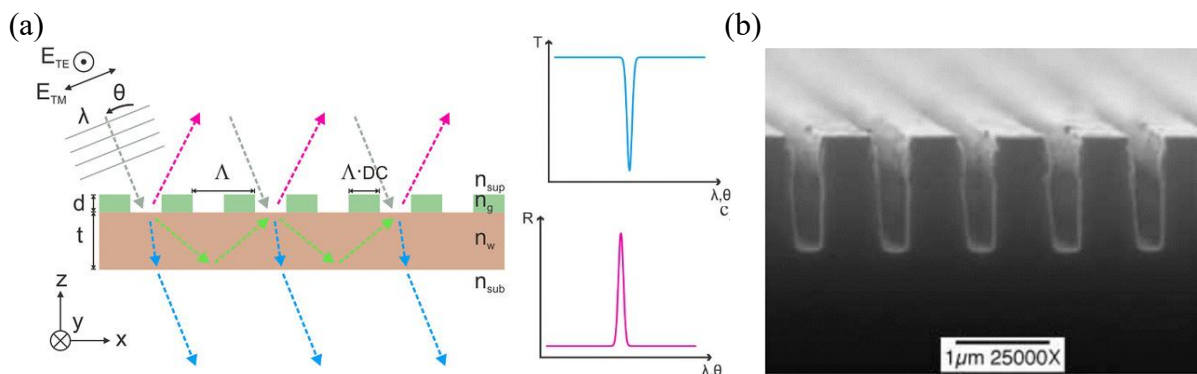


図 1-3 (a)GMR フィルタ模式図([17]より転載) (b)アクロマティック波長板([19]より転載)

((a) and (b) reprinted with permission from [17] and [19]. Copyright (2018) John Wiley and Sons and Copyright (1999) Optical Society of America)



## ④ モスアイ形状

1982年に、S. J. Wilsonらによって、蛾の複眼の表面(図 1-4(a))が数百 nm オーダの突起構造で満たされており、反射防止性を示すことが報告されている[24]. モスアイ形状では、微細なドットパターンにより界面での有効屈折率を連続的に変化させることで反射率が低下することが分かった. 従来の薄膜多重干渉を用いた反射防止膜と比べ、入射角依存性が低く、動作波長帯域が広いといったメリットから、産業的な応用も進んでおり、反射率が 0.5%以下まで抑えるようなフィルムも報告されている. さらに、数十から数百  $\mu\text{m}$  オーダの半球状の複眼構造により、撥水性を併せ持つ反射防止コートや、反射防止マイクロレンズアレイといった応用も研究されている[25]. 反対に、LED の発光部から空気への光の取り出し効率を上げることも可能であり、図 1-4(b)のようなモスアイ形状が用いることで、取り出し角の大幅な向上、4 倍以上の効率向上が報告されている[26]. 他にも、回折格子のマイクロオーダの周期構造に、モスアイ形状を組み合わせた高効率な透過型回折格子なども報告されている[27]. モスアイ形状を含むナノ構造は、界面における光学的エネルギーロスを低減する効果がありその波及範囲は、今後も拡大することが予想される.

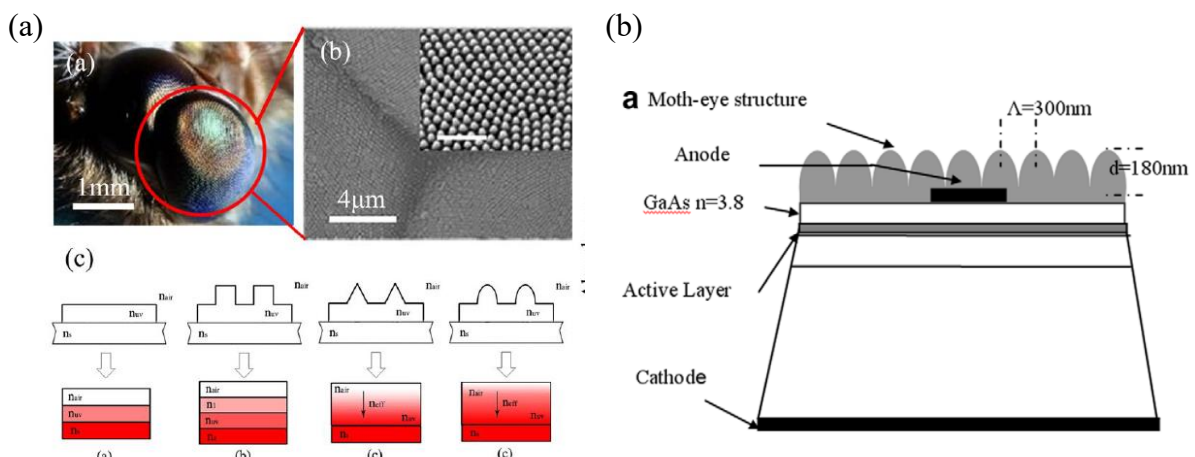


図 1-4 (a)モスアイ形状拡大像と模式図([24]より転載) (b)LED 効率向上([26]より転載)

## ⑤ 二重周期回折格子

回折格子は、特に分光によって何光年も離れた惑星の元素分析から非常に小さな分子間の化学結合状態の同定まで可能であり、現代科学・産業の幅広い分野において欠かすことの出来ない光学素子となっている. さらに、その動作原理自体は、波長数 nm 程度の X 線から、波長数百  $\mu\text{m}$  のテラヘルツ波領域まで有効であり、今後も多くの分野での応用が期待されている[28]. 近年では、複雑化・多機能化を目指して、複数の周期性を併せ持つ、二重周期回折格子が注目を集めている. 特に、複数の周期性を有するという最も基本的な特性を備えている二重周期回折格子は、その理論や応用に関する研究が報告されている.

図 1-5 に示した 2 つの僅かに異なる周期の重ね合わせにより，大きな周期のうなりを伴う二重周期回折格子として，レーザーの外部共振器に組み込むことで，2 波長発振レーザーへ応用や[29]，偏光方向の変調が可能な二重周期液晶回折素子なども報告されている[31]。素子である。2 つ目は，2 つの周期が定数倍の関係を持つような回折格子である。次に，整数倍の周期の重ね合わせによって，特定の次数の回折光の回折効率を向上，低下させる設計例が報告されており，単一周周期回折格子に比べ柔軟な回折効率の設計が可能である[33][34]。しかし，まだ研究例自体が少なく，一般的な回折理論モデルが構築されていないといった問題も存在している。

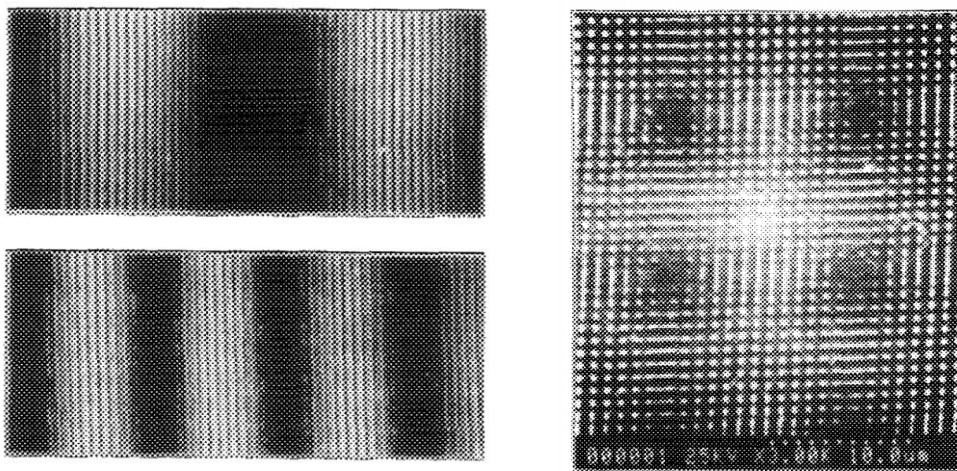


図 1-5 うなりを伴う二重周期格子構造([30]より転載)

(Reprinted with permission from [30]. Copyright (1993) AIP publishing)

## ⑥ まとめ

近年注目されている次世代光学素子として，メタサーフェスや超格子フォトニック結晶，二重周期回折格子等を挙げて，その機能や加工要求を述べた。これらの素子の加工寸法を表 1-1 に示し，その他の要求事項も含めて以下のようにまとめる事ができる。さらに，これらの要求を満たす加工技術の実現だけでなく，加工対象であるこれらの素子の理論的なモデルの構築，問題点の解決が必要である。

### 【次世代光学素子の加工技術への要求】

- ・加工微細性：可視光から近赤外程度の波長に対して 1/2~1/5 程度となる 100~300 nm 程度の最小加工ピッチを有する。
- ・多重周期化：単一周周期構造だけでなく，多重周期構造の造形が可能であり，精密な加工制御が可能である。
- ・大面積加工：数 cm 角での光学素子の加工に十分な大面積での一括加工が可能であり，スループットが高い。
- ・低コスト：大掛かりな装置が必要なく，加工コストが低い。

表 1-1 次世代光学素子の要求寸法のまとめ

	メタサーフェス	フォトニック結晶	サブ波長格子	回折格子	モスアイ形状
構造周期	100-350 nm $\lambda/5$ - $\lambda/2$	250-700 nm $\lambda/2$ - $\lambda$	250-400 nm $\sim\lambda/2$	1-3 $\mu$ m $\lambda$ -2 $\lambda$	250-350 nm $<\lambda/2$
構造高さ	250-350 nm $\sim\lambda/2$	250-700 nm $\lambda/2$ - $\lambda$	120-700 nm $\lambda/4$ - $\lambda$	$<700$ nm $<\lambda$	$<700$ nm $<\lambda$

## 1.2 微細加工技術の整理

本節では、次世代光学素子の加工方法として、これまでに報告されている微細加工法を挙げ、それぞれの特徴を整理し、前節でまとめた次世代光学素子の加工方法の要求仕様を満たす加工法の検討を行う。そこで、表 1-2 のように加工技術自体を①造形法と②転写法に大別した後、加工法に対しては点操作型と面一括型の2つに分類した。②転写法においても、マスターモールドの作成には①造形法を用いるため、これ以降は①造形法に着目して加工特性を議論した。

表 1-2 微細加工法の分類

加工技術の分類	加工技術
①造形法	点操作型 電子線リソグラフィ、二光子重合リソグラフィ
	面一括型 干渉リソグラフィ、自己組織化加工法、フォトリソグラフィ
②転写法	ナノインプリント、電鋳、その他転写方法

### ① 電子線リソグラフィ

電子線リソグラフィは、図 1-6 に示したように電子を加速、集光した電子線を電子線描画用レジストに照射することで微細構造を造形する方法である。電子線は、加速電圧により、ド・ブROI波長が計算され、市販の電子線描画装置として、加速電圧 150 kV、波長約 3 pm とした電子線描画装置も販売されている。これは、紫外線( $\lambda = 200\sim 380$  nm)や近年実用化が始まっている極端紫外線( $\lambda = 13.5$  nm)と比べても十分短く、ELIONIX 社 ELS-F150 では、電子ビーム径 1.5 nm が実用化されており、シングルナノオーダの超微細加工も達成されている。そのため、メタサーフェスの加工方法として多くの研究で用いられている[8]-[11]。

加工分解能はビーム径に依存するため加工分解能は非常に高いが、集光した電子ビームを2次元的に操作しパターンを造形するため、スループットが低いことが問題点として挙げられる。さらに、数 cm 角以上の大面積加工時には、一括加工面積が数百  $\mu$ m 角程度であり、露光箇所のステッチングによって、回折特性が低下するなどの問題が指摘されている[37]。また、大掛かりな装置が必要となり、加工コストが高いといった問題もある。

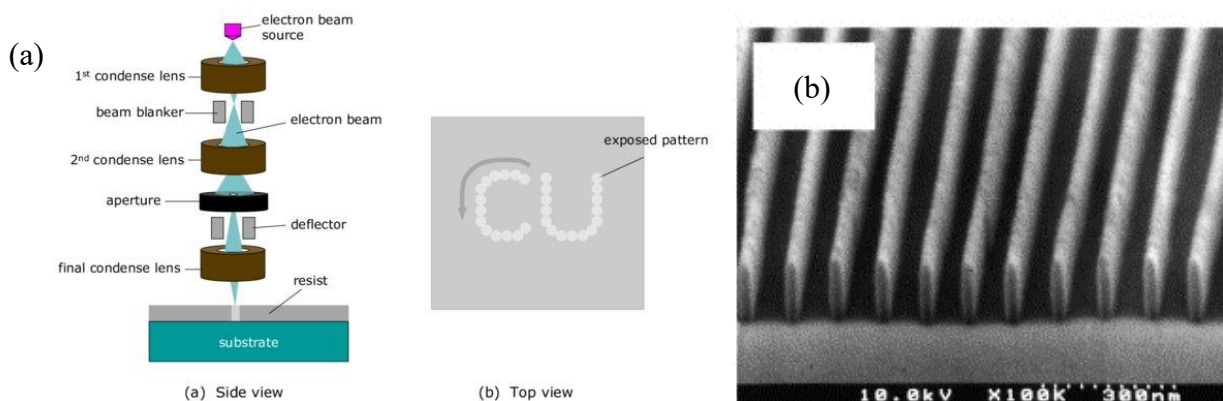


図 1-6 (a)電子線リソグラフィーの模式図([35]より転載) (b)電子線リソグラフィーによる  
100 nm ピッチ加工例([36]より転載)

(b) Reprinted with permission from [36]. Copyright (2021) Elsevier)

## ② 二光子重合リソグラフィー

1997 年に河田らによって提案された二光子重合リソグラフィー[40]は、時空間的に集中した強い電場によって引き起こされる非線形光学現象である二光子吸収[41]を用いた造形方法である。通常、光子の吸収による電子の遷移は一つの光子によって引き起こされ、多光子吸収の確率は無視できるほど小さい。しかし、フェムト秒オーダーのパルスを持つ超短パルスレーザーの開発により、時間的、空間的に光エネルギーを集中させ、集光スポットで二光子吸収による光重合反応を生じさせることが可能となった。二光子吸収過程が生じる確率は電場強度に対して非線形に上昇するため、図 1-7(a)のように二光子吸収造形法では集光スポットに対する重合反応領域を小さいため、通常のレーザー直接描画装置と比べ、加工分解能が向上している。現在では実用化が進んでおり、市販の装置で、加工分解能 200 nm という値も報告されている[42]。また、STED(Stimulated Emission Depletion)顕微鏡の原理を利用し、ドーナツ型ビームによって誘導放出を促し、二光子重合の生じる領域を微細化し、加工分解能 120 nm、線幅 55

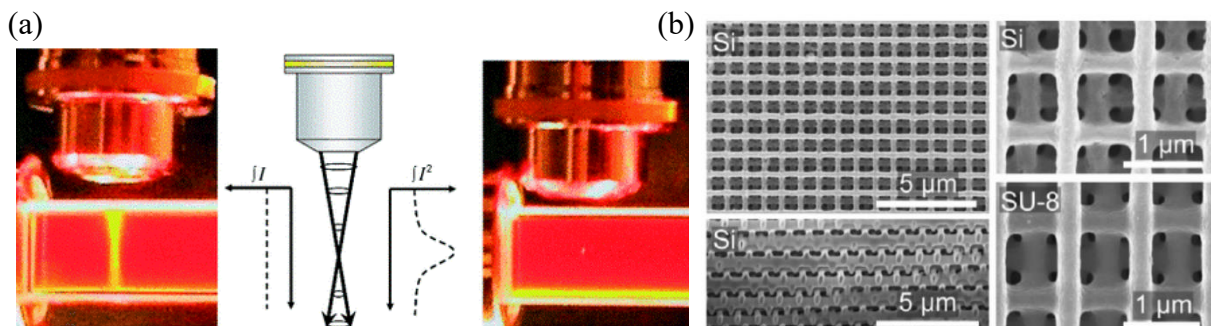


図 1-7 (a)一光子吸収と二光子吸収の比較([38]より転載) (b)二光子吸収造形法によるフォトニック結晶の加工([39]より転載)

Reprinted with permission from[38] and [39] Copyright (2007) and (2006) John Wiley and Sons)

nm といった加工例も報告されている[43]. しかし, 電子線リソグラフィーと同様に点操作型であることから加工のスループットが低く, 数 cm 角の大面積加工を行うことは困難である.

### ③ 自己組織化加工法

自己組織化加工法は, 粒子間の分子間力や基板, 液体との表面張力などの相互作用を利用し自律的に秩序だった構造を形成する加工法である. 具体的には, 粒子を分散させた溶媒に基板をつけ, 引き抜く方法やスピコートによって粒子を自己組織化させ配列させる方法が存在する[44]. 基板に対して周期的な構造を予め付与することで, 粒子が自己組織化領域を制限して, 多重周期構造なども造形可能である. また, 異なる粒径の粒子を配列することで, マルチスケールな周期構造を加工した例も報告されているなど, 多重周期性と微細性を兼ね備えた加工方法である[44][46]. また, 数 cm 角の基板の造形も容易であり, 大掛かりな装置が必要なく加工コストは低いが, 数 cm 角の加工において, 粒子配列の歪みや欠陥の無い均一な加工が困難といった課題も存在している.

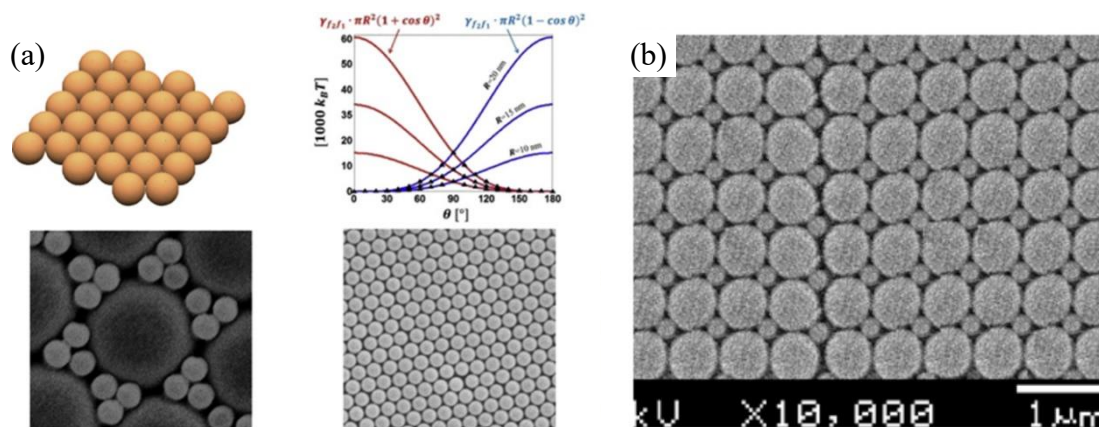


図 1-8 二重周期自己組織化加工例((a)は[44], (b)は[46]より転載)

Reprinted with permission from [44] and [39]. Copyright (2017) and (2011) John Wiley and Sons)

### ④ フォトリソグラフィー

フォトリソグラフィーは, 加工パターンを感光性のレジストに投影することでパターンを得る加工方法であり, 半導体のパターンニングなどに利用されている. 一般的な露光装置では, 電子線リソグラフィーなどで加工したフォトマスクを縮小投影することで微細な形状を得る. 加工微細性は露光装置の波長と開口数(Numerical Aperture, NA)で決まるが, 最先端の半導体露光装置では, 光源に波長 13 nm 程度の極端紫外光(Extreme Ultraviolet, EUV)を用いて, 線幅 10 nm 程度の極微細なパターンニングが報告されている[47]. しかし, フォトマスク作成のコストや, 露光装置自体のコストも莫大になってしまうという問題点も抱えているため, 大量生産が必要な半導体チップの生産以外での使用は現実的でない. そこで, 図 1-9 右図のように加工コストのかかるフォ

トマスクの代わりに DMD(Dynamic Mirror Device)や空間光変調素子(Spatial Light Modulator, SLM)で得られるパターンを縮小投影するマスクレスリソグラフィーも研究, 産業的に広く用いられている. 商用の露光装置も多く販売されているが, 加工分解能は数  $\mu\text{m}$  程度にとどまる. また, マスクとなる DMD や SLM の素子サイズと縮小投影倍率の関係から, 最小加工分解能と露光面積はトレードオフの関係にあり, サブ波長程度の分解能と数 cm 角の大面積加工を実現するためには, 露光エリアのステッピングなどが必要となる. ただ, マスクのパターンを自在に制御できるため, 一般的にはマイクロ流路や MEMS, 回折格子などの加工に用いられている.

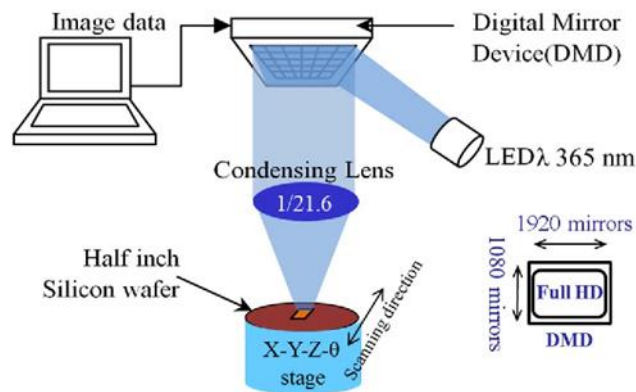


図 1-9 フォトリソグラフィーの模式図([49]より転載)

### ⑤ 干渉リソグラフィー

干渉リソグラフィーは, 図 1-10 に示したようにコヒーレントな波面を干渉させて生じる干渉パターンを感光性レジストに露光することで, 周期的な干渉縞構造を得る加工方法である. フォトリソグラフィーと異なり, フォトマスクなどがなく, 空气中露光での干渉縞ピッチは最小で  $\lambda/2$  となり, 数百 nm ピッチの干渉縞の造形も容易である. 回折格子のマスターモールド作成などで産業的な応用がなされている. さらに, 図 1-11(a)に示した 2 つ以上の波面で干渉を生じさせる多光束干渉法[52], 図 1-11(b)に示した 2 回以上干渉パターンを重ね合わせる多重露光干渉法[30]などを用いることで, 単純な 1 次元格子構造だけでなく, 複雑な多重周期二次元構造を得ることも可能である. さらに近年では, 位相変調素子を用いることで, 8 光束干渉や面内で

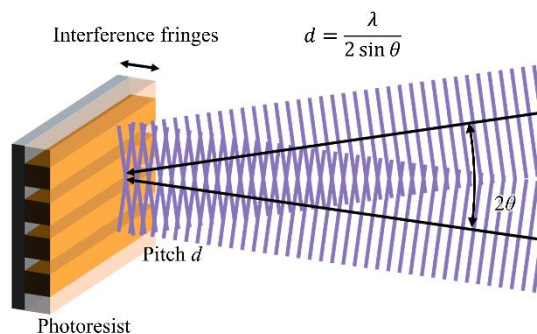


図 1-10 干渉リソグラフィーの模式図

単位格子構造が変化するような複雑な形状の造形例も報告されており、干渉リソグラフィの加工パターンの自由度が飛躍的に上がったと言える。さらに、面一括型の加工であるため、露光中のレジスト内部に生じる周期的な屈折率変化を間接的に測定することで露光状況をインプロセスでモニタリング可能である。そのため、インプロセス計測の結果を加工パラメータにフィードバックすることで、より精密な加工制御が可能となる。

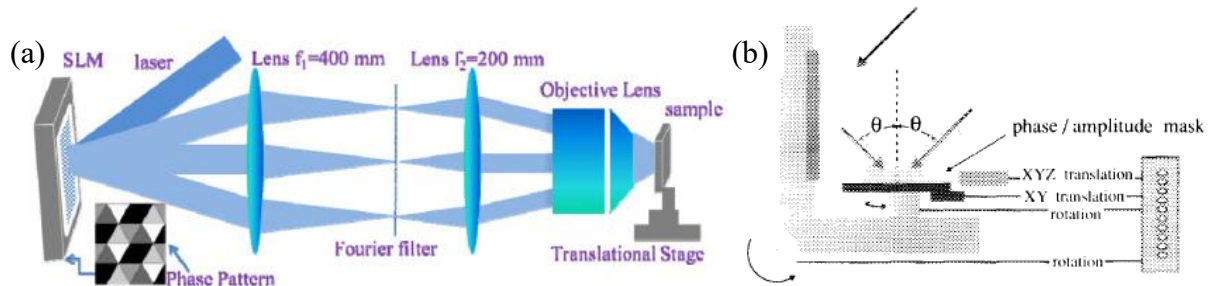


図 1-11 (a)SLM を用いた多光束干渉リソグラフィ ([51]より転載) (b)多重露光干渉リソグラフィの造形例 ([30]より転載)

((a) reprinted with permission from [51]. Copyright (2013) Optical Society of America. (b) reprinted with permission from [30]. Copyright (2021) AIP publishing.)

## ⑥ 微細加工技術まとめ

これまでに挙げた微細加工技術について、前節で挙げた次世代光学素子を加工する際に求められる要求加工仕様が満たされているかを表 1-3 にまとめた。電子線、二光子重合リソグラフィについては、加工分解は要件を十分満たしているものの、集光点を二、三次元的に操作させることで構造を得るため大面積の一括加工が困難である。さらに、露光の箇所のスティーチングによる光学機能の低下なども数 cm 角以上の大面積加工においては問題となる。次に、自己組織化加工法については、分解能は用いる粒子径に依存するため、小さいものでは 100 nm 以下の粒子の配列例も報告されており [45]、大面積への加工も容易であるが、配列内部の欠陥、歪みが避けられず、大面積で精密な加工は困難である。最後に干渉リソグラフィにおいては、干渉させる波面の大きさによって、最大数  $m$  角の露光実績があり、原理的な加工面積への制約が少ないことや、多光束干渉、多重露光干渉によって複数の周期性を併せ持つ構造を大面積で加工が容易である。さらに、微細性を向上させることで、次世代光学機能構造加工法に求められる微細性、多重周期性、大面積性を同時に満足することが期待される。そこで、1.1 節⑥で挙げた次世代光学素子への加工要件を満たす新しい加工法開発のために、本研究では干渉リソグラフィに着目した。

表 1-3 次世代光学素子とその加工法の検討

	分解能	多重 周期性	一括 加工面積	加工コスト
電子線リソグラフィー	✓ ~20-50 nm	✓	✗ <数 mm 角	✗
二光子重合リソグラフィー	✓ ~120 nm	✓	✗ <数 mm 角	✗
自己組織化加工法	✓ ~100 nm	△	✓ 数 cm 角	✓
干渉リソグラフィー	△ ~200 nm	✓	✓ <数十 cm 角	✓
フォトリソグラフィー	△ ~1 μm	✓	✗ <数 mm 角	✗
要求仕様	<200 nm	✓	最大数 cm 角	✓

### 1.3 研究目的

本研究では、次世代光学素子の設計から評価までを含む加工フローの各段階における具体的な問題点の解決することで、加工方法の実現を目指す。そこで、次世代光学機能構造の設計から評価までにおける 3 つの研究課題を図 1-12 に示す。それぞれの研究課題に対して、着目した干渉リソグラフィーを用いて解決を目指す。

#### 【研究課題，目的】

##### ① サブ波長格子偏光フィルタの理論モデル構築と加工検討

次世代光学素子の設計段階において、様々な設計方法が確立されている。中でもメタサーフェスの設計においては、オープンソースのメタアトムの設計ソフトウェア[9]なども公開されており、設計方法自体も確立され始めている。しかし、次世代の偏光制御素子として期待されるサブ波長偏光ビームスプリッタ (Subwavelength grating polarization beam splitter, SWGPBS) は、物理的なメカニズムが明らかでないために、設計方法を数値最適化に依存しており、計算コストが高いだけでなく、最適化による設計の不安定さといった問題点がある。そこで、偏光分離機能の物理メカニズムを明らかにし、理論的なモデルに基づいた設計方法を提案することで、これらの問題を解決して、低コストかつ大面積で加工が可能な干渉リソグラフィーの適用を検討した。また、物理メカニズムを明らかにしたことで、格子の加工誤差が、SWGPBS の偏光分離機能に与える影響を明らかにした。

##### ② 二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルの構築，多重露光干渉リソグラフィーの加工プロセス計測

多重周期性を持つ回折素子の最も基本的な特性を備えている二重周期回折格子は、既存の回折格子の多波長化，多機能化など多くの応用が検討されているが，一般的な



理論モデルの構築を試みた研究例は殆どなかった。その結果，単一周期回折格子において有効性が実証されている加工プロセス制御方法の導入や，理論的な光学特性評価が困難といった問題点があった。そこで，本研究では二重周期回折格子の理論モデルを構築することで，二重周期回折格子による回折特性の理論的な評価，設計を実現し，多重露光干渉リソグラフィーの露光プロセスのモニタリング方法の開発を目指した。これにより，複雑な形状を多重露光干渉リソグラフィーで加工する際にプロセス管理や露光エネルギーのフィードバック制御などの実現が期待される。

### ③ 多光束エバネッセント光干渉リソグラフィー

従来の空气中での露光を前提とした干渉リソグラフィーでは加工微細性の原理的な限界により，次世代光学素子で求められる加工微細性を満足できていなかった。そこで，従来の加工限界を超えた微細加工と多重周期性を両立した新しい干渉リソグラフィーの開発を行った。超高 NA 露光によって生じるエバネッセント光をマルチビームで干渉させる多光束エバネッセント干渉リソグラフィーを提案し，理論的に露光特性を検討した。さらに，造形実験によりサブ波長オーダの微細性と多重周期性を両立した，次世代光学素子の加工要件を満たす加工法としての実証を行った。

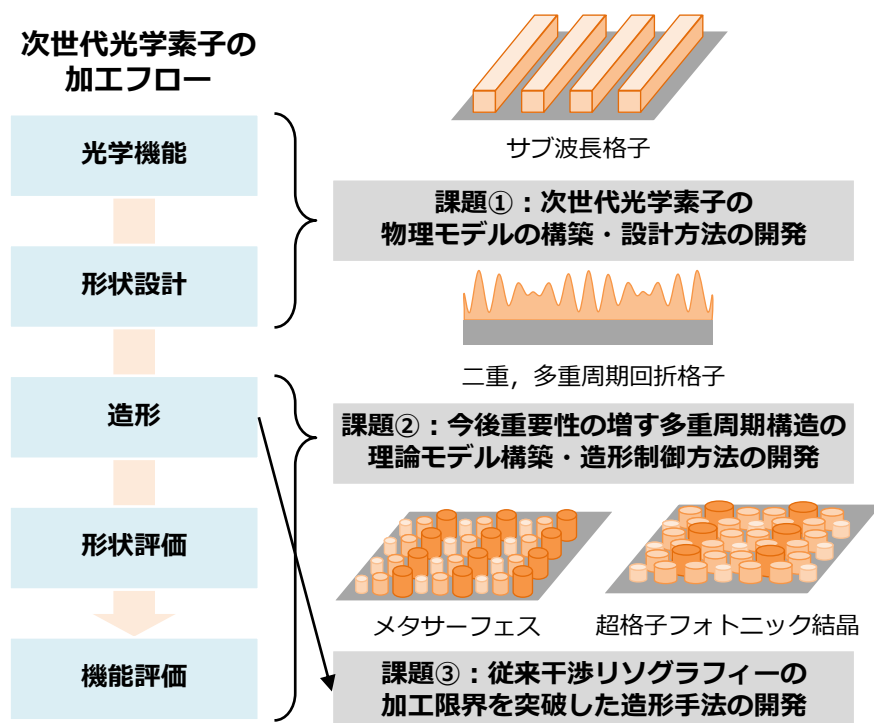


図 1-12 次世代光学素子の加工フローと課題

## 1.4 本論文の構成

本論文の構成は、図 1-13 に示したとおりである。

本章、「序論」では、背景と目的について述べた。

第2章「干渉リソグラフィの基礎」では、本研究で着目した干渉リソグラフィに関する基礎的な理論、実験プロセスや装置について述べる。また、先行研究を紹介し、次世代光学機能素子の加工に求められる微細性、多重周期性を実現する方法について検討を行った。

第3章「サブ波長格子偏光フィルタの理論モデル構築と加工検討」では、サブ波長偏光ビームスプリッタの物理モデルの構築を行い、構築した物理モデルに基づいたサブ波長光学素子の設計方法を提案・実証した。これまで、理論モデルが欠如していた SWGPBS に対して、薄膜多重干渉と有効媒質理論と導波モード共振の理論を組み合わせることで、初めて物理モデルを構築した。また、有効媒質近似による誤差が予想された為、既存の電磁波解析シミュレータによる最適化を組み合わせることで、近似による誤差を修正した設計が可能となった。提案した設計方法は、従来の全数値最適化による設計方法と比べ、物理的な見通しが良く計算コストがかからないというメリットがある。さらに、干渉リソグラフィでの加工検討として、加工誤差が光学特性へ与える影響を解析的に明らかにし、高精度な加工プロセス制御方法の必要性を示した。

第4章「二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルの構築」では、2重周期ホログラフィック回折格子に対してスカラー回折理論を適用し、理論的なモデルの構築をおこなった。そして、重ね合わせる2つの周期の関係性で2種類の構造に分類した。その結果、うなりを伴う二重周期回折格子では、既存の回折格子に置き換えることで、2波長動作を実現する可能性が示された。次に、整数倍周期を重ね合わせた二重周期格子では、特定の次数の回折効率の向上、低減などの特性が得られる。そして、既存の二重周期回折格子に関する研究を整理して、応用可能性を検討した。さらに、一般化した理論モデルを元に、二重周期回折格子のインプロセス回折光計測の開発へと進めた。本章の内容の理論式の一般化は、畚野剛瑠氏(現東京大学工学系研究科精密工学専攻修士一年)と共同で行った。

第5章「多重露光干渉リソグラフィの加工プロセス計測」では、うなりを伴う二重周期回折格子に対して、回折光のインプロセス制御を行うことで、その回折特性を高精度に制御するための加工プロセス制御の実証を行った。まず、現像前後のレジストを二重周期位相回折素子とみなしたモデルを構築し、インプロセス計測結果と現像後のポストプロセス計測結果との対応を初めて明らかにした。簡略化したスカラーモデルにおいても回折効率比を良く予想可能であり、加工プロセス制御へ応用可能なことを示した。

第6章「多光束エバネッセント光干渉リソグラフィ」では、次世代光学素子の加工に求められる多重周期性と微細性を兼ね備えた加工法として、エバネッセント光干渉リソグラフィを提案，実証した．理論的に，エバネッセント光の干渉によって得られる強度分布を解析した．そして，実証実験を行うための4光束エバネッセント光干渉リソグラフィ露光装置を開発した．さらに，基礎実験として二光束エバネッセント光露光により造形したサンプルの複屈折性を評価した．そして，4光束エバネッセント光干渉露光実験では，従来の空気中での干渉縞の限界ピッチである  $\lambda/2$  を大きく超えた  $\lambda/3.5$ ，NA1.76 に相当する超微細加工を実証した．さらに，多光束干渉によって，ナノ・マイクログレーティング構造，ナノグレーティング+マイクロドットパターンの造形に成功した．

第7章「結論と展望」では，本論文の結論と展望をのべた．

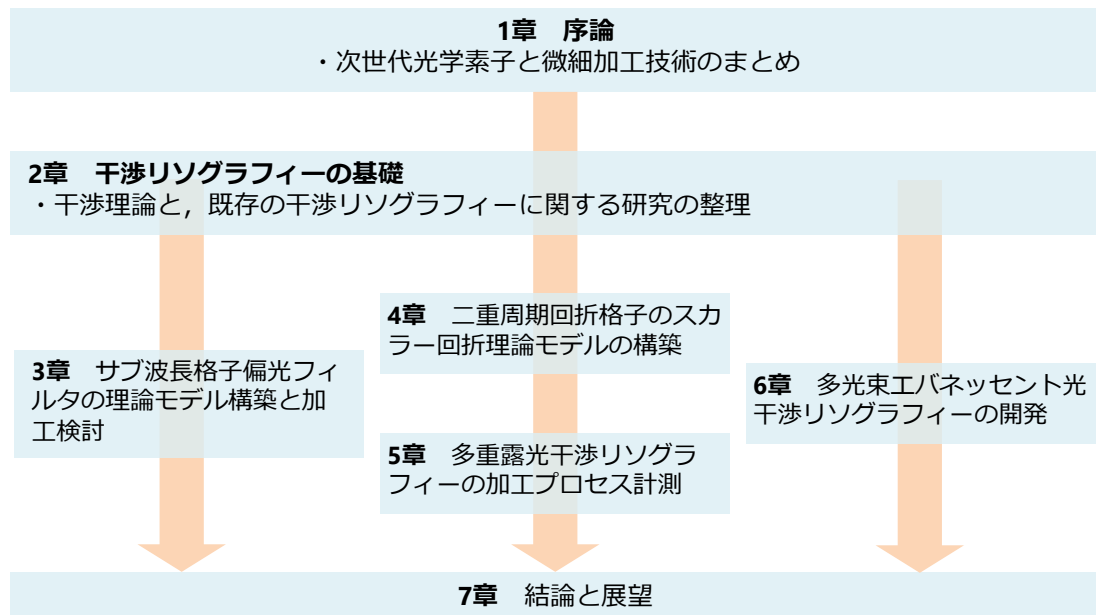


図 1-13 本論文の構成



## 第2章 干渉リソグラフィーの基礎

---

2.1 緒言 .....	18
2.2 レーザー干渉の理論 .....	18
2.2.1 二光束干渉 .....	18
2.2.2 多光束干渉法と多重露光干渉法 .....	20
2.3 干渉リソグラフィー .....	22
2.3.1 加工プロセス .....	22
2.3.2 感光性レジスト .....	23
2.3.3 エッチング .....	25
2.3.4 干渉露光装置 .....	26
2.4 干渉リソグラフィーの微細化 .....	28
2.5 結言 .....	30

---

## 2.1 緒言

本章では，波動光学によるレーザー干渉の理論解析，干渉リソグラフィーの概要，先行研究を整理して述べる．特に，次世代光学素子の干渉リソグラフィーによる加工時に求められる加工微細性，多重周期性を実現するための方法について理論，実践の両面から議論する．

## 2.2 レーザー干渉の理論

### 2.2.1 二光束干渉

この節では，波動光学を用いて直線偏光を持つ平面波による干渉縞の理論を述べる．まず，図 2-1(a)のような座標系において入射する  $n$  番目の平面波の電場  $\mathbf{E}_n$  を以下のように記述する．

$$\mathbf{E}_n = \mathbf{P}_n A_n \exp[(i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r} - \omega t) - \alpha_n] \quad (2-1)$$

ここでは， $A_n$ ， $\alpha_n$ ， $\omega$ ， $t$  は，それぞれ電場振幅，初期位相，角振動数，時間を表す．位置ベクトルは， $\mathbf{r} = (x, y, z)$  とする．直線偏光を表す偏光ベクトルを  $\mathbf{P}_n$  とし，入射面からの角度  $\psi_n$  で偏光方向を表す．図 2-1 の座標系に示すように，P 偏光を  $\psi_n = 0, \pi$ ，S 偏光を  $\psi_n = \pm\pi/2$  と定義する．入射角を  $\theta_n$ ，方位角を  $\phi_n$  とした時，偏光ベクトル  $\mathbf{P}_n$  は，以下の式で表される．

$$\mathbf{P}_n = \begin{pmatrix} \cos \theta_n \cos \phi_n \cos \psi_n + \sin \phi_n \sin \psi_n \\ \cos \theta_n \sin \phi_n \cos \psi_n - \cos \phi_n \sin \psi_n \\ \sin \theta_n \cos \psi_n \end{pmatrix} \quad (2-2)$$

また，真空中での波長を  $\lambda$ ，波数を  $k_0 = 2\pi/\lambda$  とする．そして， $z < 0$  の領域の屈折率を一様に  $n_1$  とすると，平面波の波数ベクトル  $\mathbf{k}_n$  は以下のように表せる．

$$\mathbf{k}_n = k_0/n_1 (\cos \phi_n \sin \theta_n, \sin \phi_n \sin \theta_n, \cos \theta_n) \quad (2-3)$$

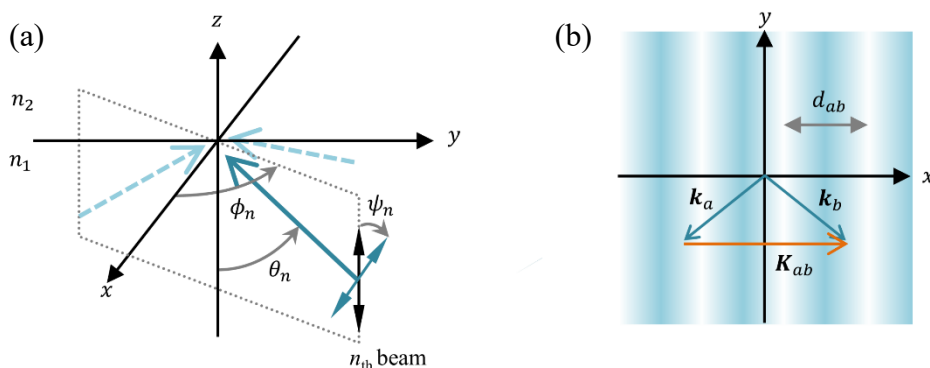


図 2-1 (a)座標系の設定 (b)xy 平面での干渉縞の模式図

次に、基本的な2光束干渉の強度分布について記述する。2本の平面波  $\mathbf{E}_1, \mathbf{E}_2$  が干渉した際の強度分布  $I(\mathbf{r})$  は、以下の式で表される。

$$I(\mathbf{r}) = |\mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2|^2 = A_1^2 + A_2^2 + 2A_1A_2\mathbf{P}_1 \cdot \mathbf{P}_2 \cos [(\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{r} + (\alpha_2 - \alpha_1)] \quad (2-4)$$

ここで、電場  $\mathbf{E}_1$  と  $\mathbf{E}_2$  によって生じる干渉縞の周期と方向は、図 2-1(b) に示したように逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{12} = \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1$  で表される。このときの干渉縞の周期を  $\Lambda_{12}$  とすると、逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{12}$  を用いて以下の式で表される。

$$\Lambda_{12} = \frac{2\pi}{|\mathbf{K}_{12}|} = \frac{2\pi}{|\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1|} \quad (2-5)$$

屈折率  $n_1$  の媒質内での干渉縞の最小ピッチは、2つの平面波の波数ベクトル  $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$  が成す角度が 180 度となるときに、 $\Lambda_{12} = \lambda/(2n_1)$  となる。そのため、空気中 ( $n_1 = 1$ ) での干渉縞の原理的な最小ピッチは  $\lambda/2$  となる。そのため、微細化のためのアプローチとしては、短波長化と高 NA 露光の2つがある。何れの方法でも理論的には微細化が可能ではあるが、実験装置や材料などの実践的な問題によって限界が決まってくるため、それらの実践的な問題については 2.4 節で述べる。そして、式(2-5)で表された2光束干渉における干渉縞の可視度  $V$  は、3次元空間内での強度の最大値  $I_{\max}$ 、最小値  $I_{\min}$  によって、以下のように表される。

$$I_{\max} = \max(|\mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2|^2) = A_1^2 + A_2^2 + 2A_1A_2|\mathbf{P}_1 \cdot \mathbf{P}_2| \quad (2-6)$$

$$I_{\min} = \min(|\mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2|^2) = A_1^2 + A_2^2 - 2A_1A_2|\mathbf{P}_1 \cdot \mathbf{P}_2| \quad (2-7)$$

$$V = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} = \frac{2A_1A_2}{A_1^2 + A_2^2} |\mathbf{P}_1 \cdot \mathbf{P}_2| \quad (2-8)$$

式(2-8)からわかるように、振幅  $A_1, A_2$  と偏光ベクトル  $\mathbf{P}_1, \mathbf{P}_2$  が干渉縞の可視度  $V$  に影

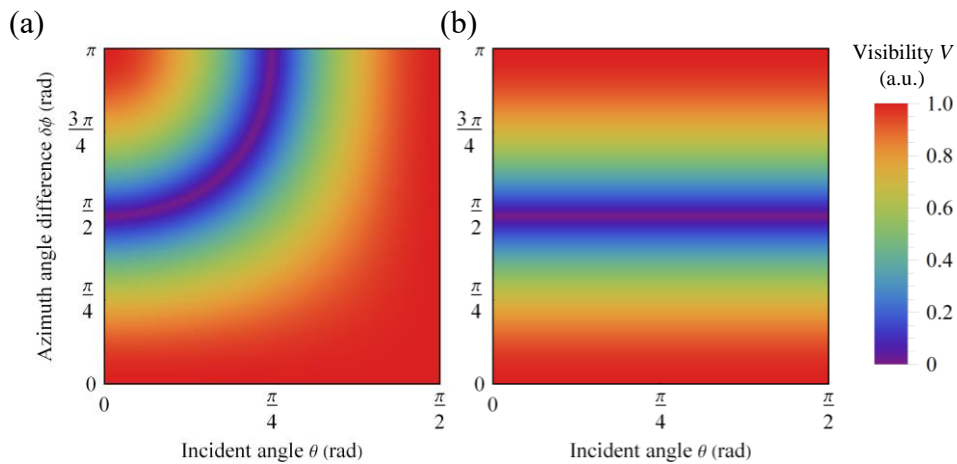


図 2-2 干渉縞可視度  $V$  と  $\theta, \phi$  の関係 (a) P 偏光 ( $\psi = 0$ ) (b) S 偏光 ( $\psi = \pi/2$ )

響を与える。振幅は、2つの平面波の振幅が等しい( $A_1 = A_2$ )時に可視度  $V$  は最大になる。また、偏光ベクトルの内積  $\mathbf{P}_1 \cdot \mathbf{P}_2$  が1になる時、つまり偏光面が平行になる条件で可視度  $V$  が最大になる。一般的な直線偏光での2光束干渉で、 $A_a = A_b = 1$  を仮定し、S偏光( $\psi = 0$ )、P偏光( $\psi = \pi/2$ )での可視度  $V$  の入射角  $\theta$ 、方位角  $\varphi$  依存性を図 2-2 プロットした。また、式(2-8)からの明らかなように、入射角、方位角によって2つの平面波の偏光方向が直交する条件では、干渉が生じず、 $V=0$  となる。一般的に干渉リソグラフィにおいては、干渉縞のコントラストを最大化するように装置や入射条件を設計するため、適切な振幅、偏光の制御が非常に重要となる。

### 2.2.2 多光束干渉法と多重露光干渉法

次に、干渉リソグラフィによる多重周期構造の造形方法として、代表的な多光束干渉法と多重露光法の2つについて述べる。特に、複数の周期性を有する干渉パターンを生成する際に、2つの方法で得られる干渉パターンの違いについて議論する。まず、多光束干渉法は、複数の平面波を一度に干渉させて、複雑な干渉パターンを生成する方法である。 $n$ 本のビームによって生じる多光束干渉の強度分布  $I_{mb}$  は以下の式で表される。

$$I_{mb}(\mathbf{r}) = \left| \sum_a^n E_a \right|^2 = \sum_a^n A_a^2 + 2 \sum_{a < b}^n A_a A_b \mathbf{P}_a \cdot \mathbf{P}_b \cos[(\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \cdot \mathbf{r} + (\alpha_b - \alpha_a)] \quad (2-9)$$

まずは、 $n$ 本のビームによる多光束干渉の強度分布は、それぞれのビーム自体の強度の和(式(2-9)右辺第一項)と  $nC_2$ 通りの各2光束干渉の重ね合わせ(式(2-9)右辺第二項)によって表される。そのため、入射ビームの本数を増やすことで、多数の干渉縞が重なりあった複雑な干渉パターンを一回の露光で得ることができる。しかし、複数のビームがそれぞれ同時に干渉しているために、一つの干渉縞のみを独立に制御するといったことは困難である。次に、それぞれの干渉縞の可視度  $V$  は、前述の二光束干渉と同様にそれぞれのビームの電場振幅  $A_a, A_b$  が一致するとき最大となる。しかし、単純な二光束干渉と違う点は、 $n$  ( $n > 2$ )本のビームは、すべてのビームの波数ベクトル  $\mathbf{k}_a$  が同一平面上に存在する場合を除き、偏光ベクトルの内積  $\mathbf{P}_a \cdot \mathbf{P}_b$  をすべての干渉縞で1にすることは出来ない。つまり、実践的な入射条件(すべてのビームの波数ベクトル  $\mathbf{k}_a$  が同一平面内でない場合)では、偏光ベクトルの内積  $\mathbf{P}_a \cdot \mathbf{P}_b$  が最大とならないビームの組み合わせが生じ、可視度  $V$  が低下する。

次に、多重露光干渉法の理論的強度分布について述べる。多重露光干渉法では、基本的には、二光束干渉で生じる単一周期の干渉縞を複数重ね合わせて露光することで複雑な干渉パターンを得る方法である。二光束干渉を  $n$ 回重ね合わせて得られる強度分布  $I_{me}$  は以下の式で表される。

$$I_{me}(\mathbf{r}) = \sum_i^n |E_{i,a} + E_{i,b}|^2 = \quad (2-10)$$



$$\sum_i^n \{A_{i,a}^2 + A_{i,b}^2 + 2A_{i,a}A_{i,b}\mathbf{P}_{i,a} \cdot \mathbf{P}_{i,b} \cos[(\mathbf{k}_{i,b} - \mathbf{k}_{i,a}) \cdot \mathbf{r} + (\alpha_{i,b} - \alpha_{i,a})]\}$$

多重露光法においては、1回の露光につき1つの干渉縞が重ね合わされていくため、 $n$ 回の多重露光では、 $n$ つの干渉縞が重ね合わされている。多光束干渉法と異なり、 $i$ 回目の露光において入射条件を調整することで、干渉縞の逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{i,ab}$ 、可視度  $V$  や初期位相差  $\alpha_{i,b} - \alpha_{i,a}$  を独立に調整することが可能である。

最後に、多光束干渉法、多重露光干渉法を用いて、同じ干渉パターン of 造形を目指した場合に、強度分布がどの様に異なるか、各パラメータの影響を理論的に比較した。同じ干渉パターンで比較するために、 $n$  光束干渉法と  $nC_2$  回多重露光干渉法を以下の仮定のもとで考える。

【多光束干渉法と多重露光法の比較のための仮定】

- ① 2つの露光法での総露光エネルギーが  $\sum |A_a|^2 = \sum |A_{i,a}|^2 + |A_{i,b}|^2 = 1$  と等しくなるようにそれぞれの露光法での振幅を便宜上  $A_a = 1/n^{1/2}$ ,  $A_{i,n} = [n(n-1)]^{-1/2}$  とした。
- ② 多重露光干渉において各露光における二光束干渉を生じさせるビームは、 $n$  光束干渉を構成する  $n$  本のビーム  $\mathbf{E}_i (i=1, 2, \dots, n)$  からもれなくダブリ無く選ばれ、同じ入射角  $\theta_i$ 、方位角  $\phi_i$ 、位相  $\alpha_i$  を持つとした。

この2つの仮定のもと、式(2-9), (2-10)に振幅  $A_a = n^{-1/2}$ ,  $A_{i,n} = (n(n-1))^{-1/2}$  を代入して得られるそれぞれの方法での強度分布は以下の式で表される。

$$I_{mb}(\mathbf{r}) = \left| \sum_a^n E_a \right|^2 = 1 + \frac{2}{n} \sum_{a < b}^n \mathbf{P}_a \cdot \mathbf{P}_b \cos[(\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \cdot \mathbf{r} + (\alpha_b - \alpha_a)] \quad (2-11)$$

$$\begin{aligned} I_{me}(\mathbf{r}) &= \sum_i^n |E_{i,a} + E_{i,b}|^2 \\ &= 1 + \frac{2}{n(n-1)} \sum_{a < b}^n \mathbf{P}_a \cdot \mathbf{P}_b \cos[(\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \cdot \mathbf{r} + (\alpha_b - \alpha_a)] \end{aligned} \quad (2-12)$$

式(2-11), (2-12)において、干渉縞の重ね合わせを表す、右辺第2項にはそれぞれ、係数  $2/n$ ,  $2/(n(n-1))$  が掛かっている。このことから、多重露光干渉では  $n > 2$  で干渉縞の強度が低下することが示唆される。これは、多光束干渉では、計  $n$  本のビームによる入射で  $nC_2$  個の干渉パターンを生成しているのに対して、多重露光では、2本のビームを  $nC_2$  回、計  $n(n-1)$  本のビームで  $nC_2$  個の干渉パターンを生成しているからである。そのため、全体の強度で正規化した際には、多重露光干渉における干渉の強度は、多光束干渉よりも低下してしまう。そのため、それぞれの方法における干渉縞可視度へ影響するパラメータは以下の様に整理され、以下のように長所、短所を整理できる。

表 2-1 多光束干渉法と多重露光干渉法の特徴

	多光束干渉法	多重露光干渉法
干渉縞の数	$n$ 光束干渉で $nC_2$ 通りの 2 光束干渉縞の重ね合わせ	$n$ 回の露光で $n$ 通りの 2 光束干渉縞の重ね合わせ
長所	1 回の露光で複雑なパターン生成	重ねる二光束干渉を独立に制御可能
短所	入射偏光により，干渉縞の最大可視度が低下．重ねる干渉縞の独立した制御が困難	複数回の露光が必要 露光回数が増えると，多光束干渉と比べて干渉縞の強度振幅が低下

## 2.3 干渉リソグラフィー

前節では干渉縞の強度分布について理論的に述べたが，本節では実際に干渉パターンに応じた形状を得るための干渉リソグラフィーの加工プロセスについて説明する．その後，干渉パターンを形状へ反映させる感光性レジストについて述べる．最後に，前節で述べた多光束干渉法，多重露光干渉法を実現するために必要な露光装置について先行研究を整理する．

### 2.3.1 加工プロセス

まず，干渉リソグラフィーの一般的な加工プロセスを図 2-3 に示す．一般的には，洗浄，塗布，露光，現像，エッチングといった工程を経てデバイスの作成が完了する．まずは，洗浄工程として有機溶媒や濃硫酸と過酸化水素水の混合溶液であるピラニア溶液を用いて基板上的のゴミや有機物を除去する．次に，レジストの塗布工程として，一般的はスピコートによってレジストを塗布する．スピコーターの回転数や，溶媒での希釈率を変えることで所望の膜厚でレジストを塗布することができる．また，凹凸のある基板への塗布を行う際には，スプレーコートなどが用いられる．次の現像工程で水溶液系の現像液を用いる場合には，基板とレジストの密着性が悪く，基板が親水化しているとレジストが剥離するといった問題が生じる．そのため，レジスト塗布の前処理として，ヘキサメチルジシラザン(HMDS)などを用いて基板の疎水化処理を行うこともある．次に，干渉リソグラフィーにおいては，露光装置に設置し設計した定在波によってレジストの露光を行う．次に，現像工程では，露光部若しくは非露光部を現像液によって取り除くことで干渉パターンに応じた形状を得る．レジストの一般的な特性は次節で詳細に述べる．その後，残存したレジストをマスクとしてエッチングを行うことで，基板をパターンニングしたり，レジストの表面に成膜したりして最終的なデバイスが完成する．そのため本研究においては，エッチングや転写などの前工程に当たり，加工精度のボトルネックとなるレジストのパターンの評価を行った．

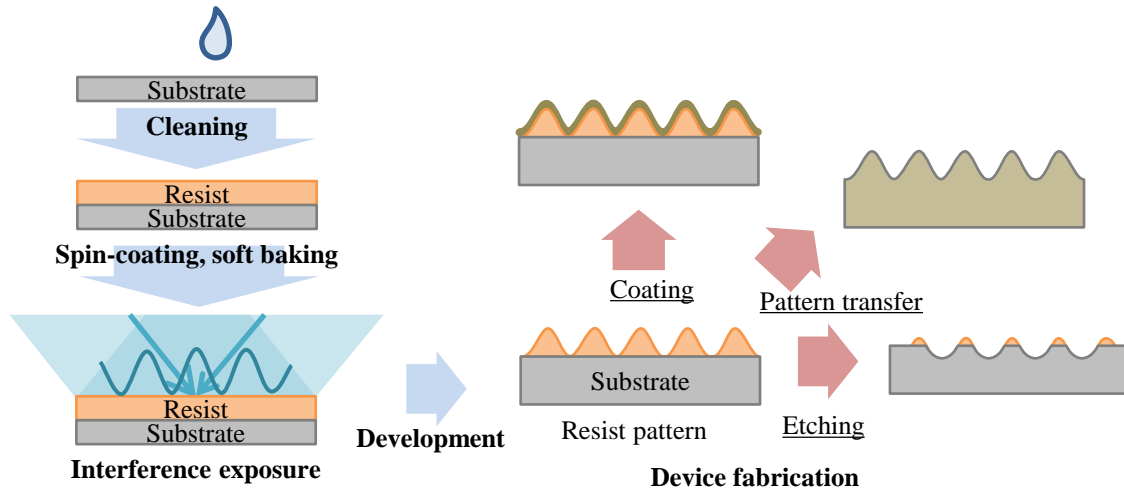


図 2-3 干渉リソグラフィーの一般的な加工プロセス

### 2.3.2 感光性レジスト

感光性レジストは、露光することで、光の強度に応じて化学反応が生じ、露光部の化学的特性が変化し、現像工程を経て形状を得る。干渉リソグラフィーにおいて最終的な加工形状、精度、特性を決める重要な要素である。一般的には、露光部が現像液に可溶化するポジ型と、露光部が硬化、非溶化するネガ型レジストに大別される。詳しい化学的な反応機構については、本研究の範疇を超えるため説明を省くが、表 2-2 にネガ、ポジ型レジストの一般的な特性を比較したものを示す[56]。比較した特性の中でも、特に解像力については、ネガ型レジストは、残存レジストが現像液によって膨潤する影響で低解像度となっている。そのため、ポジ型レジストと比べると 100 nm 以下の線幅が必要となる半導体プロセスなどへの利用は限定的である。また、本研究の目的でもある、次世代光学素子の要求仕様としては、サブ波長以下の分解能での加工が求められており、ポジ型レジストが適している事がわかる。そこで、これ以降は、本研究でも用いたポジ型レジストに限定して述べる。

表 2-2 ネガ、ポジ型レジストの一般的な特性の比較[56]

	長所	短所
ネガ型レジスト	機械的強度, 密着性, 耐薬品性, 厚膜	低解像度
ポジ型レジスト	解像力, 高感度	機械的強度, 薄膜のみ

ポジ型レジストの特性は、一般的に露光エネルギーと残存膜厚の関係を示す感度曲線(図 2-4 (a))によって特徴づけられる。本節では、理想的な正弦波状の強度分布(図 2-4 (b))と多項式で表されたレジストの感度曲線によって、干渉縞の可視度とレジストの感度が現像後の形状の基本的な関係を述べる。まず、レジストの断面に対して、レジ

ストの高さを  $d$ 、変位を  $x$  とする。そして、周期  $\Lambda_0$  の定在波の強度分布  $I(x)$  は、 $y, z$  方向に均一だと仮定し干渉縞の可視度  $V$  として以下の式で表す。

$$I(x) = 1 + \frac{V}{2} \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda_0} x\right) \quad (2-13)$$

この時、 $V=1, 0.5$  の干渉縞強度分布は、図 2-4 (b) のようになる。次に、 $t$  秒露光したときの変位  $x$  における単位面積あたりの露光エネルギーは  $D(t) = I(x)t$  で表されるとする。つぎに、露光ドーズ  $D$  とレジストの膜厚  $d$  の関係をレジストの感度曲線として多項式  $d = 1 - D(t)^n$  で表せると単純化して、 $n = 1, 4$  の 2 つの感度曲線を図 2-4 (a) のように設定した。 $n = 4$  の感度曲線の方が、 $D = 0.5 \sim 1$  で急峻に高さが増加しており、一般的に感度が高く、 $n = 1$  とした感度曲線は緩やかに残存膜厚が増加するため、感度が低いレジストである。次に、干渉縞の可視度  $V=1, 0.5$  と感度曲線  $n = 1, 4$  の組み合わせで、露光時間  $t$  を変えたときの断面プロファイルの変化を

表 2-3 のようにまとめた。その結果、レジストの感度が低い場合、断面プロファイルは干渉縞強度分布と同じ正弦波状になり、感度が高い場合はより矩形に近いプロファイルが得られる。また、同じ入射エネルギーに対して得られる形状の高低差は、高感度レジストの方が大きな高低差が得られる。また、干渉縞の可視度が高いほど同じ入射エネルギーに対して得られる形状の高低差が大きい。干渉縞可視度が低い場合、干渉縞の節でもレジストが現像され溶けていく。本節の簡略化したモデルでは、露光エネルギーと高さを単純な多項式から計算したが、実際の化学反応をモデル化したセルラーオートマトン[57]を用いてより高精度に形状の予測を行う研究なども報告されている。更に、実際の干渉リソグラフィーでは、入射光と基板からの反射光がレジスト内部で干渉し、面内方向だけでなく、高さ方向にも定在波が生じる[58]。そのため、本節で仮定したような  $z$  方向の均一性が失われ、レジストの高さ方向に不均一な造形結果が得られる。そのため、定在波効果を受けないように、底面での反射を防止する下層反射防止膜(Bottom Anti-reflection Coatings, BARC)などが用いられる。

最後に、レジストのインプロセスモニタリングについて説明する。加工プロセスの信頼性を高めるためには、特に露光、現像工程でのプロセス管理が重要になる。特に、露光中のレジストは、感光し化学反応が生じることで微細な屈折率、吸収率変化が生じることを利用したインプロセス計測方法が報告されている[59]。干渉リソグラフィーにおいては、微細な屈折率変化によってレジスト内部が回折格子のように働くため、計測用ビームを入射し、その回折効率を計測することで、線幅を予測するといった研究例も報告されている[60]。しかし、これまでは単一周期構造への適用しかなく、より複雑な露光が必要となる多重周期構造の加工プロセス制御への適用が望まれているが、それを試みた研究は未だかつてない。

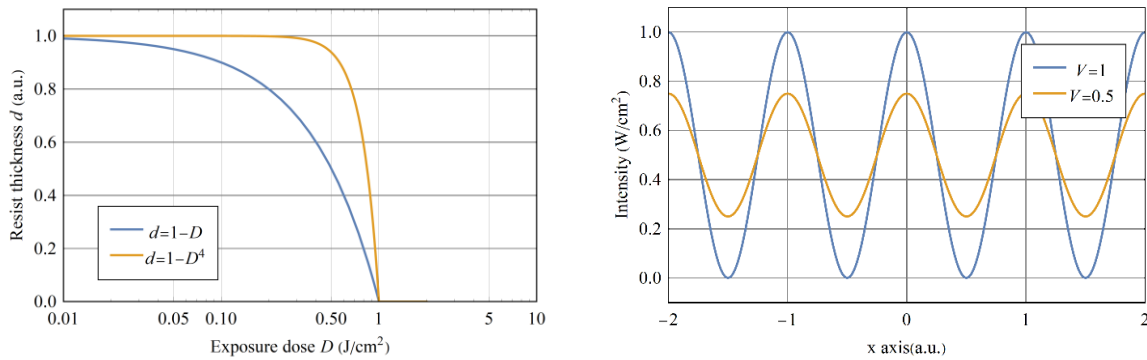


図 2-4 (a)ポジ型レジストの感度曲線 (b)干渉縞の強度分布

表 2-3 干渉縞可視度  $V$  と感度曲線の断面形状へ与える影響

		レジスト感度曲線	
		$d = 1 - D$	$d = 1 - D^4$
干渉縞可視度	$V = 1$		
	$V = 0.5$		

### 2.3.3 エッチング

エッチング工程では、パターンニングしたレジストをマスクとして基板や基板上に成膜した薄膜を除去することで、基板や薄膜へパターンを転写する工程である。エッチングの方法としては、液相のエッチャントを用いる①ウェットエッチングとプラズマを用いる②ドライエッチングの 2 種類に大別される。一般的な特徴を表 2-4 に示す [61]。一般的にウェットエッチングでは、等方的にエッチングが進むために、マスクと

なるレジスト下部に回り込むアンダーカットによって、高アスペクト比構造の造形が困難、マスクパターンの転写精度の悪化といった問題点がある。そこで、結晶性材料の結晶面によってエッチングレートが異なることを利用した異方性エッチングも広く用いられている。ただ、サブミクロン以下の微細加工においては、ドライエッチングによる加工が主流である。ドライエッチングでは、プラズマにより反応性のイオン、ラジカルを生成することで、基板材料と反応させて除去加工を行う。特に、使用するガスの種類、ガス圧により基板の形状を制御可能であるなどの長所もある。

適切なエッチングの方法、条件を選択することによって、マスクとなるレジストに対して選択的に基板を加工することが可能であり、レジストの形状よりも高アスペクトな基板の加工なども可能である。

表 2-4 一般的なエッチング方法の加工特性[61]

種類	ウェットエッチング		ドライエッチング
	等方性	異方性	等方/異方性
長所	安価，大量に処理可能	平滑，高スペクト比の構造も加工可能	高アスペクト比構造も加工可能，洗浄の必要なし
短所	アンダーカットによる形状精度の低下	Si など一部の結晶性基板のみ有効	装置が高価

### 2.3.4 干渉露光装置

本節では、はじめに二光束干渉に用いる基本的な干渉露光装置について述べ、多重周期構造の造形を目指した露光装置について先行研究を整理する。まず、二光束干渉リソグラフィに用いられる干渉露光装置について説明する。干渉リソグラフィにおいては、単一波長のコヒーレントな波面を複数重ね合わせて露光を行う為、それらの波面の生成方法という観点で、①振幅分割型②波面分割型の大きく2種類に大別される。それぞれの方法を表 2-2 にまとめた。振幅分割型は、ビームの振幅をビームスプリッタ、回折格子、SLM、光ファイバ等で複数のビームに分割する。次に、波面分割ではマスクや Lloyd ミラーと呼ばれる光学系が用いられ、一つの波面を複数に分割し干渉縞を生成する。振幅分割型では、各ビームの強度、偏光を制御しやすく、前節で述べたように干渉縞の可視度などを調整しやすい。それに対し、波面分割型では、一つの波面を分割し干渉させるため、電場の偏光や強度を独立に調整することは困難である。波面分割型として代表的なロイドミラー光学系については、ビームに対して露光ステージを回転させるだけで入射角を制御でき、露光する干渉縞ピッチを容易に制御することができる。それに対して、振幅分割型では、入射角を変更するためには、サンプルステージ、ミラー角度を同期し制御する必要があり[33]、波面分割型に比べ入射角の制御が困難である。しかし、近年では SLM と 4f 光学系により、入射角がダイナミックに可変な振幅分割型の光学系も提案されている[63]。

表 2-5 振幅、波面分割型干渉リソグラフィーの比較

	振幅分割型	波面分割型
装置 模式図		
長所	露光箇所の大面積化が容易	入射角の制御が用意
短所	一般的に入射角が固定	光路長，偏光の独立制御が困難

次に，多重周期構造の造形を目指した多光束干渉と多重露光干渉法で用いられる露光装置について述べる．それぞれの露光方法と装置の組み合わせによって表 2-6 の様に 4 つに分類でき，具体例を図 2-5 に示す．それぞれの分類だけでなく，さらに使用する分割素子の種類によっても様々な種類が報告されている．そこで，特に加工形状の柔軟性に着目すると，SLM を用いた振幅分割型多光束干渉法(図 2-5(a))と回転ロイドミラー光学系を使った多重露光法(図 2-5(b))の 2 つが優れている．まず，1 つ目の方法では，位相ホログラムを SLM で再生することで，従来の平面波同士の干渉では造形が困難な複雑な干渉パターンの作成なども期待されている．しかし，SLM の問題点も同時に明らかになっている．一つ目の問題点は，SLM の画素サイズの大きさである．市販品の最小クラス(GAEA-2, Holoeye 社)でも  $3.74 \mu\text{m}$  程度と比較的大きいため回折角が小さく，サブ波長オーダの周期構造の造形には，高倍率の縮小光学系やミラー光学系が必要となる．その結果，SLM の受光面積と縮小倍率に従って，加工面積が縮小してしまう．また，2 つ目の問題点としては，動作波長が最短でも  $400 \text{ nm}$  程度にとどまることである．空気中での最大開口数  $\text{NA}=1.0$  に近い光学系を実装した場合でも，最小加工ピッチは  $200 \text{ nm}$  以上となってしまい，本研究での要求加工仕様である加工ピッチ  $100\text{-}200 \text{ nm}$  を十分に満足することは出来ない．さらに，3 つ目の問題点はデジタル位相ホログラムを用いるため，離散的な入射角の制御しか出来ないため，加工形状の連続的・柔軟な制御が困難なことである．しかし，これらの SLM の機器に由来する問題が解決されれば，干渉パターンの自由度の高さ，加工面積，加工微細性を両立した干渉リソグラフィーの実現が期待できる．次に，回転ロイドミラー光学系では，露光部を回転するだけで干渉縞のピッチ，方向を変えられるため，多重露光干渉法と組み合わせることで，干渉縞のパラメータを自在に調整して重ね合わせることが容易である．

表 2-6 多光束干渉法, 多重露光法の露光装置

	振幅分割型	波面分割型
多光束干渉法	ビームスプリッタ等でビームを多光束に分割し干渉	マスクや多軸ロイドミラー光学系による波面を多光束分割し干渉
多重露光法	ステージ, ミラーを協調制御し多重露光を実現	回転ロイドミラー光学系で, ステージを回転させ多重露光を実現

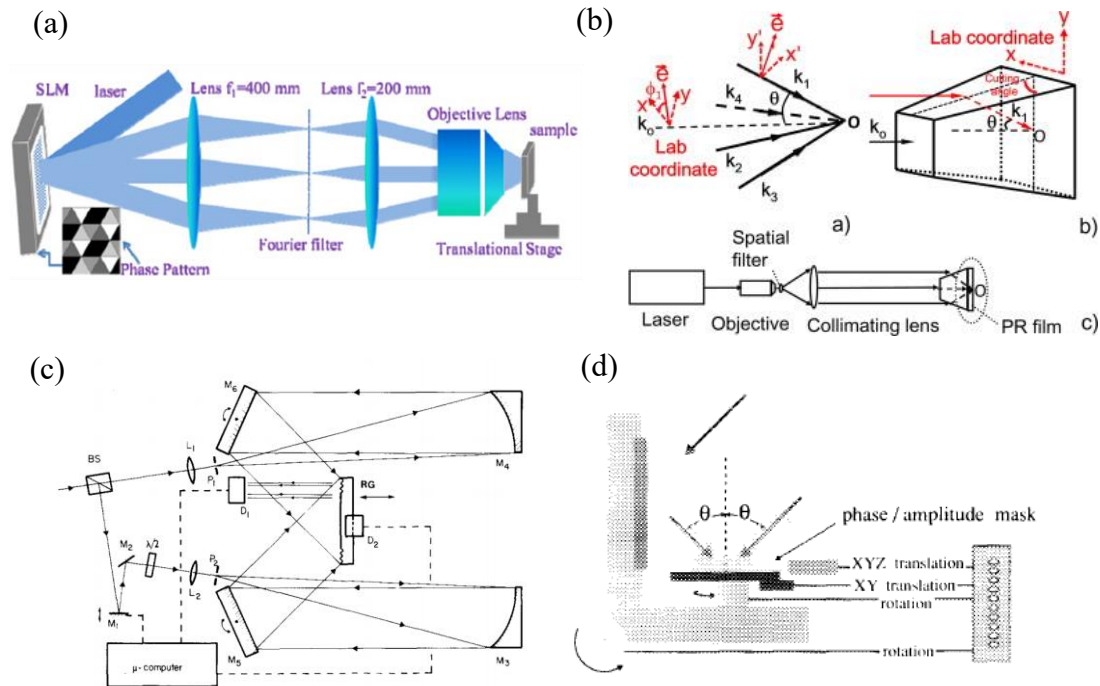


図 2-5 多重周期構造造形のための露光方法と装置の組み合わせ (a) SLM による振幅分割型多光束干渉装置([63]より転載) (b)プリズムによる波面分割型多光束干渉装置([64]より転載) (c)振幅分割型多重露光装置([33]より転載) (d)回転ロイドミラー露光装置([30]より転載)

((a) reprinted with permission from [63]. Copyright (2018) Optical Society of America. (b) reprinted with permission from [64], Copyright (2015) Elsevier. (c) reprinted with permission from [33], Copyright (1979) Taylor & Francis. (d) reprinted with permission from [30], Copyright (1993) AIP publishing.)

## 2.4 干渉リソグラフィーの微細化

次世代光学素子に求められる多重周期性と微細性を両立した加工法の開発を目指して, 従来の干渉リソグラフィーにおける微細性に関する問題を以下で議論する.

第 2.2.1 節で述べたように, 干渉リソグラフィーにおける最小加工ピッチ  $A_{\min}$  は, 入射側の媒質の屈折率  $n_1$ , 光源波長  $\lambda$  以下の式で表される.



$$\Lambda_{\min} = \frac{\lambda}{2n_1 \sin \theta} = \frac{\lambda}{2NA} \cong \frac{\lambda}{2n_1} \quad (2-14)$$

ここで、開口数は  $NA = n_1 \sin \theta$  である。式(2-14)から、加工微細性向上の為には①短波長化②高 NA 化の 2 つのアプローチが考えられる、まず、①短波長化のアプローチについて考える。干渉リソグラフィーに用いられる代表的な光源としては、HeCd レーザー( $\lambda = 325, 442 \text{ nm}$ )、YAG レーザーの高調波( $\lambda = 355, 266 \text{ nm}$ )、KrF、ArF エキシマレーザー( $\lambda = 248, 193 \text{ nm}$ )や各種半導体レーザーである。高分解能化を目指した短波長光源での干渉リソグラフィー実現における問題点は、レーザーの発振線幅、コヒーレンス長の制約である。一般にレーザーの発振波長を短くする場合、自然放出の確率が高くなることから、発振線幅が広がってしまう。一例として、GAM LASER 社の狭帯域化した ArF エキシマレーザーでも 10 cm 程度のコヒーレンス長であるため、通常の干渉リソグラフィーにおいては、大面積に均一で可視度の高い干渉パターンを得ることができなくなってしまう[65]。そこで、振幅分割型の露光装置においてビーム分割素子に回折格子を用いることで、線幅の広さを補償したアクロマティック干渉造形法[66]なども報告されているが、しかし、多重周期化と両立する為には、露光する干渉パターン毎に異なった回折格子が必要となることや、大面積での露光には露光面積以上のサイズの回折格子か露光領域のスティッチングが必要となるなど、多重周期化と両立することは困難である。

そこで、2 つ目の②高 NA 化による微細性向上について考える。高 NA 化の具体的な方法としてはイメージンリソグラフィーが挙げられ、露光時の入射媒質の屈折率  $n_1$  を高めることで微細化を図る。そのため、水を使った液浸[67]、高屈折率オイルによる油浸、固体浸[68]干渉リソグラフィーが報告されている。これまでに報告されている高分解能化を目指した露光光学系を表 2-7 の様に整理した。最大 NA は、入射媒質の屈折率  $n_1$  が上限となる。このとき、レジスト中では光が伝播するために、レジストとプリズム界面の臨界角  $\arcsin(n_2/n_1)$  以下での入射角である必要がある。一般的な感光性レジストの屈折率は  $n_2 = 1.5-1.8$  程度であるため、最大 NA は 1.5-1.8 程度となり、干渉縞ピッチ  $< \lambda/3.5$  程度の高分解能かつアスペクト比 1 程度の構造も報告されている[68]。そして、更に高分解能化するためには、レジストと入射媒質間の臨界角  $\theta_c (= \arcsin(n_2/n_1))$  以上での入射によって、レジスト表面に生じるエバネッセント光を用いて露光するエバネッセント光干渉法が報告されている[69]-[72]。エバネッセント光露光においては、超高開口数( $NA = 1.8$ )の露光も報告されており、波長 500 nm 程度の可視光光源を用いた場合でも、周期 $\sim 150 \text{ nm}$  の構造を加工することが可能となる。他の伝搬光での干渉リソグラフィーと異なり、高さ方向の減衰を伴うものの、最大 NA が最も高く微細な周期構造が求められる分野で非常に注目されている。

表 2-7 干渉リソグラフィーの露光方式の整理

露光方式	気中露光	液浸	固体浸	エバネッセント光
入射媒質 屈折率	$n_1 = 1$	$n_1 \approx 1.33$	$n_1 < n_2 (= 1.5-1.7)$	$n_1 > n_2 (= 1.5-1.7)$
入射角	$\leq 90^\circ$	$\leq 90^\circ$	$\leq \theta_c$	$> \theta_c$
最大NA	$n_1 (= 1)$	$n_1 (\approx 1.33)$	$n_2 (= 1.5-1.7)$	$n_1 (> 1.5-1.7)$
周期	$\geq \frac{\lambda}{2}$	$\geq \frac{\lambda}{2n_1}$	$\geq \frac{\lambda}{2n_2}$	$\geq \frac{\lambda}{2n_1}$
参考文献	[30]	[67]	[68]	[69]-[72]

## 2.5 結言

本章では、まず二光束干渉で生じる単一周期の干渉縞の周期や可視度の特性について述べた上で、干渉リソグラフィーの加工工程や用いるレジストについて述べた。そして、次世代光学素子の加工に必要な多重周期性と微細性について、いくつかの方法を比較し特性を整理した。まず、多重周期性を実現する「多光束干渉法」と「多重露光干渉法」の2つの露光方法を理論的に比較した。その結果、重ね合わせる干渉縞の精密な制御が必要な場合は、重ね合わせる工程が必要となるものの多重露光法が適していると考えられる。また、多光束干渉は一回の露光で複雑な干渉パターンが得られるといった長所がある。そのため、加工対象によって適切な方法を選定することが重要である。そして、微細性の向上の方針として、短波長化と高NA化の大きく2つの方針があることを示した。短波長化による微細性の向上においては、レーザーの特性上コヒーレンスの低下が課題である。また、高NA化の方針では、入射媒質の屈折率  $n_1$  と入射角  $\theta$  を上げることで微細化が可能である。超高NA( $NA > \sim 1.7$ )露光によるエバネッセント光干渉を利用することで、100-200 nm 程度の次世代光学素子の加工に十分な微細性が達成できることが期待できる。これらの議論をもとに、次章では次世代光学素子への従来型干渉リソグラフィーの適用例として、サブ波長偏光フィルタを例に挙げて、従来からの干渉リソグラフィーでの加工を検討する。

# 第3章 サブ波長格子偏光フィルタ の理論モデル構築と加工検討

---

3.1 緒言 .....	32
3.2 サブ波長格子偏光ビームスプリッタ(SWGPBS).....	32
3.3 SWGPBS の理論モデル構築 .....	33
3.3.1 SWGPBS の薄膜多重干渉理論モデル .....	33
3.3.2 理論モデルに基づく SWGPBS 設計方法の提案 .....	38
3.4 RCWA 解析による理論モデルの妥当性検証 .....	39
3.5 干渉リソグラフィによる加工検討 .....	42
3.6 結言 .....	45

---

### 3.1 緒言

本章では、本研究において取り組んだ3つの課題のうち1つ目の「干渉リソグラフィーによるサブ波長偏光フィルタの加工検討」について述べる。サブ波長格子構造を用いた偏光フィルタは、2008年に Magnusson らによって提案された導波モード共振を用いた新しい偏光制御素子であり、従来の誘電体多層膜による偏光分離素子にない、光学特性が期待されている[18]。また、構造ピッチは250-400 nm程度と従来の干渉リソグラフィーでも加工が可能だと考えられるが、素子自体の物理的なモデルや加工精度への要求が完全には明らかでないといった問題点から、干渉リソグラフィーの適用、加工がなされていなかった。しかし、原理的に大面積を安価に加工できる干渉リソグラフィーが適用可能になることの産業的な意味合いは非常に大きい。また、物理メカニズムが明らかでない為に、数値最適化による設計が主流であり、計算コストや物理的な根拠が不明瞭といった問題もあった。そこで、本研究では干渉リソグラフィーによる、サブ波長偏光フィルタの加工を目指して、はじめに透過/反射光を統一的に扱える物理モデルの構築を行った。構築した物理モデルに基づいて、干渉リソグラフィーでの加工検討、考察を行った。

### 3.2 サブ波長格子偏光ビームスプリッタ(SWGPBS)

近年、メタサーフェスなどを代表に、従来の光学素子と比べ、遥かに薄く集積化した光学系”Thin optics”の実現が注目されている。特に、メタサーフェスの加工プロセスである、成膜、リソグラフィー、エッチング等の半導体プロセスと同様の加工技術で加工可能な偏光素子であれば、同一プロセスで同一基板に加工することも可能となり、より集積化され、薄い素子の実現可能である。そこで我々は、反射、透過型偏光子としても機能する偏光ビームスプリッタに着目した。しかし、従来の誘電体多層膜PBSでは、何層もの成膜プロセスを繰り返すなど、メタサーフェスの造形プロセスと異なる加工プロセスが必要となる。さらに、一般的なPBSでは垂直入射時に偏光分離ができないといった原理的な問題点があった。そこで、Magnusson らによって、サブ波長格子によって生じる導波モード共振(Guided Mode Resonance, GMR)[15]を用いたサブ波長格子偏光ビームスプリッタ(Sub-Wavelength Grating Polarization Beam Splitter, SWGPBS)が提案、実証されている[73][74]。さらに、サブ波長格子の構造パラメータを面内で変化させることで、偏光分離+集光といった複数の光学機能の統合も報告されている[75]。このような面内での構造パラメータの調整は、多層膜PBSでは実現が困難であり、サブ波長光子構造のユニークな光学特性である。しかし、提案されているSWGPBSは、電子線リソグラフィーによる試作が殆どであり、低コストかつ大面積での加工が可能な干渉リソグラフィーによる加工を試みた研究例は殆どない。その原因の一つとして、偏光分離機能を生じる物理的なメカニズムが、部分的に明らかでないため、加工特性や加工誤差が光学特性へ与える影響が議論できていない事が挙げられる。具体的には、導波モード共振による反射光の挙動は良く議論されているものの、透過光に対する物理メカニズムを説明した研究例はない。そのため、これまで報告さ

れている構造は、粒子群最適化アルゴリズム[76]などの数値最適化によって偏光分離機能を最大化するように図 3-1(a)に示した設計フローで設計されている。そのため、格子の層数、材質、高さ、プロファイル、ピッチ、フィリングファクタなど膨大なパラメータを最適化するため計算コストも問題となっていた。そのため、干渉リソグラフィでの加工を検討するためには、反射光、透過光のメカニズムを含めた SWGPBS の理論モデルの構築が必要だと考えた。

そこで、本研究ではサブ波長格子を有効媒質理論(Effective Medium Theory, EMT)で薄膜に近似して薄膜多重干渉を考えることで、SWGPBS の透過光の物理メカニズムの記述が可能か検証した。そして、提案されていた反射光に生じる導波モード共振の理論と組み合わせることで SWGPBS の理論モデルを提案している。さらに、従来の全数値解析的設計法の問題点を解決するために、理論モデルによって得られる理論的設計値を初期値として電磁波解析による最適化を行う物理モデルに基づいた設計方法(図 3-1(a))を用いることで、計算コストの低減、モデルの信頼性向上などが期待される。さらに、透過光の物理メカニズムが明らかになることで、さらなる高性能化、設計パラメータの影響などが明らかになると考えられる。

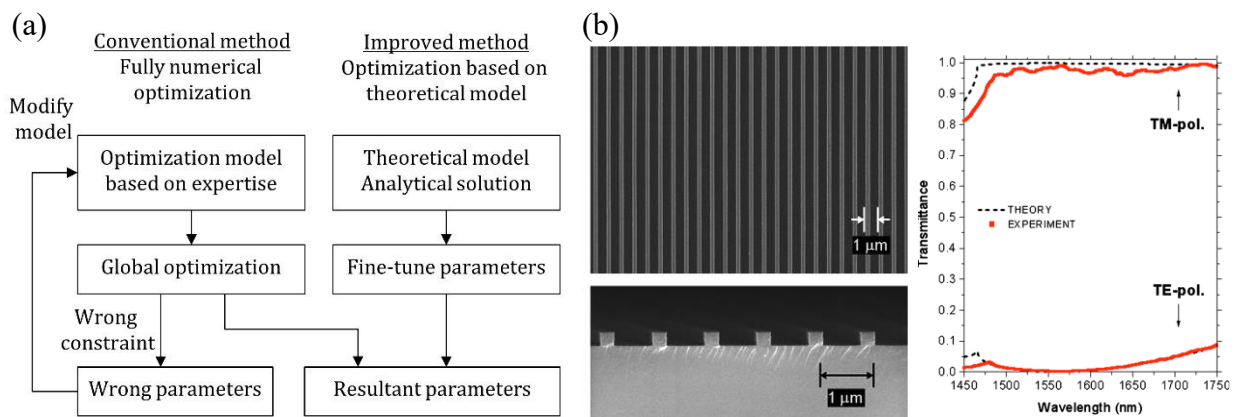


図 3-1 (a)SWGPBS 設計プロセスの提案 (b)先行研究での SWGPBS の加工結果([73]より転載)  
(Reprinted with permission from [73] Copyright (2011) AIP publishing)

### 3.3 SWGPBS の理論モデル構築

#### 3.3.1 SWGPBS の薄膜多重干渉理論モデル

これまで、SWGPBS の構造として、単層[18][73]、二層[77]、疎格子モデル[78]など様々な構造が報告されている。そこで、図 3-2(a)に示したような最も基本的な単層格子モデルに着目して理論モデルの構築を行った。本研究では、SWGPBS では透過/反射偏光の分離を、反射偏光に対する導波モード共振、透過偏光に対しては、サブ波長格子が薄膜の様に働き、薄膜多重干渉により反射が抑えられることで偏光分離が生じているという物理メカニズムを推定し、理論モデルの構築を行った。まず、本章で扱う単層 SWGPBS モデル(図 3-2(a))では、ビームの入射面を  $xy$  平面として、格子は  $z$  軸に

並行とした。ビームは、入射角  $\theta_1$ 、波長  $\lambda$  の平面波の入射を仮定する。そして、格子は入射層(領域 1)、格子層(領域 2)、基板層(領域 3)として、それぞれの屈折率を  $n_{1,2,3}$  とした。サブ波長格子の周期、深さを  $\Lambda$ ,  $d$  とした。格子のフィリングファクタ  $f$  は、格子の幅と周期の比として定義した。SWGPBS の理論モデルを構築するために、サブ波長格子を薄膜に近似する有効媒質理論で図 3-2(b)のように単層薄膜モデルへ近似した。ここでは、入射面に対して、電場/磁場ベクトルが垂直な偏光を TE/TM 偏光と定義した。そして、近似した薄膜は、偏光状態に依存した異方的な屈折率  $n_{\text{TE/TM}}$  をもつ。そして、各層(領域 1,2,3)での屈折角  $\theta_1, \theta_{2,\text{TE/TM}}, \theta_3$  とした。薄膜多重干渉を考えるため、 $j$  番目の反射光の電場を  $E_j(j=1,2,\dots)$  とした。

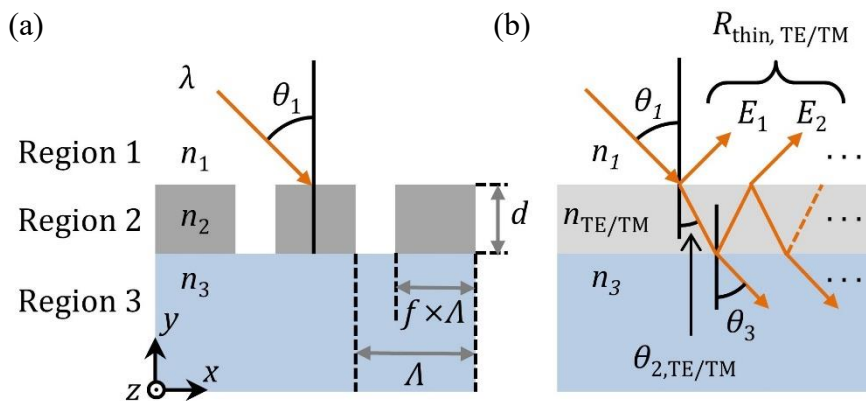


図 3-2 SWGPBS の模式図 (a)サブ波長格子のモデル (b)薄膜に近似したモデル

まず、サブ波長格子を有効媒質理論(Effective Medium Theory, EMT)によって薄膜に近似することで、薄膜多重干渉を適用する。図 3-2(a)に示した矩形の断面プロファイルを持つサブ波長格子のマクスウェル方程式を解くことで、TE/TM 偏光での有効屈折率  $n_{\text{TE/TM}}$  が計算される。そして、矩形格子内部の伝搬方程式を近似的に解く際に、格子周期  $\Lambda$  の打ち切り次数によって 0 次, 2 次, 厳密 EMT の 3 つの方法に分類される [79]。それぞれ詳細はここでは省くものの、格子のピッチ  $\Lambda$  が波長  $\lambda$  に対して無視できないほど大きい場合、2 次, 厳密有効媒質理論を用いることで正確な有効屈折率を計算することができる。そこで、本章では 2 次 EMT を用いて、有効屈折率  $n_{\text{TE/TM}}$  は以下のように表した。

$$n_{\text{TE}} = \sqrt{(1-f)n_1^2 + fn_2^2 + \frac{1}{3} \left[ \frac{\pi\Lambda}{\lambda} f(1-f) \right]^2 (n_2^2 - n_1^2)^2} \quad (3-1)$$

$$n_{\text{TM}} = \left\{ \left[ \frac{(1-f)}{n_1^2} + \frac{f}{n_2^2} \right]^{-1} + \frac{1}{3} \left[ \frac{\pi \Lambda}{\lambda} f(1-f) \right]^2 \times \left( \frac{1}{n_2^2} - \frac{1}{n_1^2} \right)^2 \left( \frac{1-f}{n_1^2} + \frac{f}{n_2^2} \right)^{-3} [(1-f)n_1^2 + fn_2^2] \right\}^{1/2} \quad (3-2)$$

格子のピッチ  $\Lambda$  が  $\lambda/20$  より小さいとき、格子のピッチによる有効屈折率への影響がほとんど無視できるがしかし、格子のピッチ  $\Lambda$  が、 $\sim \lambda/20$  程度を超えると、格子ピッチ  $\Lambda$  が  $n_{\text{TE/TM}}$  に影響を与え始めることが知られている[79]. 大まかな格子周期の目安となる  $\Lambda/\lambda = 0.05$  を挟んだ  $(n_1, n_2, \Lambda/\lambda) = (1.0, 2.0, 0.01), (1.0, 2.0, 0.5)$  の格子構造における有効屈折率の挙動を図 3-3 に示す. 式(3-1), (3-2)と図 3-3 の結果から、すべてのフィリングファクタ  $f$  に対して  $n_{\text{TE}} > n_{\text{TM}}$  となり、格子ピッチが大きくなるに従い有効屈折率が大きくなることが分かる. また、波長に対する格子周期  $\Lambda/\lambda$ 、入射側と格子部の屈折率差  $n_2 - n_1$  が大きくなるに従い、有効媒質理論と実際の電磁波解析で計算される格子の光学応答の誤差が増加することが知られている[79]. そのため、ここで注意しなければいけないのは、有効媒質理論を用いた理論的な計算には誤差が含まれるという点である.

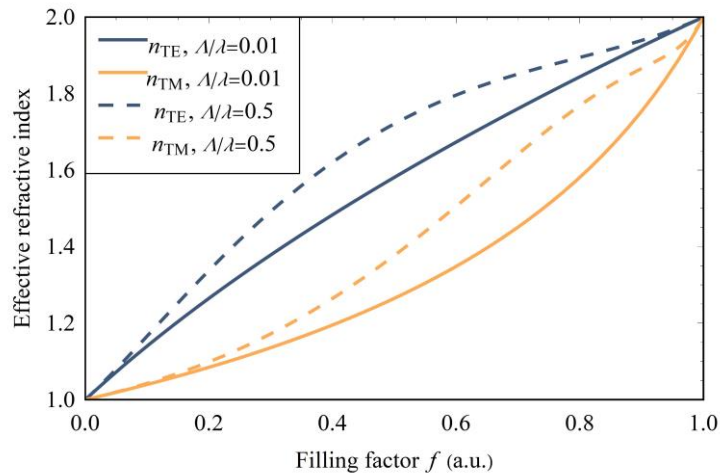


図 3-3 2次有効媒質理論で計算される有効屈折率  $(n_1, n_2, \Lambda/\lambda) = (1.0, 2.0, 0.01), (1.0, 2.0, 0.5)$

次に、近似された薄膜における透過偏光の反射が抑えられる条件について述べる. 1936年に Strong らによって垂直入射する光に対して単層薄膜系において反射光がなくなる薄膜の屈折率、膜厚の条件が報告されている[80]. さらに、1960年頃 Catalan らによって、斜入射に置いても無反射となる条件があることが報告されている[81]. そこで、EMTで近似した薄膜への斜入射における反射率  $R_{\text{thin,TE/TM}}$  は以下のように表される.

$$R_{\text{thin,TE/TM}} = \left| \sum_{j=1}^{\infty} E_j \right|^2 = \left| \frac{r_{12,\text{TE/TM}} + r_{23,\text{TE/TM}} \exp(i\alpha)}{1 + r_{12,\text{TE/TM}} r_{23,\text{TE/TM}} \exp(i\alpha)} \right|^2 \quad (3-3)$$

$$(\alpha = 4\pi n_{\text{TE/TM}} d / \lambda \cos \theta_{2,\text{TE/TM}})$$

この式で、 $r_{12,\text{TE/TM}}$ ,  $r_{23,\text{TE/TM}}$  は、領域 1, 3 と領域 2, 3 での TE/TM 偏光でのフレネルの反射係数として、以下の式で表される。

$$r_{ab,\text{TE}} = \frac{n_a \cos \theta_a - n_b \cos \theta_b}{n_a \cos \theta_a + n_b \cos \theta_b} \quad (3-4)$$

$$r_{ab,\text{TM}} = \frac{n_a \cos \theta_b - n_b \cos \theta_a}{n_a \cos \theta_b + n_b \cos \theta_a} \quad (3-5)$$

屈折角は、スネルの法則から、 $n_1 \sin \theta_1 = n_{\text{TE/TM}} \sin \theta_{2,\text{TE/TM}} = n_3 \sin \theta_3$  として計算した。そして、近似した薄膜の複屈折性から、屈折角が  $\theta_{2,\text{TE/TM}}$  の 2 通りで表される。薄膜多重干渉における反射光の電場  $E_j$ ,  $E_{j+1}$  間に生じる位相遅れを  $\alpha$  とした。真空中での波数を  $k_0 = 2\pi/\lambda$  とした。そして、TM 偏光において、単層薄膜で無反射  $R_{\text{thin,TM}} = 0$  となるのは、以下の 2 つの条件を満たす時である(便宜上、以降無反射条件 A, B と呼称)[81]。まず、無反射条件 A は、以下の式で表される。

$$\frac{n_1 n_3}{\cos \theta_1 \cos \theta_3} = \frac{n_{\text{TM}}^2}{\cos^2 \theta_{2,\text{TM}}} \quad (3-6)$$

$$\alpha = (2p + 1)\pi, \quad (p = 0, 1, 2 \dots) \quad (3-7)$$

次に、無反射条件 B は、以下の式で表される。

$$\tan \theta_1 = \frac{n_3}{n_1} \quad (3-8)$$

$$\alpha = 2(p + 1)\pi, \quad (p = 0, 1, 2 \dots) \quad (3-9)$$

式(3-6), (3-7)で表される無反射条件 A は、 $r_{12,\text{TM}} = r_{23,\text{TM}}$  かつ、位相差が奇数倍で弱め合う干渉によって導出される。次に、式(3-8), (3-9)で表される無反射条件 B は、 $r_{12,\text{TM}} = -r_{23,\text{TM}}$  かつ、位相差が偶数倍で強め合う干渉によって導出される。無反射条件 B では入射角  $\theta_1$  が、入射媒質と基板間のブリュースター角  $\theta_{\text{B13}} = \arctan(n_3/n_1)$  である必要がある。反対に条件 A では、式(3-6)を満たす入射角  $\theta_1$  が有効屈折率  $n_{\text{TM}}$  によって制御することができる。近似した薄膜の有効屈折率  $n_{\text{TM}}$  は、図 3-3 のように、格子部のフィリングファクタ  $f$  により決まるので、無反射を生じる入射角  $\theta_1$  を格子のパラメータを調整することで制御可能である。そして、式(3-6)は複数の解を持つが、現実的な屈折率 ( $n > 1$ ) となる解のみを考えた。そこで、式(3-6), (3-7)を満たす屈折率  $n_{\text{TM}}$ 、正規化した膜厚  $d/\lambda$  を  $(n_1, n_3, p) = (1.0, 1.5, 0)$  の条件下で計算したものを図 3-4 に示した。ブリュースター角  $\theta_{\text{B13}}$  以下の入射角では、有効屈折率  $n_{\text{TM}}$  は、 $n_1, n_3$  の間の値を取り、 $p = 0$  の条件下で正規化した膜厚は  $d < \lambda/4$  程度であることが分かる。特に、 $\theta_1 = 45^\circ$  で、無反射



条件 A を満たす屈折率は  $n_{\text{TM}} = 1.3025$ 、膜厚は  $d/\lambda = 0.2285$  のようになる。

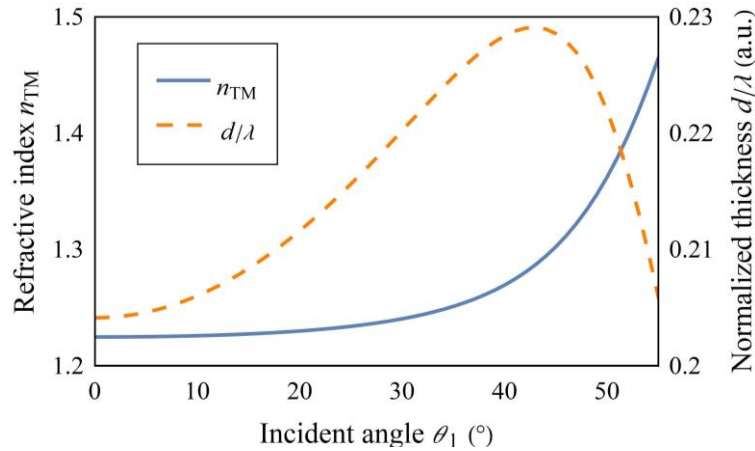


図 3-4 無反射条件 A を満たす屈折率  $n_{\text{TM}}$ 、膜厚  $d$

次に、導波モード共振によるサブ波長格子の反射光について述べる。本研究では、図 3-2(a)のような矩形プロファイルの格子について考える。領域 2 の格子層の有効屈折率  $n_{\text{TE/TM}}$  が、以下の式のように領域 1, 3 の屈折率より高いことで近似された薄膜は、スラブ導波路として振る舞う。

$$n_{\text{TE/TM}} > \max(n_1, n_3) \quad (3-10)$$

矩形格子が、回折格子として導波路へのカップラと導波路自体の両方として働くことで導波モード共振を生じる。そこで回折光の波数ベクトルが導波路の伝搬定数と一致する条件から、TE/TM 偏光での共振状態は以下の式で表される。

$$\tan(\kappa_m d - \nu\pi) = \frac{\kappa_m(\gamma_m + \delta_m)}{\kappa_m^2 - \gamma_m\delta_m} \quad (\text{TE polarization}) \quad (3-11)$$

$$\tan(\kappa_m d - \nu\pi) = \frac{n_{\text{TM}}^2 \kappa_m (n_3^2 \gamma_m + n_1^2 \delta_m)}{n_1^2 n_3^2 \kappa_m^2 - n_{\text{TM}}^4 \gamma_m \delta_m} \quad (\text{TM polarization}) \quad (3-12)$$

ここでは、 $\beta_m = k_0(n_{\text{TE/TM}} \sin\theta_1 - m\lambda/L)$ 、 $\kappa_m = (n_{\text{TE/TM}}^2 - \beta_m^2)^{1/2}$ 、 $\gamma_m = (\beta_m^2 - n_1^2 k_0^2)^{1/2}$ 、 $\delta_m = (\beta_m^2 - n_3^2 k_0^2)^{1/2}$  とする。式(3-11)、(3-12)で表される導波モード共振の共振条件は、回折モード  $m$  と導波モード  $\nu$  によって特徴づけられる。そして、一般的な特徴として  $n_1, n_2$  の差が大きいほど共振の帯域が広く、広い波長幅でほぼ 100%の反射率が得られる。

以上の有効媒質理論、薄膜多重干渉での無反射、導波モード共振による反射の 3 つの現象から SWGPBS の理論モデルを構築する。まず、TE/TM の一方の偏光に対しては、サブ波長格子は薄膜多重干渉により反射が抑えられる。もう一方の偏光に対しては、導波モード共振フィルタとして強い反射が生じる。そのため、透過偏光に対しては、図 3-4 のように有効屈折率は、 $n_1, n_3$  の中間となる屈折率である必要がある。反対

に、反射偏光に対しては、式(3-10)に示したように有効屈折率  $n_{TE/TM}$  は、周りの媒質の屈折率より高い必要がある。さらに、図 3-3 に示したように一般的には  $n_{TE} > n_{TM}$  となるため、上記の透過偏光/反射偏光でそれぞれ薄膜多重干渉、導波モード共振の条件を満たすためには、TM 偏光に対して薄膜多重干渉で無反射となり、TE 偏光に対して導波モード共振が生じる TE 反射/TM 透過型の SWGPBS を想定した。そして、TM 透過型の PBS を想定したことで、TM 偏光の無反射条件 A, B の 2 通りの設計自由度がある。これ以降便宜上、無反射条件 A/B から設計されるものを SWGPBS モデル A/B と呼称する。そこで、それぞれのモデルの特徴をここで整理する。まず、SWGPBS モデル A の長所としては、PBS として動作する入射角  $\theta_1$  をサブ波長格子の構造パラメータから設計可能である。さらに、面内で格子パラメータを変化させることで、平面波だけでなく、円筒波に対しても動作する PBS も設計可能だと考えられる。そして、式(3-7), (3-9)から  $p = 0$  での最小となる格子高さ  $d$  はモデル A で  $\sim \lambda/4$ 、モデル B で  $\sim \lambda/2$  となり、最小となる格子高さが低くなることが予想されるので、加工時のアスペクト比が低く加工が容易であり、薄い素子となることが予想される。次に、SWGPBS モデル B では、入射角が入射、基板媒質のブリュースター角での入射に固定される。しかし、格子層の有効屈折率  $n_{TM}$  自体に対する制限がない。そのため、ブリュースター窓の一部にサブ波長格子を造形することで、基板の一部に SWGPBS を造形するといったことも可能になる。

### 3.3.2 理論モデルに基づく SWGPBS 設計方法の提案

本節では、これまでに構築した SWGPBS の理論モデルを用いた設計方法を提案する。次節において、提案理論モデルに基づき設計した結果を電磁波解析で設計した厳密な最終設計値と比較することでモデルの妥当性を検証する。この理論的な設計手法により従来の全数値解析的な設計方法の問題点である物理的な見通しの悪さや計算コストの高さの解決が期待される。ここでは、格子のピッチ  $A$ 、フィリングファクタ  $f$ 、高さ  $d$  の 3 つを設計パラメータとして設計する。設計の前提条件として、波長  $\lambda$ 、各部の屈折率  $n_{1,2,3}$ 、入射角  $\theta_1$  を設定した。まず、入射角などの目的となる機能に従って、SWGPBS モデル A か B を選ぶ。まず、SWGPBS モデル A に関しては、有効屈折率  $n_{TE/TM}$  は 2 次有効媒質理論によって式(3-1), (3-2)のように計算し、無反射条件 A を記述する式(3-6)、導波モード共振を表す式(3-11)に代入する。そして、モードパラメータの組み合わせ  $(p, m, \nu)$  を適切に選び、同様に式(3-6), (3-7), (3-11)に代入する。その結果、3 つの方程式(3-6), (3-7), (3-11)を解くことで、未知の 3 つの設計パラメータ  $(A, f, d)$  を得ることができる。3 つの方程式は、超越関数であるため、解析的に解くことはできないが、数値的な根探索アルゴリズムによって 3 つの設計パラメータ  $(A, f, d)$  を得ることができる。ここで、不適切な前提条件(各部の屈折率やモード数)を選んだ場合、方程式の実数解が得られないため、自動的な条件を排除することができる。しかし、有効媒質理論による近似誤差が含まれているため、理論式から得たパラメータを厳密なベクトル電磁場解析を用いた最適化の初期値として用いる。本研究では、周期構造の解析に適した厳密波結合理論(Rigorous Coupled Wave Analysis, RCWA)シミュレーショ

ンを用いて偏光分離機能が最大となるように最適化を行い、理論設計値に含まれる EMT の近似誤差を修正した。

次に、SWGPPBS モデル B については、モデル A と異なり無反射条件の式(3-8)では有効屈折率に関係がないため、3 つの構造パラメータに対して、2 つの方程式(3-9)、(3-12)しか得られない。そのため、有効屈折率  $n_{TM}$  を任意の値に設計し、上記の 2 つの方程式と合わせ 3 つの条件式を設定する。ここでは、任意の値を設定する必要があるが、その後の RCWA シミュレーションによって最適化を行うため、ここでの有効屈折率の任意の値への設定は、最適化の初期値を得るためには問題ないと考えられる。以上の様に、理論的に得られる構造パラメータを初期値として 3 パラメータの最適化を行うことで従来からの全数値最適化による設計と異なり、低計算コストで物理メカニズムが明らかになった上で設計が可能となる。そのため、全数値最適化による設計方法と同じ結果が得られるとしても、プロセスが明確になり、計算コストの低減などのメリットが有る。

### 3.4 RCWA 解析による理論モデルの妥当性検証

本節では、提案した理論モデルの妥当性を検証するために、理論モデルを用いた設計した 2 つの SWGPBS に対して、厳密な設計値が得られる RCWA シミュレーションで最適化された構造との比較を行った。提案した理論モデルの妥当性を確認する為に以下の 2 点を確認した。

#### 【提案モデルの検証方法】

- ① 提案したモデルから得られる理論的設計パラメータと理論設計値を初期値とした数値最適化によって得られた最適化設計値を比較する。もし、提案したモデルが妥当であれば、EMT によって生じる誤差の範囲内で理論設計値と最適化設計値が一致すると考えられる。
- ② 理論モデルでは、偏光分離機能を最適化したサブ波長構造は、透過偏光に対して薄膜多重の原理で透過光が最大化(反射率が最小化)していると仮定した。そこで、理想的な薄膜と設計した SWGPBS の反射率を比較することで、光学応答の妥当性を確認した。もし、提案したモデルが妥当であれば、最適化したサブ波長格子の透過偏光に対する光学特性は、理想的な薄膜と定性的に一致すると予想できる。

検証のために設計した SWGPBS はガラス基板( $n_3 = 1.5$ )、空気を入射媒質( $n_1 = 1.0$ )として入射波長は  $\lambda = 600 \text{ nm}$  とした。そして、2 つのモデルに対して、表 3-1 の様に各部の屈折率を設定し、SWGPPBS モデル A, B に対してそれぞれデザイン A, B として構造を設計した。デザイン A, B に対してそれぞれ入射角  $\theta_1$  を  $45, 56.31^\circ$  とし、格子部の屈折率を 2.2, 1.8 とした。デザイン A に対しては、式(3-6)から有効屈折率  $n_{TM} = 1.3025$  と計算される。デザイン B については、 $n_{TM} = 1.3$  と設定し設計を進めた。次に、モードパラメータは  $(p, m, v) = (0, 1, 0)$  とし、1 次回折光が導波モード TE0 モー

ドに結合すると設定した。次に、前節で述べたように理論的に得られた構造パラメータと理論的解を初期値として RCWA シミュレーションで最適化した結果を表 3-2 に示した。最適化は、TE/TM 偏光の反射率  $R_{TE/TM}$  の差  $R_{TE} - R_{TM}$  が最大となるように、パラメータを計画した。そして、偏光分離機能を評価する為に消光比を  $EXT = 10 \log_{10}(R_{TE}/R_{TM})$  として計算した。

SWGPBS モデル A を使ったデザイン A について、理論的に計算した構造パラメータでは、消光比 13.9 dB とある程度の偏光分離機能を持っていることが分かるが、最適化することで、消光比 52.3 dB と高い偏光分離機能を示すことが分かる。理論値と最適化した構造パラメータでは、フィリングファクタが 0.2 程度の誤差を持っているものの、格子のピッチ  $A$ 、高さ  $d$  は 5 nm 以下の精度で計算されており、妥当性検証項目①を満たしていることが分かる。さらに、これまでの SWGPBS は垂直入射の条件下に限定されており、消光比 49.5 dB 程度の SWGPBS も報告されているが、斜入射  $\theta_1 = 45^\circ$  でも同程度の消光比が得られることが、この結果から初めてわかった。次に、SWGPBS モデル B を用いたデザイン B でも、理論設計値と最適化設計値のフィリングファクタの差が大きいものの、理論値を初期値として最適化に成功した。モデル B においても消光比 44.9 dB という高い偏光分離機能が得られることが明らかになった。更に、に示した様に、TE 偏光では、設計した導波モード TE0 が生じていることが分かる。TM 偏光では、格子の側面での散乱光が比較的強く表れるなど、理想的な薄膜との誤差が生じていることも分かる。さらに、サブ波長格子を薄膜に近似した理論モデルの妥当性を検証するために、格子の  $f, A$  を表 3-2 に示した最適化設計値に対して、膜厚  $d$  を変えたときの反射率を RCWA シミュレーションで計算した。そして、理想的な薄膜での薄膜多重干渉によって計算される反射率と比較したものを図 3-6 に示す。定量的な値は異なっているものの、反射率が極小値を取る膜厚  $d$  は良く一致していることが分かる。このことから、サブ波長格子は、理想的な薄膜との反射率の定量的な誤差があるものの、膜厚を変えたときの定性的な反射率変化、膜厚に対する挙動は一致しており、薄膜多重干渉を想定した理論モデルの妥当性検証項目②を満たしていると考えられる。以上の結果から提案した理論モデルの妥当性を、理論設計値と最適化設計値の一致、薄膜との光学応答の一致の 2 点から確認した。

表 3-1 SWGPBS のデザイン A,B のパラメータ

	$\theta_1$ (°)	$n_1$	$n_2$	$n_3$	$n_{TM}$
Design A	45	1.0	2.2	1.5	1.30
Design B	56.31	1.0	1.8	1.5	1.30

表 3-2 SWGPBS の設計, 解析パラメータ比較

		$A$ (nm)	$f$	$d$ (nm)	$R_{TE}$	$R_{TM}$	EXT
Design A	理論設計値	263	0.41	138	0.37	$1.50 \cdot 10^{-2}$	13.9
	最適化設計値	268	0.60	138	1.00	$5.93 \cdot 10^{-6}$	52.3
Design B	理論設計値	257	0.51	300	0.13	$1.80 \cdot 10^{-2}$	8.49
	最適化設計値	255	0.74	340	1.00	$3.25 \cdot 10^{-5}$	44.9

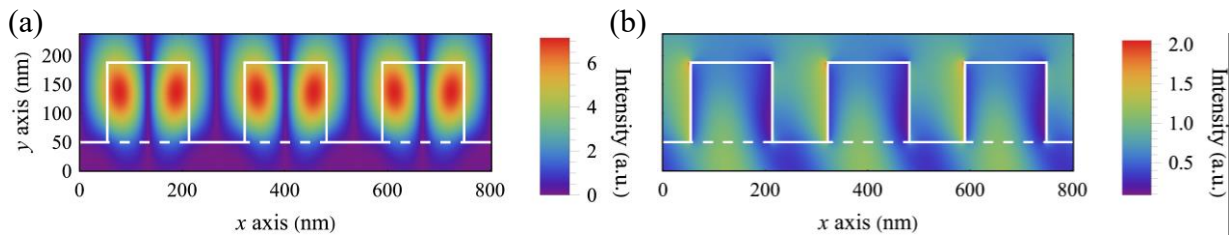


図 3-5 格子内部の強度分布 (a)TE 偏光 (b)TM 偏光

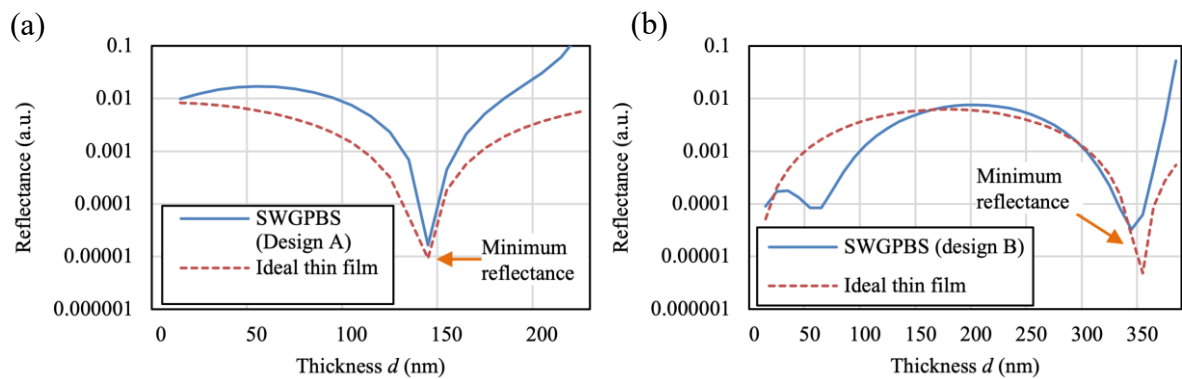


図 3-6 理想的な薄膜と設計した SWGPBS の反射率比較 (a)Design A (b)Design B

次に、提案手法で設計された SWGPBS の偏光分離機能を評価するために、入射波長、入射角を変化させたときの消光比の変化を図 3-7 に示した. SWGPBS のデザイン A では、波長、入射角 $(\lambda, \theta_1) = (585 \text{ nm}, 47.5^\circ)$ で最大消光比 63.9 dB を示す. 構造パラメータを離散的な値で最適化したので、設計波長、入射角とずれた値で最大値を示している. 消光比が 30, 40 dB を超える波長、入射角帯域を表 3-3 にまとめる. SWGPBS デザイン A では、波長幅 30 nm、入射角  $1.5^\circ$  の範囲で高い消光比  $\text{EXT} > 40 \text{ dB}$  が得られることがわかった. SWGPBS デザイン B では、TM 偏光での回折により消光比が負の値を取る条件がある. そのため、上記の理論モデルで考慮できていない TM 偏光の回折を避ける様に設計することで、より広い帯域で PBS として動作することが分かる.

最後に、提案した理論モデルに関する、制限について述べる必要がある. まず、前述の通り提案した理論モデルでは、有効媒質理論によってサブ波長格子を薄膜に近似しているため、近似による誤差が含まれている. 主に、有効屈折率の計算誤差と理想的な薄膜との誤差の 2 つの要因が考えられる. まず、1 つ目の有効屈折率の計算誤差とは、有効媒質理論の結果と、電磁波解析などで得られる厳密な有効屈折率との誤差である. 表表 3-2 に示されている理論値と最適化されたフィリングファクタの差などが、この種類の誤差だと考えられる. 2 つ目の誤差は、理想的な薄膜と実際のサブ波長格子の光学特性の誤差である. 提案した理論モデルでは、反射率をフレネルの反射係数、スネルの法則などから求めているため、理想的な薄膜からの誤差も影響してくる. 図 3-5(b)における格子側面での反射や図 3-6 における理論値との誤差などがこの

種類の誤差だと考えられる。さらに、サブ波長格子のピッチが波長に対して大きく、入射側屈折率  $n_1$ 、格子屈折率  $n_2$  の差が大きいほど有効屈折率の計算誤差が大きくなることが知られている[15]。そのため、格子ピッチが広く、屈折率のコントラストが大きい条件で設計する場合は、理論モデルでの計算誤差が大きくなる可能性がある。しかし、表 3-3 のように最適化されたパラメータと理論値との差はあるものの、最適化のための初期値としては十分な精度で計算可能だと考えられる。さらに、提案した物理メカニズムの妥当性が検証されたことで、今後性能の改善や2層薄膜モデルへの応用が期待される[77]。そして、全数値最適化による従来の設計方法に比べ、物理メカニズムが明らかで、低計算コストとなる理論モデルに基づいた局所最適化による設計方法の妥当性を実証できた。

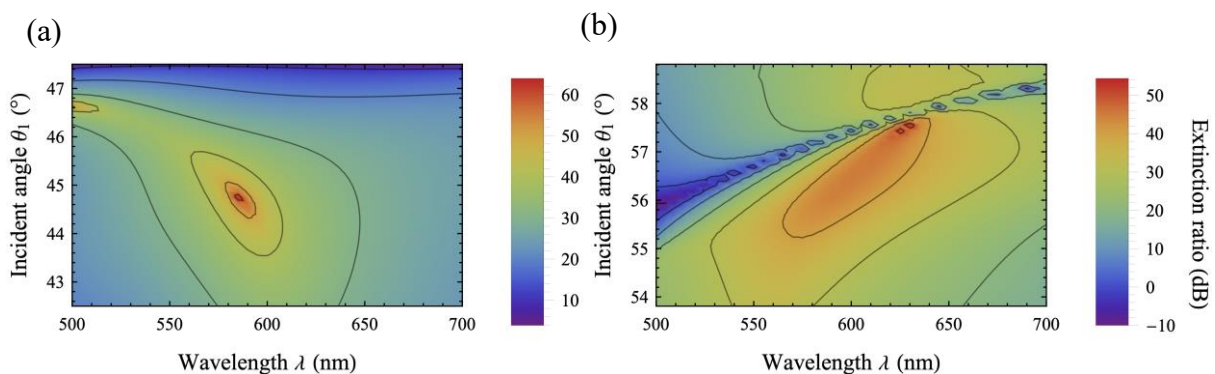


図 3-7 入射波長  $\lambda$ 、入射角  $\theta$  変化が消光比に与える影響 (a)Design A (b)Design B

表 3-3 設計した SWGPBS の動作帯域

	EXT (dB)	Spectral bandwidth (nm)	Angular bandwidth (°)
Design A	>30	~100	~5
	>40	~30	~1.5
Design B	>30	~100	~2.75
	>40	~40	~1.25

### 3.5 干渉リソグラフィーによる加工検討

最後に、前節で設計した SWGPBS デザインの干渉リソグラフィーによる加工について検討する。先行研究においては、電子線リソグラフィーでの造形しか報告されていないため、干渉リソグラフィーによる SWGPBS 加工時の問題点などは殆ど明らかでない。具体的には、①格子周期②膜厚③フィリングファクタ④断面形状の4つの構造パラメータをどの程度高精度に加工する必要があるのか、加工精度の改善方法があるかを考察する。そこで、RCWA シミュレーションを用いて各パラメータの加工誤差が、光学特性にどのような影響があるかを解析した。

## 【構造パラメータの検討】

## ① 格子周期

まず，格子周期  $A$  の誤差が光学特性，特に偏光分離機能の消光比にどのような影響があるかを図 3-8 に示した．格子周期  $A$  が変化することで，導波モード共振のピーク波長がシフトするため，設計波長で共振が生じなくなるなど消光比へ大きな影響があることがわかった．特に，SWGPBS デザイン A, B の何れにおいても，数 nm の格子周期の誤差で，消光比が~50 dB 程度から 10-30 dB 程度まで低下してしまう事がわかった．そのため，格子部の屈折率  $n_2$  を高くし，共振の帯域を広げることで共振波長のシフトにロバストな設計の工夫が必要だと考えられる[82]．また，格子の加工精度を上げる方法として，設計値の倍の周期の回折格子を参照用格子として用いる干渉リソグラフィーが有効だと考えられる[33]．露光する干渉縞の周期と参照用の回折格子のモアレ縞を計測することで，露光する干渉縞の周期を高精度に制御可能になる．

## ② 格子の高さ，膜厚

次に，格子の高さ  $d$  を変化させたグラフを図 3-8 に示すが，膜厚による導波モード共振波長の変化なども生じることがデザイン A では見られる．また，40-50 dB 程度の高い消光比を得るためには，設計値に対して数 nm の精度で格子高さを加工する必要があることがわかった．ただ，膜厚の制御に関しては，干渉リソグラフィーの露光工程だけの問題ではなく，高屈折率材料の成膜，レジストのコート，現像，エッチングなどの各工程において高精度にプロセスを管理する必要がある．また，本章で設計した SWGPBS は，格子部のアスペクト比 0.85, 1.80 と，特にデザイン B では高アスペクト比の加工が必要となる．先行研究において，光源波長 405 nm で干渉縞周期 360 nm, 線幅 160 nm, 高さ 360 nm の高アスペクト比 2.25 といった高アスペクト比の加工例も報告されている[84]．そのため，適切なエッチング方法と組み合わせることで，アスペクト比 2 に近い形状も十分加工可能だと考えられる．

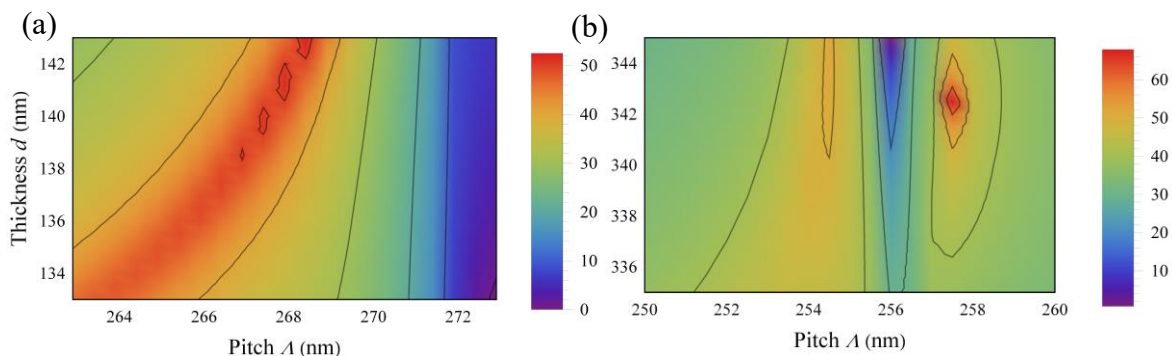


図 3-8 格子周期  $A$ ，膜厚  $d$  の変化による消光比の変化 (a)Design A(b)Design B

③, ④フィリングファクタ, 断面形状

干渉リソグラフィーにおいて, 2 章でも述べたように感度の高いレジストを用いることで加工形状を矩形に近づけることが可能だが, 一般的には図 3-9 に示した様にテーパ形状になることが多い. その結果, 格子部の占有率フィリングファクタの誤差も同じように生じ易いと考えられる. そこで, フィリングファクタの誤差  $\Delta f$ , 格子のテーパ度合いを表す  $\Delta w$  を図 3-9 のように設定した. そこで,  $\Delta f$ ,  $\Delta w$  を変化させた際の消光比 EXT の変化を図 3-10 示す. これらの結果から, フィリングファクタのエラーが数%あると消光比が 10 dB 程度下がり, テーパー係数  $\Delta w$  も, 2%程度の誤差(テーパ, 逆テーパ共に)で消光比が 10 dB 程度低下してしまう. 特に側壁が傾斜し, テーパーがかかることで消光比が低下する事が明らかになった為, 加工材料やエッチング方法などを適切に選ぶ必要がある. また, Design B には, グラフの右上に TM 偏光の回折によって消光比 EXT が 0 に近い部分がある. そのため, 構造パラメータのエラーによって TM 回折が生じて急激に消光比が低下する可能性もあるため, 他の屈折率  $n_2$  で設計する, 他のモードを選ぶなど工夫が必要である.

これらの結果を, 市販の PBS と同程度である 40 dB 以上の消光比を達成する為に許容される誤差を表 3-4 に示した. いずれの設計値に対しても, 寸法で数 nm 以下, フィリングファクタとテーパ係数に関しては数%以下の高精度加工の必要性が明らかになった.

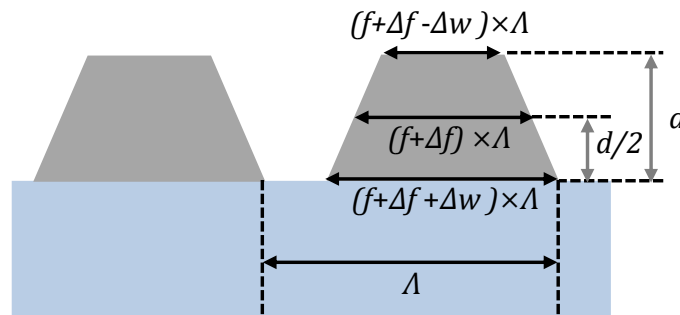


図 3-9 加工誤差を想定したテーパ格子の模式図

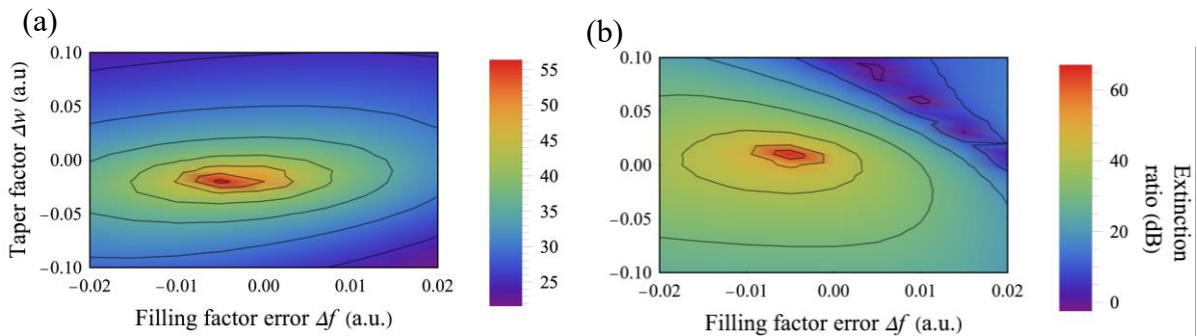


図 3-10 形状誤差  $\Delta f$ ,  $\Delta w$  が消光比に与える影響 (a) Design A (b) Design B



表 3-4 消光比 40dB 以上を目指した SWGPBS の許容誤差

	ピッチ誤差 $\Delta A$	高さ誤差 $\Delta d$	フィリングファクタ 誤差 $\Delta f$	テーパ係数 $\Delta w$
Design A 許容誤差	< ~2 nm	< ~6 nm	< ~0.01	< ~0.02
Design B 許容誤差	< ~2 nm	< ~7 nm	< ~0.01	< ~0.02

### 3.6 結言

本章では、サブ波長格子による偏光ビームスプリッタ (SWGPBS) の応用の重要性とその問題点を述べた。特に、先行研究においては導波モード共振による反射光の記述と数値最適化により設計され、透過光の物理的なメカニズムが不明瞭であった。そのため、各構造パラメータの光学特性への影響や原理的な制限等が明らかでなかった。さらに、先行研究においては、電子線リソグラフィーでの加工しか報告されていなかったが、大面積での加工やコストなどの問題から、低コストで大面積での加工が可能な干渉リソグラフィーの適用が臨まれていた。そこで、理論モデルを構築し、物理メカニズムを明らかにすることを目指した。さらに、構造パラメータの影響が明らかになることで、干渉リソグラフィーの加工への適用性を検討した。

まず、SWGPBS に対して、有効媒質理論、薄膜多重干渉、導波モード共振を組み合わせた理論モデルを提案した。そして、2つの無反射条件 A, B に対して、それぞれの条件に対して TE 偏光反射/TM 偏光透過型の SWGPBS モデルの妥当性を検証した。理論式により得られた構造パラメータには、理論的な近似による誤差が生じており、局所最適化と組み合わせることで、消光比  $\text{EXT} > 45\text{dB}$  を超える高い消光比が得られた。また、SWGPBS モデル A では、理論値と最適化した結果は、フィリングファクタの誤差が大きかったものの、周期や膜厚は数 nm 程度の精度で理論値が得られた。モデル B では、理論値において、格子の有効屈折率  $n_{\text{TM}}$  を任意に決める必要があったものの、最適化によって、十分高い消光比が得られた。最後に、干渉リソグラフィーによる SWGPBS の加工への適用性を検討した。特に、①格子周期②膜厚③フィリングファクタと④断面形状の4つの構造パラメータによる影響があると考えた。40 dB を超えた消光比を達成するには、①格子周期、②膜厚を誤差 ~7 nm 以下となるような高精度加工が必要である。また、③フィリングファクタと④断面形状については、断面プロファイルやフィリングファクタは設計値に対して数% 程度の誤差で加工する比強グアある。そのため、高感度なレジスト、加工条件の最適化、エッチング時の側壁の形状制御などを行うことで、干渉リソグラフィーによるサブ波長偏光フィルタの大面積で安価な加工が実現すると考えられる。



# 第4章 二重周期回折格子のスカラ 一回折理論モデルの構築

---

4.1 緒言 .....	48
4.2 二重周期回折格子の現状と課題 .....	48
4.3 二重周期回折格子のスカラ一回折理論モデルの構築 .....	50
4.3.1 単一周周期回折格子のスカラ一回折理論 .....	50
4.3.2 二重周期回折格子のスカラ一回折理論 .....	55
4.4 回折特性計測による理論モデルの検証 .....	59
4.4.1 二重周期回折格子造形装置と回折特性計測装置の開発 .....	59
4.4.2 うなりを伴う二重周期回折格子の造形, 回折特性計測結果 .....	61
4.5 結言 .....	65

---

## 4.1 緒言

本章と次章では、本論文で挙げた2つ目の研究課題である「二重周期回折格子のモデル構築・プロセス制御方法の開発」を行った。特に、多重周期構造の最も基本的かつ重要な構造として、二重周期回折格子に着目した。特に、二重周期回折格子の一般的形状の回折特性を明らかにする理論モデルの研究例はほとんど無かった為、スカラー回折理論を用いた二重周期回折格子の理論モデルの構築を行った。さらに、構築した理論モデルを実験的に検証するために、回転ロイドミラー光学系を用いた多重露光干渉リソグラフィにより二重周期回折格子の造形を行い、回折特性を実験的に計測した。

## 4.2 二重周期回折格子の現状と課題

まず、二重周期回折格子に関する先行研究や応用例を整理し、その重要性や課題を明らかにする。二重周期回折格子は、従来の単一周周期回折格子に置き換わり、様々なアプリケーションの波長多重化や光学特性の改善、多機能化などが期待される重要な次世代光学素子の一つである。二重周期格子構造は大きく分けてモデル①「うなりを伴う二重周期回折格子」、モデル②「整数倍周期を重ね合わせた回折格子」、の大きく2つの構造に分けて研究が行われてきた。

まず1つ目のモデル①うなりを伴う二重周期回折格子は、図 4-1(a)に示したように、わずかに周期の異なる正弦波を重ね合わせたような構造である。わずかに異なる周期を足し合わせた際に生じるうなりが特徴的であり、2つの周期に由来する回折特性を示すことが明らかになっている[29]。近年では、回折格子によって励起される表面プラズモン共鳴においても、2つのわずかに異なる周期によって多波長での共振を同時に励起できることなども実証されている[22]。これらの特性から、従来の単一周周期回

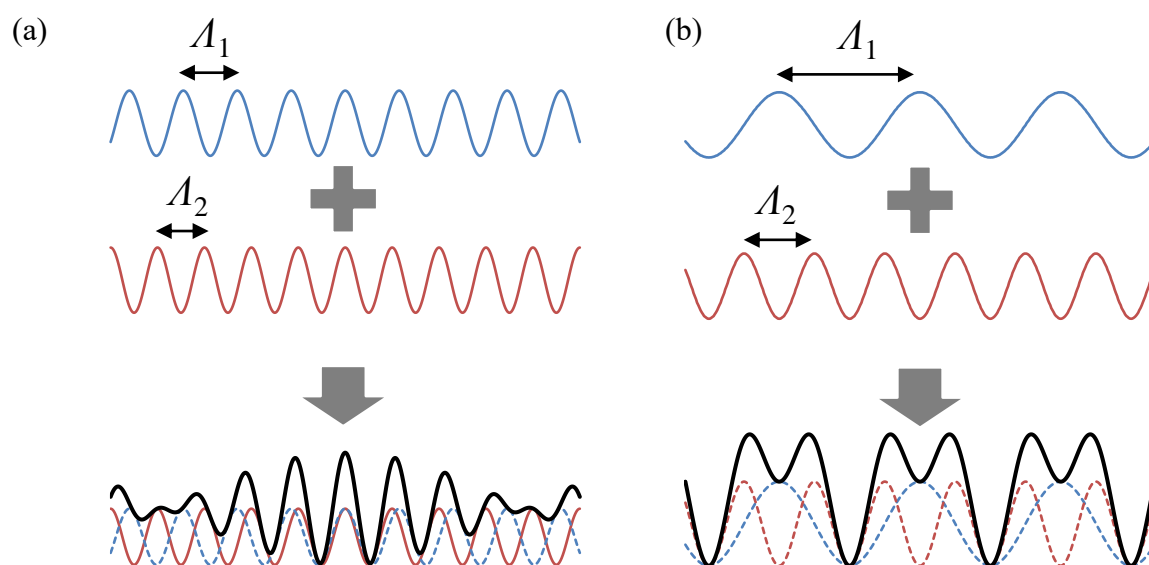


図 4-1 (a)うなりを伴う二重周期回折格子の模式図 (b)整数倍周期を重ね合わせた回折格子

折素子に変わり、2波長発振レーザーの外部共振器[29]、表面プラズモン増強赤外吸収分光法[22]などの応用が期待されている。

次に、モデル②整数倍周期を重ね合わせた回折格子は、図 4-1(b)のように周期が整数倍となる2つの構造を重ね合わせた形状を持つ。一例として、鋸歯状関数をフーリエ級数展開した関数の第2項までを考慮し、1:2となる整数倍の干渉縞を重ね合わせた非対称な正弦波プロファイルを持つ「ホログラフィックブレード回折格子」による一次回折効率の向上が報告されている[33]。干渉リソグラフィによって造形することで、機械刻印式の回折格子において、運動誤差によって生じるゴーストの低減などが期待される。また、振幅変調型位相格子においても、特定の回折次数の効率の向上や低減といった自在な回折特性制御が報告されている[20]。さらに、回折格子を表面プラズモン共鳴のカプラー、導波モード共振フィルタとして用いる研究もあり、近年の新たな物理メカニズムやアプリケーションと組み合わせることでより高度な光学素子が期待されている。しかし、ベクトル解析による数値解析が主流であり、理論的に回折特性を説明するモデルはこれまで殆ど報告がない。

本節で説明した二重周期格子構造に関する主な先行研究を表 4-1 にまとめた。1960年代に Burch らによって干渉リソグラフィによる単一周期の回折格子の造形[85]が初めて報告されて以来、1980年代頃から最先端の微細加工技術として多重露光、多光束干渉リソグラフィが注目され、主に回折格子の回折効率の制御を目的として様々な研究が行われていた。同時期に回折格子を用いた表面プラズモン共鳴の励起[86]や導波モード共振[15]といった共振現象の発見により、回折格子以外への微細周期構造の応用は加速していった。この結果、1970年から2000年ころは高効率回折格子として二重周期格子構造が注目されていたが、近年では回折格子以外の用途として、表 4-1 に示したように SPP や GMR などの他の光学現象との組み合わせや構造照明などの応用展開が提案されたことで、二重周期格子構造が再度注目を集めている。そのため、これら光学現象や応用事例の基礎となっている二重周期回折格子の理論モデルへの注目が再度集まっている。

表 4-1 二重周期格子構造の先行研究

出版年	著者	断面形状	構造	現象	応用	参考文献
1979	M. Breidne	正弦波	②整数倍	回折	回折効率制御	[33]
2002	A.A. Freschi	正弦波	②整数倍	回折	回折効率制御	[87]
2004	N. McCarthy	正弦波	①うなり	回折	2波長発振レーザー	[29]
2007	D. C. Skigin	矩形	②整数倍	回折	回折効率制御	[34]
2015	A.C. Hillier	正弦波	①うなり	SPP	SPP 増強赤外吸収分光	[88]
2020	R. magnusson	矩形	②整数倍	GMR	メタサーフェス	[74]
2020	C. Zhou	正弦波	①うなり	回折	ステレオカメラ用構造照明	[89]
2020	D. J. Norris	正弦波	①うなり	SPP	バイオセンサ, レーザー	[23]

二重周期回折格子の造形や応用を目指した先行研究における課題としては、上述の2つの二重周期回折格子モデルがそれぞれ別の構造として扱われており、2つのモデルを統一的に扱える理論モデルが存在しないことである。モデル②「整数倍周期の正弦波を重ね合わせた回折格子」に対しては、周期構造に対して厳密な光学特性が計算可能なRCWA解析などのベクトル電磁場シミュレーションによる数値解析が主流である。しかし、モデル①「うなりを伴う二重周期回折格子」では、うなりの周期がもとの正弦波の周期に対して非常に大きくなるため、上記のRCWA解析で扱うには計算コストが莫大になってしまう。そこで、McCarthyらによって、限定的な「うなりを伴う二重周期回折格子」に適用可能なスカラー回折理論モデルが提案、実証されている[29]。しかし、簡略化した対称性の良い形状への定式化しかされておらず、モデル②の形状を含めた形での一般的な二重周期回折格子への適用は未だなされていない。また、二重周期回折格子による表面プラズモン共鳴の励起や導波モード共振フィルタへの適用などにおいては、従来の回折効率を計算するだけの数値解析的なアプローチではなく、回折光の物理的な理解が重要だと考えられる。そのため、光学応答の定量性においては数値解析に劣るものの、理論モデルによる物理的な挙動の理解や記述は、新しい二重、多重周期格子構造のアプリケーションの開発に必要なだと考えた。

そこで本研究では、上記のモチベーションから、一般的な二重周期回折格子の形状に対して、スカラー回折理論を用いた二重周期回折格子の一般的な理論モデルの構築と検証を行った。具体的には、スカラー波動光学とFraunhofer近似を用いた回折理論によって、一般的な二重周期回折格子の理論モデル化を行い、上述の2つの構造における回折特性の違いの物理的なメカニズムを明らかにする。そして、実際に造形した二重周期回折格子の回折特性を計測することで、構築した理論の実証を行った。さらに、構築した理論モデルを用いて、第5章で多重露光干渉リソグラフィの加工プロセス制御、モニタリング方法を提案、実証した。

## 4.3 二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルの構築

本節では、干渉リソグラフィでの加工が期待される反射型ホログラフィック二重周期回折格子の一般的な理論モデルの構築を行った。まずは、単一周周期回折格子にスカラー回折理論を適用した際の回折特性を説明し、二重周期構造へと展開した。

### 4.3.1 単一周周期回折格子のスカラー回折理論

まず、一般的な回折格子は、回折光の出射方向で透過/反射型、入射光の電場への透過関数において振幅/位相を変調するかで振幅/位相型、変調時の関数が、周期的な矩形/正弦波/鋸歯関数により、ラメラ/ホログラフィック/ブレード回折格子と分類される。目的とする光学特性により、適切な回折格子を採用する必要があるが、本研究では干渉リソグラフィによる加工が行われる反射型ホログラフィック位相回折格子(図4-2(a))に着目した。よって、以降の単一周周期、二重周期回折格子は基本的には反射型ホログラフィック位相回折格子を想定する。また、光学的に異方性が小さい構造に適用可能なスカラー波動光学に基づき、Fraunhofer近似を用いて回折格子の光学特性を

記述する[90]. スカラー回折理論においては, 位相の変調量, 入射角, 回折角の増加に伴い, 導出した理論的な回折効率と実際の光学応答の誤差が大きくなる事が予想されるため, より厳密に光学応答の解析が可能なベクトル電磁場解析シミュレーションと比較することで, スカラー回折理論の誤差が小さい適用範囲を議論する.

導出を行うホログラフィック回折格子の模式図を図 4-2(a)に示した. 入射角は  $\theta$ ,  $m$  次回折光の回折角は  $\rho_m$ , 格子の高さは  $h_1$ , 波数は  $k_0 = 2\pi/\lambda$  とした. 回折格子のピッチは  $\Lambda_1$ , 入射光は波長  $\lambda$  の平面波として, 空気中(屈折率  $n_0 = 1$ )からの入射を前提とした. 次に, Fraunhofer 近似が適用可能な近軸光線に対して, 回折格子によって反射光に生じる位相分布  $\Delta\alpha(x)$  は以下の様に表せる.

$$\Delta\alpha(x) = \frac{2\pi}{\lambda} h_1 \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right) \quad (4-1)$$

その結果, 反射光に対しては構造の高さに応じた周期的な位相遅れが生じるため, 入射光の電場  $E_0$  と反射光の電場  $E_r$  は以下のように表される.

$$E_0 = A_0 \exp\left(-i \frac{2\pi}{\lambda} x \sin \theta\right) \quad (4-2)$$

$$\begin{aligned} E_r &= -R E_0 \exp[-i\Delta\alpha(x)] \\ &= -R A_0 \exp\left(-i \frac{2\pi}{\lambda} x \sin \theta\right) \exp\left[-i \frac{2\pi h_1}{\lambda} \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right)\right] \end{aligned} \quad (4-3)$$

ここで,  $R$  は反射率を表し, 面内では均一であると仮定する. 次に, 以下に示す Jacobi-Anger expansion を用いて, 反射光を回折光の重ね合わせへと展開する.

$$\exp(ia \sin x) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_n(a) \exp(imx) \quad (4-4)$$

$$\begin{aligned} E_r &= -R A_0 \exp\left(-i \frac{2\pi}{\lambda} x \sin \theta\right) \exp\left[-i \frac{2\pi h_1}{\lambda} \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right)\right] \\ &= -R A_0 \exp\left(-i \frac{2\pi}{\lambda} x \sin \theta\right) \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_n(\xi) \exp\left(-i \frac{2\pi m x}{\Lambda_1}\right) \\ &= -R A_0 \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_n(\xi) \exp[-i(k \sin \theta x - m K_1)x] \end{aligned} \quad (4-5)$$

ここでは,  $\xi = 2\pi h_1/\lambda$ ,  $K_1 = 2\pi/\Lambda_1$ , である. そして, 反射場  $E_r$  は以下の様に計算され,  $m$  次の回折光の回折角  $\rho_m$  と回折効率  $G_m$  は次のように表される

$$E_r = \sum_{m=-\infty}^{\infty} R A_0 J_m(\xi) \exp\left(-i \frac{2\pi}{\lambda} x \sin \rho_m\right) \quad (4-6)$$

$$\rho_m = \arcsin\left(\frac{m\lambda}{\Lambda_1} - \theta\right) \quad (4-7)$$

$$G_m = |R J_m(\xi)|^2 \quad (4-8)$$

振幅反射率  $R = 1$ ，入射角  $\theta = 0^\circ$  として，2 次回折光までの回折効率を式(4-8)から計算した結果を図 4-2(b)に示す．格子高さ  $h$  を表す  $\xi$  を適切に設計することで，特定の次数の回折効率を最大化できる．図 4-2(b)からわかるように，1 次回折光では，反射率  $R = 1.0$  を仮定すると， $h_1 = 0.147\lambda$  で  $G_1 = 0.339$ ，2 次回折光では， $h = 0.243\lambda_1$  で  $G_2 = 0.237$  となる．また，一般的な 1 次回折率を最大化させるような設計において，1 次回折効率  $G_1$  が最大化するような正弦波の高さ  $h_1$  の ( $h_1 < 0.15\lambda$ ) において，高次回折光の寄与を式(4-8)から計算すると，3 次回折光  $G_3 < 0.012$ ，4 次回折光  $G_4 < 7.5 \cdot 10^{-4}$  程度と全体の入射エネルギーに対して占める高次回折効率の割合は，ベッセル関数に従い急激に減少する．

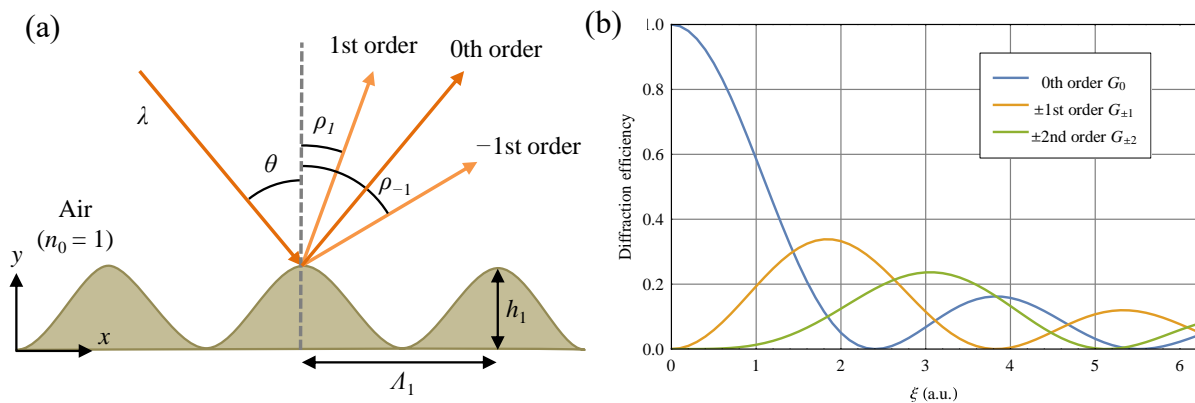


図 4-2 単一周周期反射型正弦波位相回折格子 (a)模式図 (b)回折効率

次に，スカラー回折理論では，光学的に異方性が少ない(偏光による差がない)，入射光，回折光が光軸( $\theta = 0^\circ$ )に対して近軸で伝搬するといった仮定を行う．そのため，位相変調量  $\Delta\alpha (= 2\pi h/\lambda)$ ，入射角  $\theta$ ，回折角  $\rho_m$  の大きさに応じて誤差が生じることが知られているため，より厳密な電磁場解析が可能な RCWA シミュレーションでの解析結果との比較により，スカラー回折理論の適用範囲を検討した．まずは，回折角  $\rho_m$  の影響を明らかにするために，垂直入射  $\theta = 0^\circ$  時に完全反射を生じる高さ  $h$ ，周期  $\Lambda$  の正弦波プロファイルの回折格子へ S 偏光の光が入射した際の，0， $\pm 1$  次光の回折効率を解析した．完全反射表面を解析的に再現するために，構造の屈折率は  $n = 0-10i$  とした．また，RCWA シミュレーションは，cybernet 社の Rsoft DiffractMod を用いて，CPU(Core i7-2600 3.4 GHz)のパソコンを用いて計算を行った．格子ピッチが  $\Lambda = 2.5\lambda$  で，断面形状の分割数を決める計算パラメータハーモニクスを変化させたときの，回折効率と計算時間の変化を図 4-3 に示す．RCWA 解析では，周期構造の屈折率分布をフーリエ級数で表すことで数値解析を行う [91]．このときのフーリエ級数展開で足し合わせる最大次数が Harmonics と呼ばれ，解析領域に対して十分大きな Harmonics を取ることが正確な回折効率を得るために必要となる．図 4-3(a)に解析結果の一例を示したが，0，1 次回折効率のいずれも Harmonics の上昇とともに回折効率が収束している．本節に



おいては、格子ピッチ  $\Lambda=2.5\lambda$  に対して、十分回折効率の収束している **Harmonics = 40** での解析を行った。また、**Harmonics** の増加に伴い、計算コストはべき関数に従い上昇することが知られており、図 4-3(b)には、1 つの入射条件での解析にかかる時間と **Harmonics = 10** を除いた点でフィッティングを行った近似曲線を示した。計算時間は、**Harmonics** のおよそ 2.3 乗に従って増加するため、うなりの周期が計測波長の 20 倍となるうなりを伴うような構造において、**Harmonics = 320** での計算時間は 28 分程度になると推定される。そのため、うなりを伴う二重周期回折格子では、解析領域の増加に伴い計算領域も膨大になり、少なくとも一般的な計算機を使って、うなりを伴う構造を RCWA シミュレーションで網羅的に解析することは現実的には困難である。そのため、理論的なモデルによる理論的な計算の必要性が確認できた。

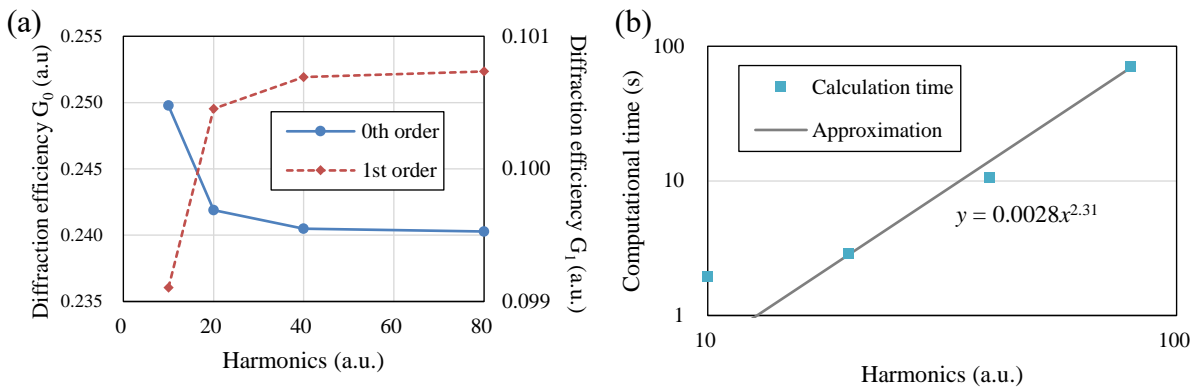


図 4-3 解析パラメータ Harmonics の解析に与える影響 (a)回折効率  $G_{0,1}$  (b)計算時間

まず、図 4-4 に、格子ピッチ  $\Lambda$  を変化させたときの回折効率  $G_0, G_{\pm 1}$  の挙動を示した。波長で正規化した格子ピッチ  $\Lambda/\lambda = 2$  となり回折角が大きくなるような条件下では、理論値と解析値の大きな誤差が見られる。しかし、格子ピッチ  $\Lambda/\lambda$  が大きくなるに従って理論値と誤差が小さくなることを確認できる。次に、理論値とベクトル解析値の誤差の絶対値が格子ピッチ  $\Lambda$  に対してどのように変化するかを図 4-5 に示した。その結果から、0,  $\pm 1$  次光のいずれにおいても、ピッチ  $\Lambda/\lambda$  が大きくなるに従って、

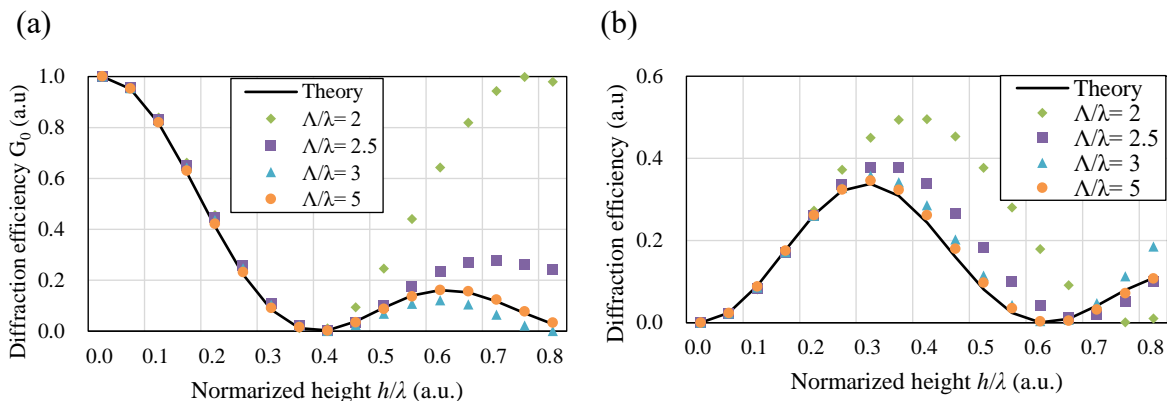


図 4-4 格子ピッチ  $\Lambda$  による回折効率  $G_0, G_{\pm 1}$  への影響 ( $\theta = 0^\circ$ ) (a)0 次回折光 (b) $\pm 1$  次回折光

誤差が小さくなる傾向が確認できた。特にピッチ  $A/\lambda$  が大きくなるに従って、誤差が 10%以下となる格子の高さ  $h/\lambda$  の最大値が大きくなる。解析値と理論値の誤差が 10%以下に収まっている領域をスカラー回折理論の適用範囲として設定すると、ピッチ  $A/\lambda > 2.5$  かつ高さ  $h/\lambda < 0.3$  の領域では解析値と理論値の誤差が 10%以下に収まっている。また、回折効率自体が極小値を取る格子の高さ  $h/\lambda$  では、解析値で正規化した誤差が 100%を超えてしまうことが確認できた。

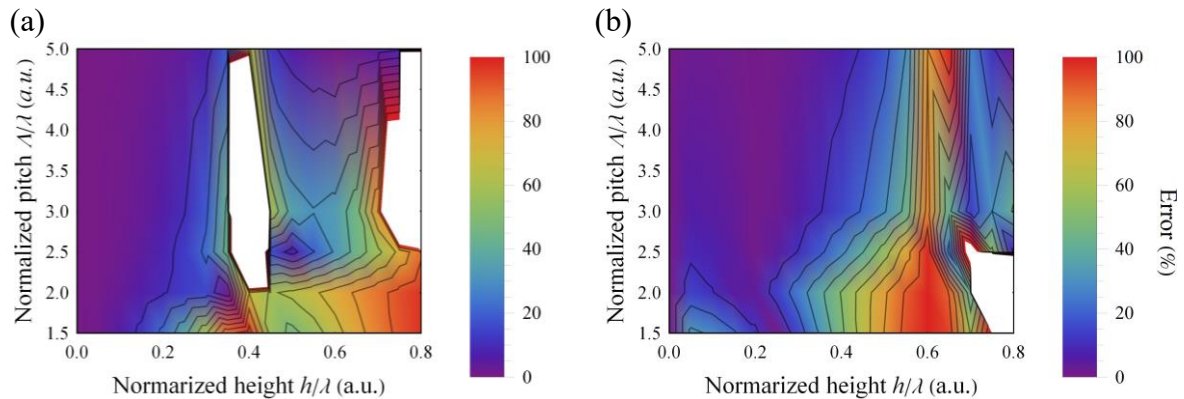


図 4-5 格子ピッチ  $A/\lambda$  がスカラー回折理論の誤差に与える影響(等高線は 10%ごとにプロット, 誤差 100%以上は白色で描画) (a)0 次回折効率 (b)1 次回折効率

次に、入射角  $\theta$ , 回折角  $\rho_m$  がスカラー回折理論の誤差に与える影響を調べるために、格子ピッチ  $A = 2.5\lambda$  の回折格子に入射角  $\theta$  を変えた際の、回折角  $\rho_{0,\pm 1}$  の変化と回折効率  $G_{0,\pm 1}$  の解析値と理論値との誤差に示す。0 次回折光に関しては、入射角  $\theta$  と対応するため、0 から  $40^\circ$  まで変化するが、図 4-6(b)のグラフから、回折効率の誤差も入射角と共に単調に増加していることがわかる。また、入射角が変わったことで  $\pm 1$  次光の回折効率  $G_{\pm 1}$  の対称性がなくなり、回折角  $\rho_m$  の大きな  $-1$  次光の誤差は、回折角  $\rho_m$  の小さい  $+1$  次光と比べて大きいことが分かった。  $+1$  次回折光に関しても、 $\theta = 30^\circ$  の値を除けば、理論値と解析値の誤差は単調に増加している。しかし、  $-1$  次回折光では入射角  $\theta = 23.5^\circ$  で回折角  $\rho_m = 0^\circ$  となるため、  $\rho_m = 20\text{--}25^\circ$  付近においても誤差が 10%程度に収まる事が分かった。これは、入射角  $\theta$  が  $0^\circ$  から離れるために生じる誤差と回折角  $\rho_{\pm 1}$  が  $0^\circ$  に近づくことで減少する誤差のバランスによって、適当な入射角において誤差が極小値を取ると考えられる。これらの結果から、スカラー回折理論に基づく理論値と真値としての RCWA 解析値との誤差は、以下のような条件下で 10%程度以下に収まることが分かった。また、以下の領域をはずれたとしても定性的な挙動は大まかに一致していることも分かった。

【スカラー回折理論モデルの誤差が 10%以下に収まる領域】

- 格子の高さが十分低い：  $h/\lambda < \sim 0.3$
- 入射角、回折角が小さい： 回折角  $|\rho_m| < \sim 20^\circ$

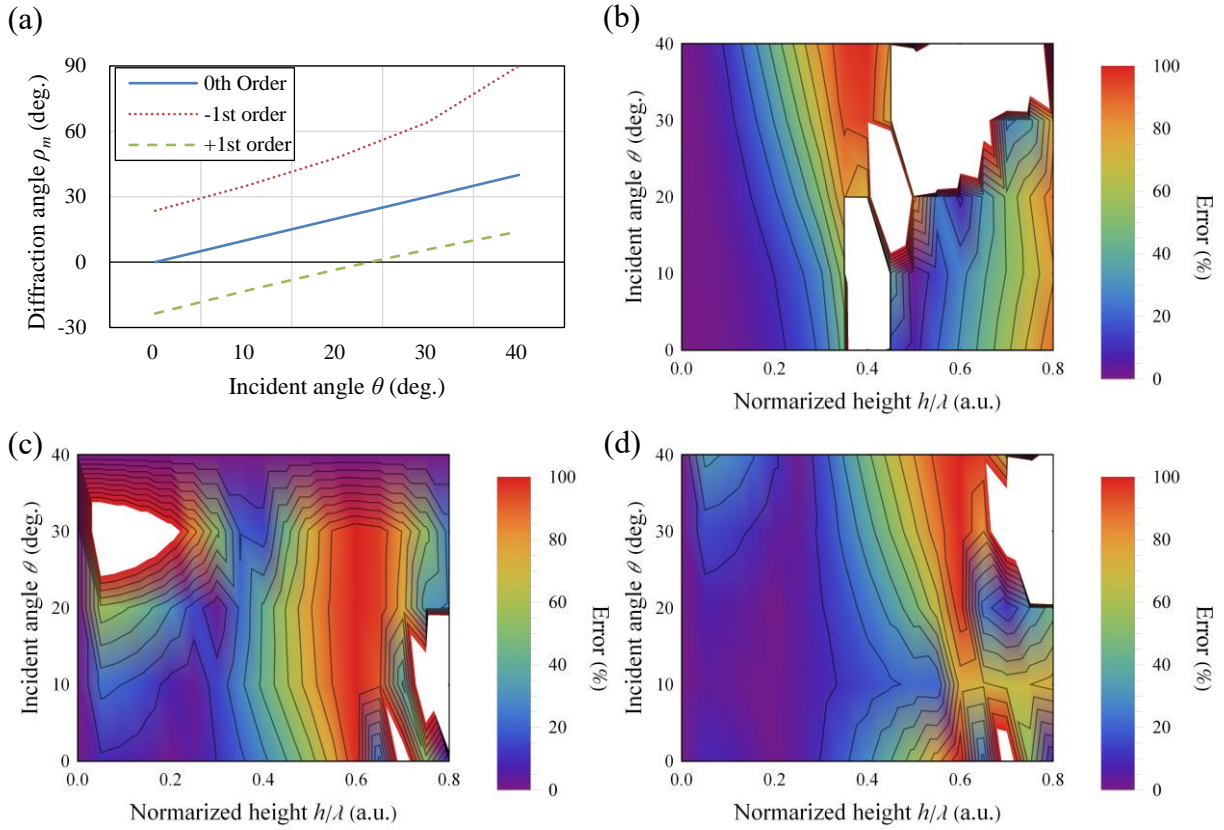


図 4-6 入射角  $\theta$ 、回折角  $\rho_m$  がスカラー回折理論の誤差に与える影響 (a)入射角  $\theta$  と回折角  $\rho_m$  の関係 (b)0 次回折光 (c)-1 次回折光 (d)+1 次回折光

### 4.3.2 二重周期回折格子のスカラー回折理論

次に、一般的な二重周期のホログラフィック位相回折格子の模式図を図 4-7 に示す。先行研究では、McCarthy によって  $h_1 = h_2$  かつ  $\Delta\mu = 0$  として、重ね合わせる正弦波の高さが等しく、重ね合わせる際の位相差  $\Delta\mu$  を無視したモデル①うなりを伴う二重周期回折格子に適用可能な理論モデルが提案されている[29]。しかし、後述の通りモデル②整数倍周期を重ね合わせた二重周期回折格子では  $\Delta\mu$  を無視できないため、2つの二重周期回折格子に適用可能な一般的形状への理論モデルの導出が必要となる。そこで、近軸光線に対して、二重周期回折格子の反射光に生じる位相分布  $\Delta\alpha(x)$  は以下の式で表される。

$$\Delta\alpha(x) = \frac{2\pi}{\lambda} \left[ h_1 \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right) + h_2 \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_2} + \Delta\mu\right) \right] \quad (4-9)$$

周期  $\Lambda_{1,2}$  の正弦波が、高さの振幅  $h_{1,2}$  で重ね合わさり、2つの正弦波の  $x$  軸方向の位相が  $\Delta\mu$  ずれているとした。ただし便宜状、2つの周期は、 $\Lambda_1 > \Lambda_2$  の関係を持つとする。

次に、式(4-3)と同様に位相分布を反射電場  $E_r$  に代入すると以下のように表される。

$$\begin{aligned}
 E_r &= -E_0 \exp(-i\Delta\alpha(x)) \\
 &= -A_0 \exp\left(-i\frac{2\pi}{\lambda}x \sin\theta\right) \exp\left\{-i\frac{2\pi}{\lambda}\left[h_1 \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right) + h_2 \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_2} + \Delta\mu\right)\right]\right\} \quad (4-10)
 \end{aligned}$$

次に、単一周期回折格子と同様に式(4-4)を式(4-10)に適用することで、二重周期回折格子の反射電場  $E_r$  を得る。

$$\begin{aligned}
 E_r &= -RA_0 \exp\left(-i\frac{2\pi}{\lambda}x \sin\theta\right) \times \prod_{l=1}^2 \left\{ J_0(\xi_l) + \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\xi_l) \exp\left[-in\left(\frac{2\pi}{\Lambda_l}x + \phi_l\right)\right] \right\} \\
 &= -RA_0 \exp\left(-i\frac{2\pi}{\lambda}x \sin\theta\right) \\
 &\quad \times \left( J_0(\xi_1) + J_0(\xi_2) \sum_{m=-\infty}^{\infty} J_m(\xi_1) \exp\left(-im\frac{2\pi}{\Lambda_1}x\right) \right. \\
 &\quad \left. + J_0(\xi_1) \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\xi_2) \exp\left[-in\left(\frac{2\pi}{\Lambda_2}x + \Delta\mu\right)\right] \right. \\
 &\quad \left. + \sum_{m=1}^{\infty} J_m(\xi_1) \left[ \exp\left(im\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right) + \exp\left(-im\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right) \right] \right. \\
 &\quad \left. \times \sum_{n=1}^{\infty} J_n(\xi_2) \left\{ \exp\left[in\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_2} + \Delta\mu\right)\right] + \exp\left[-in\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_2} + \Delta\mu\right)\right] \right\} \right) \quad (4-11)
 \end{aligned}$$

ここでは、 $\xi_{1,2}=2\pi h_{1,2}/\lambda$ 、 $\phi_{1,2}=0$ 、 $\Delta\mu$  とした。式(4-11)の形から、周期  $\Lambda_{1,2}$  の単一周期回折格子で生じる回折光の電場をかけ合わせたものが最終的な回折光の電場となることわかる。そのため、周期  $\Lambda_1$  の正弦波によって生じる  $m$  次回折光電場と周期  $\Lambda_2$  の  $n$  次回折光電場をかけたものを便宜上  $(m, n)$  次回折光と呼称し、回折角  $\rho_{m,n}$  を以下のように表す。

$$\rho_{m,n} = \arcsin\left(m\frac{\lambda}{\Lambda_1} + n\frac{\lambda}{\Lambda_2} - \sin\theta\right) \quad (4-12)$$

モデル②整数倍周期の二重周期回折格子では、回折次数  $(m, n)$  に対して  $m\Lambda_2 = n\Lambda_1$  となる組み合わせでは回折角  $\rho_{m,n}$  が等しくなるため、回折光同士の干渉が生じる。また、モデル①「うなりを伴う二重周期回折格子」では周期  $\Lambda_{1,2}$  がわずかに異なり、回折角

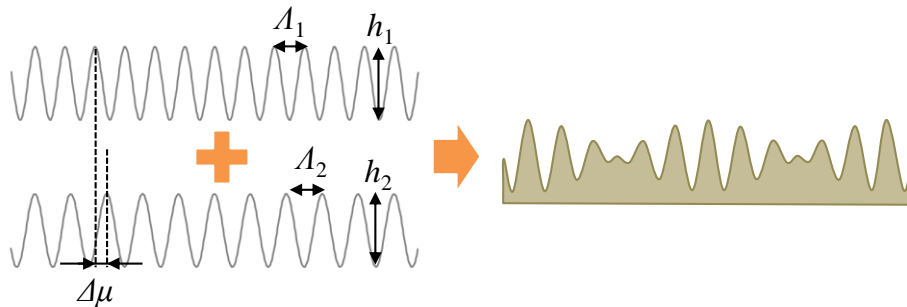


図 4-7 二重周期ホログラフィック回折格子の模式図

$\rho_{a,b}$  がそれぞれ異なるため、回折光同士の干渉を考慮する必要はない。

まず、モデル①「うなりを伴う二重周期回折格子」については、 $(m, n)$ 次回折光の回折効率は以下の式で表される。

$$G_{m,n} = |R J_m(4\pi h_1/\lambda) J_n(4\pi h_2/\lambda)|^2 \quad (4-13)$$

反射率  $R = 1$  として、図 4-8 に単一周周期回折格子の結果とうなりを伴う二重周期回折格子の回折効率を計算した結果を示す。二重周期回折格子では、 $(m, 0)$ ,  $(0, n)$ 次回折光は、元の単一周周期回折格子で得られる回折光として得られる。そのため、二重周期回折格子では、元の単一周周期回折格子の重ね合わせとしての機能が同時に得られる。さらに、回折光同士の掛け合わせ(交叉)で生じる回折光が角度  $\Delta\rho = \arcsin(\lambda/A_1 - \lambda/A_2)$  毎に並んでいることが分かる。また、式(4-11)から分かるように、高次回折光の回折効率は、ベッセル関数の性質から小さくなる傾向があるため、高次の回折光同士の交叉回折光は、 $|m|, |n| > 1$  となる回折格子率  $G_{m,n}$  は数%以下と無視できるほど小さくなる。

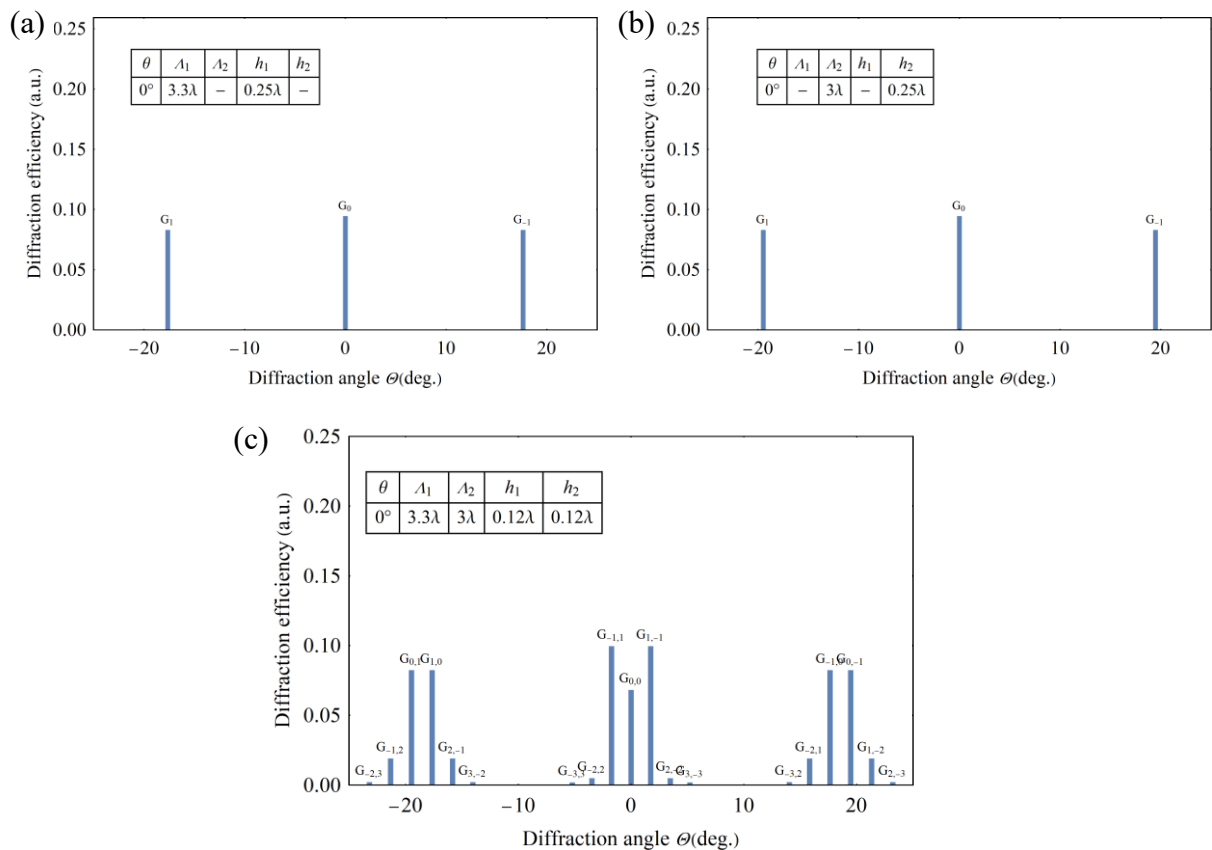


図 4-8 二重周期回折格子の回折光の解析結果. 単一周周期回折格子 : (a)周期  $A_1$  (b)周期  $A_2$   
二重周期 : (c)周期  $A_1, A_2$

次に、モデル②整数倍周期を重ね合わせた回折格子に対しては、2つの周期が1より大きな有理数  $a(> 1)$  と  $ab$  が整数となるような整数  $b$  に対して、 $\Lambda_1 = a\Lambda_2$  の関係にある時、回折角  $\rho_{m,n}$  は以下のように表される。

$$\begin{aligned}\rho_{m,n} &= \arcsin\left(m\frac{\lambda}{\Lambda_1} + n\frac{\lambda}{\Lambda_2} - \sin\theta\right) \\ &= \arcsin\left\{(m+na)\frac{\lambda}{\Lambda_1} - \sin\theta\right\} \\ &= \rho_{m\pm ab, n\mp b}\end{aligned}\quad (4-14)$$

式(4-14)から明らかな様に、 $(m\pm ab, n\mp b)$  次の回折光は、等しい回折角  $\rho_{m,n}$  を持ち伝搬するため、回折光同士の干渉が生じる。このとき、回折光同士の位相差は、重ね合わせる正弦波の位相差  $\Delta\mu$  に影響を受け、回折効率は以下のように表される。

$$\begin{aligned}G_{m,n} &= \left| R \exp\left(-i\frac{2\pi}{\lambda}x \sin\theta\right) \right. \\ &\quad \times \left[ J_m(\xi_1)J_n(\xi_2)(-1)^{n+m} \exp\left(i\left\{\left(\frac{2m\pi x}{\Lambda_1} + \frac{2n\pi x}{\Lambda_2}\right) + n\Delta\mu\right\}\right) \right. \\ &\quad \left. + \sum_b J_{m+ab}(\xi_1)J_{n-b}(\xi_2)(-1)^{n+m} \exp\left(i\left\{\left(\frac{2m\pi x}{\Lambda_1} + \frac{2n\pi x}{\Lambda_2}\right) + n\Delta\mu \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - b\Delta\mu\right\}\right) \right] \Bigg|^2 \\ &= R^2 \left| \sum_{b=-\infty}^{\infty} J_{m+ab}(\xi_1)J_{n-b}(\xi_2) \exp(-ib\Delta\mu) \right|^2\end{aligned}\quad (4-15)$$

そのため、2つの正弦波を重ねる際の位相差  $\Delta\mu$  を適切に設計することで、特定の回折次数で強め合う干渉により、回折効率を向上させることが可能となる。この特性は、図 4-9 に示したような位相子モデルで考えることができる。図の横軸と縦軸は、各回折光の電場の実部と虚部を表している。回折光の振幅を表すベッセル関数は次数と共に最大値が減少するため、高次の回折光による寄与は回折次数に対して指数関数的に減少する。そして、すべての回折光の位相子を足し合わせた結果得られるベクトルが、最終的に観測される回折光を表す。それぞれの位相子は角度が  $b\Delta\mu$  ずつずれており、2つの正弦波を重ね合わせた際の  $x$  軸方向のずれである  $\Delta\mu$  が最終的な回折効率に大きく影響することが分かる。つまり、重ね合わせる正弦波の周期  $\Lambda_{1,2}$  の比率  $a$  とそれぞれの高さ  $h_{1,2}$ 、位相ずれ  $\Delta\mu$  を最適化することで、ある次数の回折効率の向上や低減が可能だと言える。これは、ブレードドホログラフィック回折格子として、周期比 1:2 の正弦波を重ね合わせて、1次回折光の回折効率を向上させた先行研究と一致する[33].

以上の結果から、一般的な二重周期解析格子に適用可能なスカラ回折理論モデルを定式化できた。これにより、以前は別々の観点で議論されていたモデル①「うなりを伴う二重周期回折格子」とモデル②「整数倍周期を重ね合わせた回折格子」を統一的に扱うことが可能となった。さらに、それぞれのモデルにおける回折特性の違いを明らかにした。

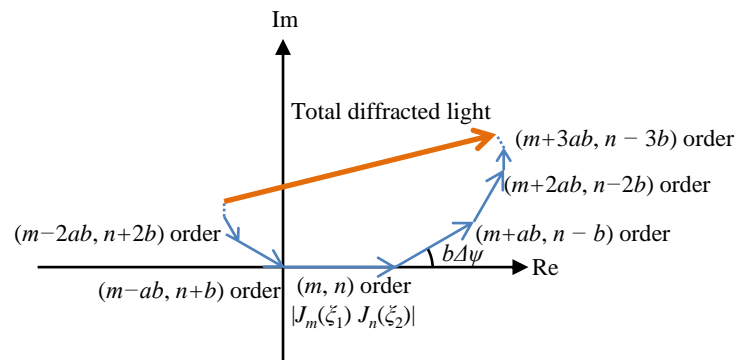


図 4-9 回折光同士の干渉を表す位相モデル

## 4.4 回折特性計測による理論モデルの検証

前節で構築した二重周期回折格子の理論モデルの妥当性を検証する為に、モデル①うなりを伴う二重周期回折格子を実際に造形し、回折特性の計測を行った。

### 4.4.1 二重周期回折格子造形装置と回折特性計測装置の開発

まずは、二重周期回折格子の造形を行った露光装置の説明を行う。本研究では、造形する干渉縞の自由度が高く、重ね合わせる干渉縞の入射エネルギー制御が容易な回転ロイドミラー光学系を用いた多重露光干渉リソグラフィにより造形を行った。開発した露光装置の詳細は、付録 A に記載したのでここでは概要のみを述べる。開発した回転ロイドミラー光学系の設計仕様と外観を表 4-2 と図 4-10 に示す。光源には、HeCd レーザー(波長 325 nm)を用いており、光学特性の評価が可能な 3 mm 角程度の面積での均一な露光が可能なように開発した。

表 4-2 露光装置の設計仕様

要求仕様	項目	値
①	最小加工ピッチ	~200 nm
②	最大加工ピッチ	~4 $\mu\text{m}$
③	加工面積	3 mm 角
④	強度の不均一性	<5%
⑤	ピッチエラー	<0.1 %
⑥	ステージ自由度	4 自由度

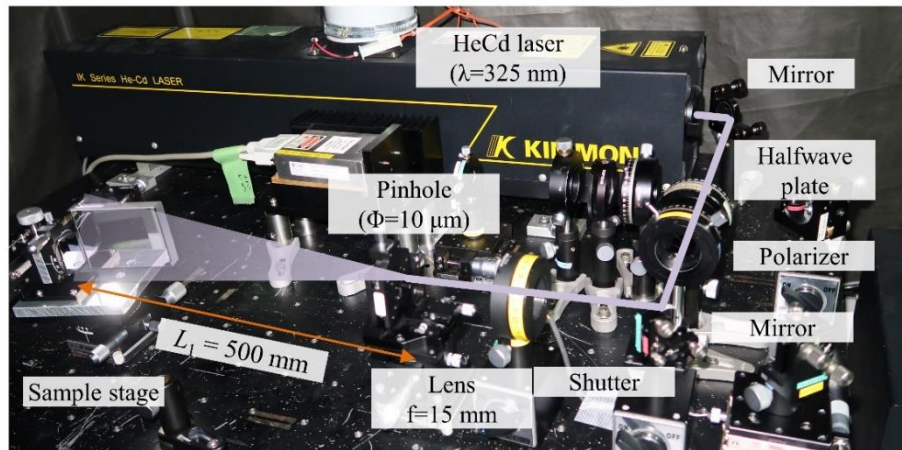


図 4-10 回転ロイドミラー露光装置の外観

次に、造形した反射型回折格子の回折特性を計測するために開発した回折特性評価装置について述べる。回折特性評価装置の開発に関する詳細は付録Cに記載したので、ここでは概要のみ述べる。開発した装置の外観を図 4-11 に示す。回折格子への入射角と回折角を独立に制御して計測を実施するため、2 軸自動回転ステージを用いた。また、高次回折光や二重周期回折格子特有の交叉回折光の回折効率は、0 次回折光と比べて  $10^3$  以上小さくなる可能性が、理論モデルから予想される為、高出力の計測ビームと高ダイナミックレンジのディテクタを採用することで、最大で  $10^6$  程度の高ダイナミックレンジでの回折効率の計測を実現した。

表 4-3 回折特性計測装置の仕様

設計仕様	項目	値
①	計測波長	642 nm
②	計測ビーム径	1.54 mm
③	ディテクタダイナミックレンジ	$\sim 10^6$ (5 mW-5 nW)
④	ステージ位置決め精度	$0.2^\circ$

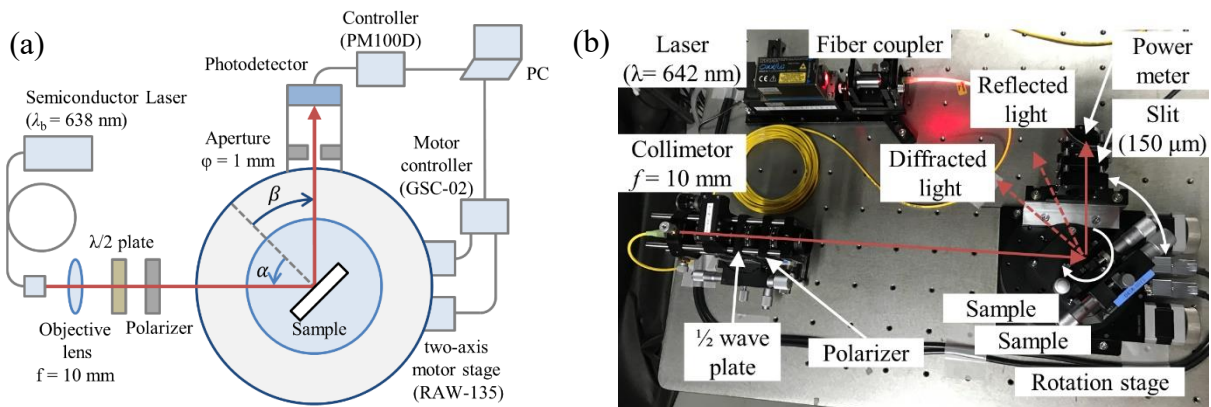


図 4-11 回折特性計測装置 (a)模式図 (b)外観



次に、計測される回折光の角度分布を理論モデルから計算する。回折格子に入射したビーム径  $w_0$  の計測ビームは、図 4-12 のように回折し、ディテクタで検出される。ビーム径  $w_0$  が十分小さく、サンプルとディテクタの距離  $L_d$  が十分長い場合、微小角近似を用いて角度  $\theta$  における回折光の強度  $I_{DE}$  は以下の式で表される。

$$\begin{aligned}
 I_{DE}(\theta) &= I_m \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{8G_{m,n} \cos \theta}{\pi w_0 \cos \rho_{m,n}} \exp\left(-8 \frac{(L_1^2 (\theta - \rho_{m,n})^2 \cos^2 \theta + Y^2)}{w_0^2 \cos^2 \rho_{m,n}}\right) dY \\
 &= I_m \sum_{m=-\infty}^{\infty} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \frac{2G_{m,n} \cos \theta}{w_0 \cos \rho_{m,n}} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \exp\left(-8 \frac{L_1^2 (\theta - \rho_{m,n})^2 \cos^2 \theta}{w_0^2 \cos^2 \rho_{m,n}}\right)
 \end{aligned} \quad (4-16)$$

ここで、 $I_m$  は計測ビームの入射強度であり、入射ビームはビーム径  $w_0$  ガウシアン分布を持つと仮定した。そして、角度分布を得るために格子と並行な軸  $Y$  を設定し強度を積分し角度分布を得た。また、回折次数  $m, n$  は回折角  $\beta_{m,n}$  が  $\pm 90^\circ$  を超えない範囲で総和を取るが、 $|m, n| > 5$  程度の高次回折光は、回折効率  $\rho_{m,n} < \sim 10^{-4}$  が無視できるほど小さくなるため、本研究においては高次の回折光 ( $|m, n| > 5$ ) の影響を無視して理論的な回折光強度を計算した。

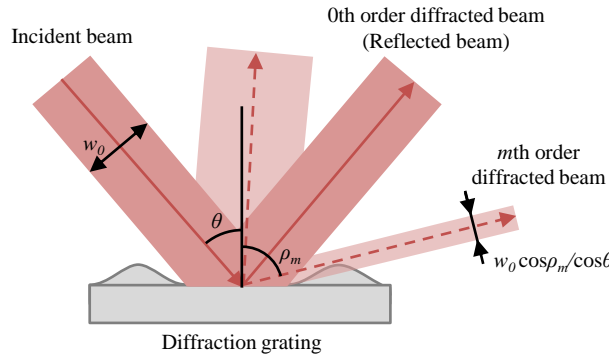


図 4-12 有限のビーム径を持つ入射光に対する回折光分布の模式図

#### 4.4.2 うなりを伴う二重周期回折格子の造形，回折特性計測結果

次に、前節で述べた露光装置を用いて、2つの干渉縞の露光エネルギー比を変えた一重、二重周期回折格子を多重露光干渉リソグラフィーによって造形した。その後、回折効率を計測し、理論モデルと比較した。特に、先行研究では議論がなされていなかった高さの異なる正弦波がたし合わさった二重周期回折格子に対する回折光強度分布の違いに着目した。

まず、多重露光干渉リソグラフィーによる二重周期回折格子の造形手順について説明する。後述の通りレジストの塗布など露光する基板の準備を行い、回転ロイドミラー露光装置において、入射角  $\theta_1$  に調整し干渉縞周期  $\Lambda_1$  で露光エネルギー  $D_1$  となるように露光する。その後露光装置を回転させ入射角  $\theta_2$  に調整し干渉縞周期  $\Lambda_2$  で露光エネルギー  $D_2$  となるように露光する。その後現像工程を経て形状を得る。本実験では、

現像したレジストに Au を蒸着し反射率を向上させることで反射型回折格子として扱った。具体的な造形の手順は以下の通りである。

#### 【造形の手順】

##### ① 基板の準備工程

実験の手順としては、Si 基板を 3-4 cm 角に切断したものをアセトンで洗浄した後、HMDS を数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで 100°C で 1 分加熱し、疎水化処理をした。レジスト(AZ P1350)を 2000 rpm で膜厚 560 nm になるようにスピコートした後、100°C で 6 分間ソフトベークした。

##### ② 造形工程

基板を設置し、造形用の HeCd レーザー(波長  $\lambda_f = 325$  nm, 入射強度  $0.24$  mW/cm<sup>2</sup>)を基板に対して S 偏光で入射角  $\theta_1 = 5.9^\circ$ , 理論干渉縞周期 1585 nm となるように調整し露光エネルギー  $D_1$  になるように露光した。その後、ステージを回転させ入射角  $\theta_2 = 5.5^\circ$ , 理論干渉縞周期 1698 nm となるように調整し露光エネルギー  $D_2$  になるように露光した。

##### ③ 現像工程

現像液(AZ Developer)で、室温 24°C, 60 秒静止現像した。

##### ④ 蒸着工程

スパッタ蒸着装置(SC-701)で電流 5 mA に設定し、Au を膜厚約 100 nm 蒸着した。

そして、表 4-4 に示したように露光時間  $t_{1,2}$  を変えて露光エネルギー  $D_{1,2}$  を制御して異なるエネルギー比  $D_2/D_1$  で重ね合わせた二重周期回折格子の回折特性を計測した。特に、重ね合わせる 2 つの干渉縞の総露光エネルギーは変えずに比率のみを変化させ、理論的な回折強度分布との比較を行った。

表 4-4 露光エネルギー比の条件

		条件 1	条件 2	条件 3	条件 4
露光エネルギー比 $D_2/D_1$		1.0	0.60	0.33	0
1 回目の露光 :	入射角 $\theta_1$ (°)	5.9	5.9	5.9	5.9
	干渉縞周期 $\Lambda_1$	1.92	2.40	2.88	3.84
2 回目の露光 :	入射角 $\theta_2$ (°)	5.6	5.6	5.6	5.6
	干渉縞周期 $\Lambda_2$	1.92	1.44	0.96	0

実際に造形したサンプルの外観を図 4-13 に示す。造形条件を揃え、再現性を向上させるために、複数回(表 4-4 の条件を含む)露光条件を変えて、同一基板に造形することで、現像条件や実験条件のばらつきを極力排除した。造形した干渉縞構造は、1 回の露光で 5 mm 角を露光するが、各露光箇所において均一な回折光が確認できた。次に、レジストの構造の顕微鏡観察像を図 4-14 に示す。露光エネルギー比  $D_2/D_1$  が 1 と

なる条件 1(図 4-14(a))において $\sim 24 \mu\text{m}$  うなりがはっきりと確認できる. さらに, 観察範囲の  $0.6 \text{ mm} \times 0.3 \text{ mm}$  の範囲で均一な格子構造の造形を確認できた. そして,  $D_2/D_1$  が 1 から 0 に近づくにしたがってうなりによる格子包絡線の振幅が減少していき, 単一周期構造へと近づいてくる. 以降の理論モデルの計算で用いた構造の高さに関しては, 実験的に取得した感光性レジスト AZP1350 の感度曲線  $h(D) = 2.72D^2 + 36.7D$  (付録 B に詳細を記載)を用いて露光エネルギーから現像後の高さを計算した.

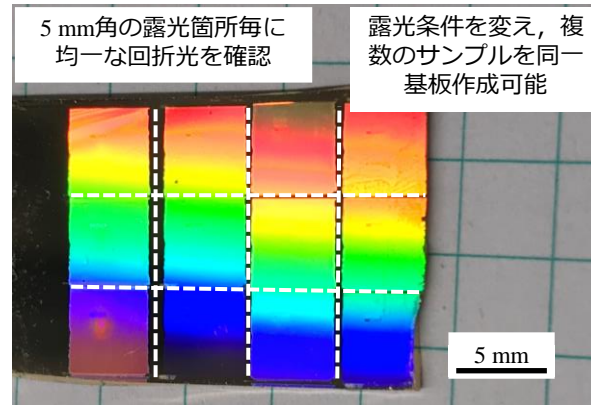


図 4-13 露光条件を変えて造形した基板の外観

次に, 実際に計測した回折光強度と式(5-2)から計算される理論的な回折光の角度分布を比較したものを図 4-15 に示す. 計測波長は  $642 \text{ nm}$ ,  $0, \pm 1$  次光を計測するために基板への計測ビームの入射角  $\theta = 34^\circ$  とした. ディテクタの角度を  $0.1$  度ずつ変化させ, 回折光の角度分布を取得した. 計測した回折光の角度分布から重ね合わせた干渉縞の周期を計算した. また, グラフに記載した格子周期は, 回折角  $\theta$  から計算したものである. 条件 4 では, 周期  $1575 \text{ nm}$  の単一周期構造として,  $\theta = 34^\circ$  に  $0$  次光(正反射光)があり,  $\theta = 7.8^\circ$  に  $+1$  次光,  $\theta = 75^\circ$  に  $-1$  次光のピークがはっきりと確認できる.  $0$  次光の回折効率が理論値より小さく計測されているが, 回折光に関しては理論値とよく一致している. 理論値は, スカラー回折理論に基づいて計算されているため, 回折角  $\theta$  が大きくなるに従い誤差が大きくなることが予想される. また,  $0, +1$  次光では, 回折光スポットが理論値と比べ広がっていることが確認できる. これは, 理想的な正弦波プロファイルからのずれや造形面の高さや形状の不均一さに由来する散乱などの影響だと考えられる. そして, 条件 1 では, 周期  $\Lambda_{1,2}$  の 2 つの干渉縞を強度比  $D_1/D_2 = 1$  で重ね合わせた結果, 単一周期構造で得られる周期  $\Lambda_{1,2}$  の干渉縞による  $\pm 1$  次光だけでなく, 2 つの干渉縞の交叉回折光がはっきりと計測されており, 理論値ともよく一致している. また, 2 つの強度比が  $1:1$  でありそれぞれの干渉縞の加工深さが等しいため, 2 つの回折光が等しい回折効率  $G_{\pm 1,0}, G_{0,\pm 1}$  で回折していることがわかる. 次に, 条件 2, 3 と露光エネルギー比を変化させると, 周期  $\Lambda_2$  による回折光が支配的となり, 回折効率の差が露光エネルギー比と同様に变化していく事がわかる. 他にも,  $0$  次光に隣接している  $(\pm 1, \pm 1)$  次回折光は, エネルギー比を変えた条件 1-3 においてもピークの大小関係が変化せず, 等しい回折効率を有していることもわかる. 何れの条件にお

いても、理論値と計測値はよく一致しており、理論モデルの妥当性が確認できたと考えられる。特に、元の干渉縞の $\pm 1$ 次回折光効率に相当する $G_{\pm 1,0}, G_{0,\pm 1}$ は、露光エネルギーに応じてそれぞれ変化するため、多重露光干渉リソグラフィーの加工中にこれらの回折特性を計測することができれば、多重露光干渉リソグラフィーの露光エネルギーの高精度な制御が可能だと考えられる。次章では、この計測結果に着想を得て、多重露光干渉リソグラフィーのインプロセス計測方法を提案、実証する。

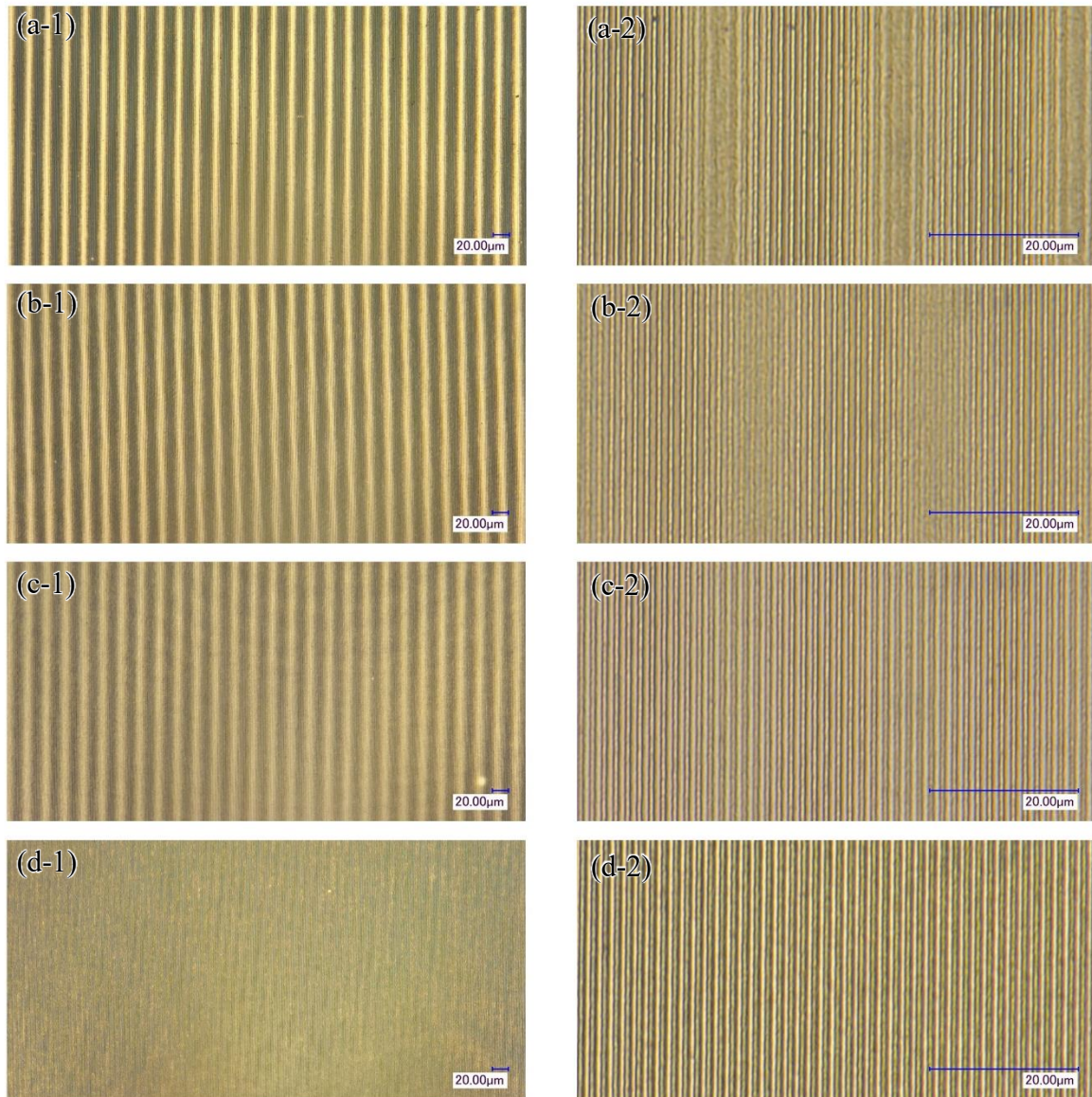


図 4-14 単一、二重周期回折格子の顕微鏡観察像.  
(a-1,2)条件 1 (b-1,2)条件 2 (c-1,2)条件 3 (d-1,2)条件 4

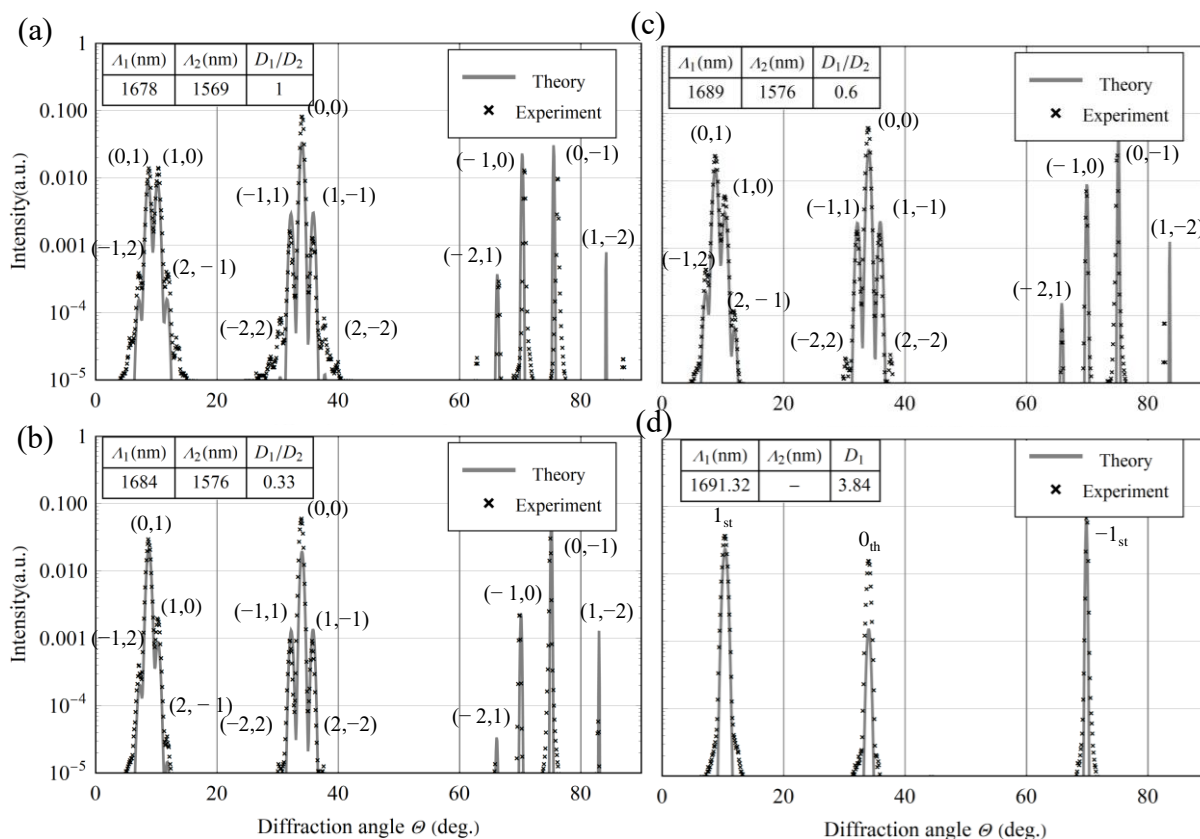


図 4-15 回折光角度分布の計測結果 (a)条件 1 (b)条件 2 (c)条件 3 (d)条件 4

## 4.5 結言

本章ではまず二重周期回折格子に関する先行研究を整理し、大きく分けて2つのモデルがあり、それぞれのモデルに対して異なったアプリケーションが提案されていることを示した。さらに、それらの2つのモデルを統一的に扱え、物理的なメカニズムを明らかにする理論モデルの重要性を述べた。そこで、スカラー回折理論を用いて、一般的な二重周期構造に適用可能な回折モデルを構築した。その結果、従来別々のモデルとして扱われていたモデル①うなりを伴う回折格子と②整数倍の周期を重ね合わせた回折格子を同じ理論モデルで扱うことが可能になった。そして、二重周期回折格子の高さ  $h_{1,2}$ 、周期  $A_{1,2}$ 、位相差  $\Delta\alpha$  の計5つの構造パラメータによって回折効率、回折角がどのように決まるかを明らかにした。特に、モデル②「整数倍の周期を重ね合わせた二重周期回折格子」では、回折光同士の干渉を位相子モデルで表すことで、回折効率の物理メカニズムを明らかにすることができた。さらに、実際に多重露光干渉リソグラフィーにより造形した二重周期回折格子の回折特性を、理論モデルと比較した。その結果、レジストの感度曲線から計算された理論モデルと計測結果はよく一致した。特に、一次回折光は、露光エネルギー比に応じて変化しているため、干渉リソグラフィーの露光中に回折特性を計測することで露光エネルギーのモニタリングが可能だと考えられる。

# 第5章 多重露光干渉リソグラフィ ーの加工プロセス計測

---

5.1 緒言 .....	67
5.2 多重露光干渉リソグラフィの加工プロセス制御方法提案 .....	67
5.3 露光中/現像後のレジスト形状の二重周期回折格子モデル .....	68
5.4 単一周期回折格子のインプロセス計測基礎実験 .....	71
5.4.1 インプロセス回折光計測装置の開発 .....	71
5.4.2 インプロセス回折光計測実験の基礎実験 .....	72
5.5 二重周期回折格子のインプロセス計測方法の実証 .....	79

---

## 5.1 緒言

本章では、前節で構築した二重周期回折格子の理論モデルを用いた、多重露光干渉リソグラフィーの加工制御方法を提案する。特に、露光中/現像後のレジストの回折特性をモデル化し、多重露光干渉リソグラフィーのインプロセス計測方法と組み合わせることで、多重周期構造への適用が困難な従来の解析的なライブラリが不必要な加工プロセス制御が可能だと考えられる。そこで、まずは実験的に取得した実験パラメータと理論モデルを組み合わせ、露光中/現像後のレジストをモデル化した。次に、露光中/現像後のイン/ポストプロセス回折特性計測装置を開発した。さいごに、イン/ポストプロセスでの回折効率計測結果と構築した二重周期回折格子モデルからの回折効率の推定値を比較することで、妥当性を確認した。これらの結果から、構築したモデルを用いた多重露光干渉リソグラフィーの加工プロセス制御方法の実現が期待できる。

## 5.2 多重露光干渉リソグラフィーの加工プロセス制御方法提案

前節において定式化したスカラー回折理論モデルにおいて、二重周期回折格子の回折特性を決める構造パラメータは、重ね合わせる2つの正弦波の周期  $A_{1,2}$ 、高さ  $h_{1,2}$  と重ね合わせた際の位相差  $\Delta\mu$  の5つであることを明らかにした。特に、理論モデルや電磁場解析などで設計した回折効率を高精度に実現するためには、加工高さ  $h_{1,2}$  の制御が重要な事がわかる。そこで、干渉リソグラフィーによる二重周期回折格子の高精度な加工の実現のために重要な加工プロセス制御方法の開発が必要だと考えられる。先行研究においても、モデル②整数倍周期の二重周期回折格子の周期  $A_{1,2}$ 、位相差  $\Delta\mu$  を制御するために、参照用回折格子を用いる方法などが提案されている[33]。しかし、露光中のレジストをインプロセスで計測し、現像後のレジストの高さ  $h_{1,2}$  対応関係を明らかにするといった研究例は未だかつてない。特に、露光中の光学応答と最終的に現像後に得られる形状を対応させることができれば、露光エネルギーのフィードバック制御が可能となり、より高精度な回折格子の形状、機能制御が可能だと考えられる。そこで従来は、図 5-1 のように干渉リソグラフィーによる単一周回折格子の加工時に、露光中のレジストの屈折率分布によって生じる回折光を用いた加工プロセスのモニタリング方法が提案されている[60]。この方法では、単純に実験的に得られた回折効率と加工後の回折効率や回折格子の線幅といった変数を対応させる関数を取得するといった方法である。しかし、この実験的な方法を二重、若しくは多重周期回折格子に適用しようと考え、重ね合わせる干渉縞の数だけ制御する露光エネルギーと計測する回折効率の数が増えてしまい、結果的に多変数のライブラリが必要となってしまう。このようなライブラリを参照した加工形状の推定は、スキヤトロメトリなどの手法で用いられているが、ライブラリの作成にかかる計算コストが大きな問題である。

そこで、本研究においては、二重周期回折格子の理論モデルを用いた多重露光干渉リソグラフィーのインプロセス計測方法を提案する。多重露光干渉リソグラフィーの加工プロセスモニタリングでは、複数回の露光によって生じる制御、計測結果の多変数化により、実験的な手法では多変数のライブラリが必要であった。しかし、前章で

構築したような理論モデルをライブラリの代わりに用いることで、より簡単に加工プロセスのモニタリング，制御が可能だと考えられる．特に，本研究では多重周期構造の中で最も基本的な二重周期回折格子に着目して，二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルを用いた多重露光干渉リソグラフィのインプロセス計測，加工後の回折効率の推定により，構築したモデルの妥当性の確認，加工プロセスの実現性について検討を行った．

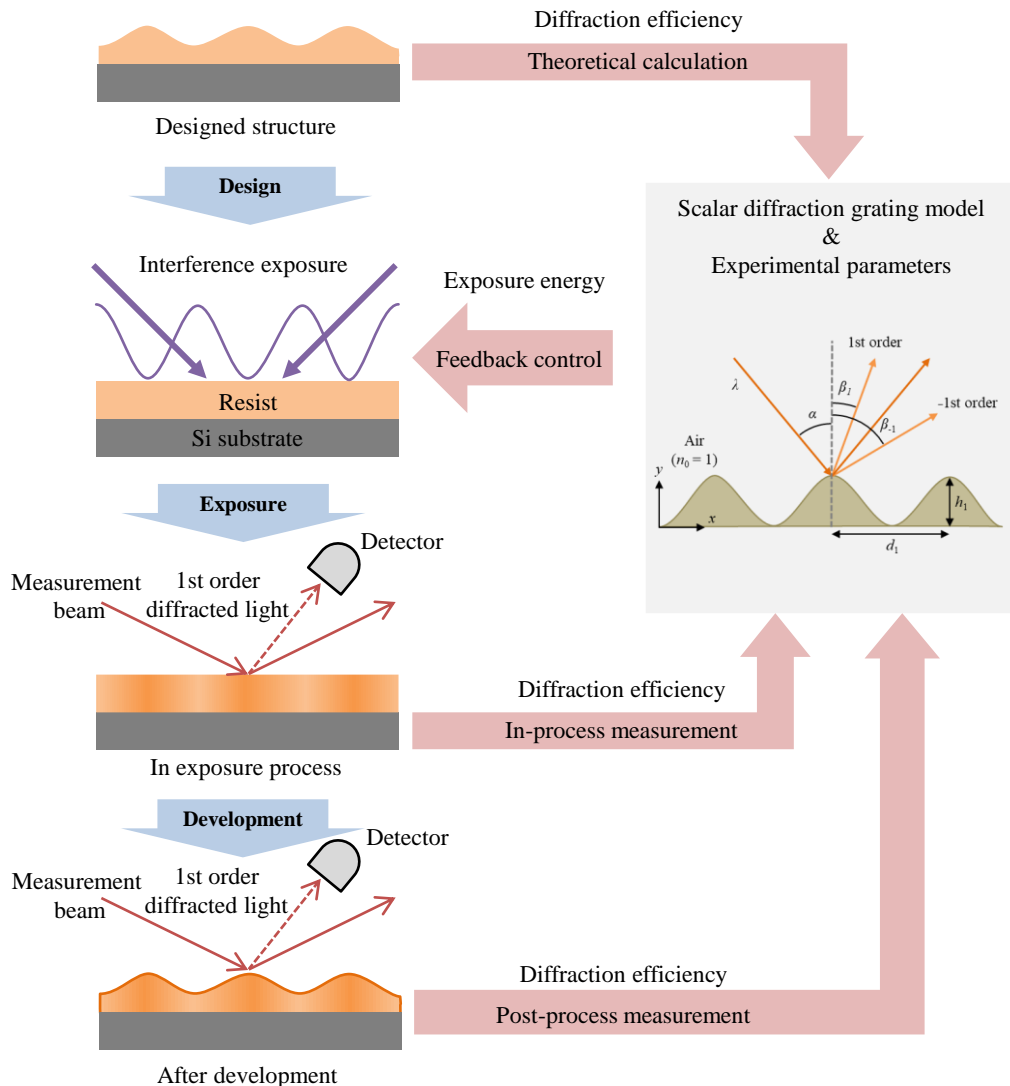


図 5-1 理論モデルに基づいた加工プロセス制御方法の模式図

### 5.3 露光中/現像後のレジスト形状の二重周期回折格子モデル

次に，二重周期回折格子の露光中・現像後の回折効率を理論的に取得するためのモデル化を行った．特に，2回露光する際の露光エネルギー $D_{1,2}$ と実験的に取得可能な関数である屈折率変化率とレジストの感度曲線，薄膜の反射率 $R$ を組み合わせることで



インプロセス計測される二重周期回折格子のスカラ理論モデルを構築した。更に、以下の物理的な仮定のもとで理論モデルの構築を行った。

【レジストの回折格子モデル構築における仮定】

- ① 感光性レジストは露光エネルギーに比例して屈折率変化を生じる。
- ② レジストの反射率は、計測部で一定である。
- ③ 干渉リソグラフィでは可視度  $V = 1$  の理想的な正弦波状の干渉縞を仮定する。
- ④ 感光性レジストは、現像時に正弦波状のプロファイルを保ったまま、感度曲線に応じて高さが変化する。

まず、図 5-2 に、露光する干渉縞の強度分布、露光したレジストの屈折率分布、現像後の位相回折格子のスカラ回折理論モデルを示した。まず、図 5-2(a) に示した露光中レジストを二重周期回折格子に対してモデル化し、回折効率を定式化した。感光性レジストは、一般的に複数回の露光での露光エネルギーの線形和に応じて化学反応が生じる。そのため、まずは、多重露光干渉による露光エネルギー分布  $D(x)$  は以下のように表される。

$$D(x) = \frac{I_0}{2} \left[ t_1 \left( \sin \left( \frac{2\pi x}{\Lambda_1} \right) + 1 \right) + t_2 \left( \sin \left( \frac{2\pi x}{\Lambda_1} \right) + 1 \right) \right] \quad (5-1)$$

このとき、 $I_0$  は入射する干渉縞強度の面内の平均強度として、周期  $\Lambda_{1,2}$  の干渉縞の露光時間をそれぞれ  $t_{1,2}$  とした。次に、仮定①から、露光エネルギー  $D(x)$  で露光されたレジスト内部の屈折率分布  $N(x)$  は以下のように表される。

$$N(x) = n_0 + \Delta n D(x) \quad (5-2)$$

このとき、 $\Delta n$  は単位入射エネルギーあたりの屈折率変化量として、露光前の屈折率を  $n_0$  とした。そして、反射光に生じる入射光への位相変化  $\Delta\alpha_0(x)$  は、以下のように表される。

$$\Delta\alpha_0(x) = \frac{4\pi}{\lambda} h_0 \Delta n D(x) \quad (5-3)$$

そこで、この現像前のレジストに生じる位相差の式  $\Delta\alpha_0(x,t)$  を式(4-10)の  $\Delta\alpha$  に代入することで、露光中のレジストに生じる  $(a, b)$  次回折光の回折効率  $P_{a,b}$  が計算される。

$$P_{a,b} = |R J_a(4\pi h_0 \Delta n I_0 t_1 / \lambda) J_b(4\pi h_0 \Delta n I_0 t_2 / \lambda)|^2 \quad (5-4)$$

さらに、 $t_2 = 0$ ,  $b = 0$  を式(5-4)に代入することで、単一周周期回折格子の現像前の  $a$  次回折光の回折効率  $P_a$  を以下のように得る。

$$P_a = |R J_a(4\pi h_0 \Delta n I_0 t_1 / \lambda)|^2 \quad (5-5)$$

次に、図 5-2(b) に示した現像後のレジストをモデル化する。現像時には、露光エネルギー  $D$  と感度曲線  $h(D)$  で得られる高さ分布  $h(D(x))$  が生じるとした。そこで、現像後の構造が反射光に生じさせる位相分布  $\Delta\alpha_1(x)$  を以下のように表す。

$$\begin{aligned} \Delta\alpha_1(x) &= \frac{4\pi}{\lambda} (N(x) - 1)h(D(x)) \\ &= \frac{4\pi}{\lambda} \{(n_0 - 1) + \Delta n D(x)\}h(D(x)) \\ &\cong \frac{4\pi}{\lambda} (n_0 - 1) \left( h\left(\frac{I_0}{2} t_1\right) \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_1}\right) + h\left(\frac{I_0}{2} t_2\right) \sin\left(\frac{2\pi x}{\Lambda_2}\right) \right) \end{aligned} \quad (5-6)$$

ここでは、入射側の媒質を屈折率1の空気と仮定し、レジスト内部の一般的な屈折率変化係数  $\Delta n$  ( $\sim 0.0001$ ) は、 $n_0 - 1$  ( $\sim 0.6$ ) に比べると十分小さいため無視できるとした。さらに、次に、この式(5-6)を式(4-10)の  $\Delta\phi(x,t)$  に代入することで、二重周期回折格子の現像後の  $(a, b)$  次回折光の回折効率  $Q_{a,b}$  が計算される。

$$Q_{a,b} = |R J_a(4\pi(n_0 - 1)h(I_0 t_1)/\lambda) J_b(4\pi(n_0 - 1)h(I_0 t_2)/\lambda)|^2 \quad (5-7)$$

さらに、 $t_2 = 0$ ,  $b = 0$  を式(5-4)に代入することで、単一周周期回折格子の現像前の  $a$  次回折光の回折効率  $Q_a$  を以下のように得る。

$$Q_a = |R J_a(4\pi(n_0 - 1)h(I_0 t_1)/\lambda)|^2 \quad (5-8)$$

よって、入射強度  $I_0$ 、屈折率変化量  $\Delta n$ 、レジストの感度曲線  $h(D)$  や、各種パラメータが得られれば、現像前の露光中に生じる回折効率から、現像後の回折効率が予想可能だと考えられる。これらのパラメータは、単一周周期構造を干渉リソグラフィーで造形する際に計測した結果から、式(5-5)、(5-8)を用いてフィッティングなどで取得可能である。そして、提案したモデルによって現像前後の回折効率の対応関係が得られれば、インプロセス計測で得られた現像前の回折効率を露光条件へフィードバックして、加工プロセスの制御が可能だと考えられる。

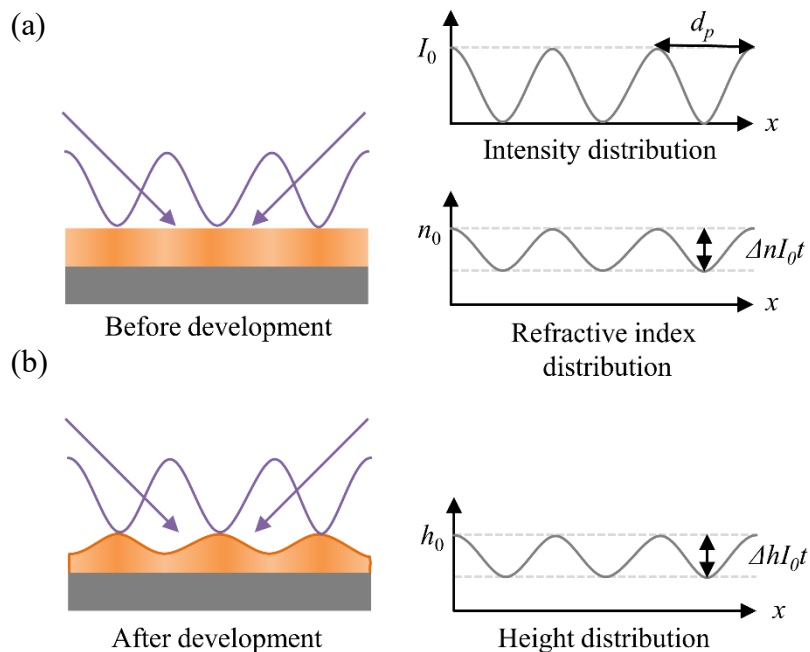


図 5-2 加工プロセス中のレジストのモデル化 (a)現像前 (b)現像後

## 5.4 単一周期回折格子のインプロセス計測基礎実験

### 5.4.1 インプロセス回折光計測装置の開発

前節で用いた回転ロイドミラー露光装置に、回折光をインプロセス計測する装置を組み込んだ。要求される機能として①露光自体に影響を及ぼさない②基板からの反射光である0次光と1次回折光の強度を取得可能、という2つの機能を満たす計測装置を開発した。まず、使用したレジスト AZP1350 が i-g 線(波長 365-436)用レジストであったため、十分波長の離れた波長 642 nm のレーザーを計測用の光源とした。また、計測波長  $\lambda_m = 642 \text{ nm}$  において、基板に用いたシリコンの屈折率は  $3.9 - 0.02i[92]$  であり基板による吸収も無視できる程度であるため、計測ビームによる発熱の影響も無視できると考えた。入射偏光は P 偏光とした。また、図 5-3 に示したように露光部との干渉を避け、0, 1 次光回折光の計測が可能ないように入射角  $26^\circ$  で計測ビームを入射した。また、4.3.1 節で述べたようにスカラー回折理論では、格子周期が小さすぎる場合は誤差が大きくなってしまうため、露光時の入射角  $\sim 6^\circ$ 、干渉縞周期  $A = \sim 1.5 \mu\text{m} (> \sim 2.5\lambda)$  を想定し、回折角  $\rho_1 = \sim 3^\circ$  程度を想定しディテクタを配置した。また、多重露光時にはミラー、サンプルの回転により回折角が微小に変化するため、その都度ディテクタを適切な位置に移動させ計測を行った。0 次光は基板とロイドミラーの鏡に反射し、ビームスプリッタを反射し計測した。

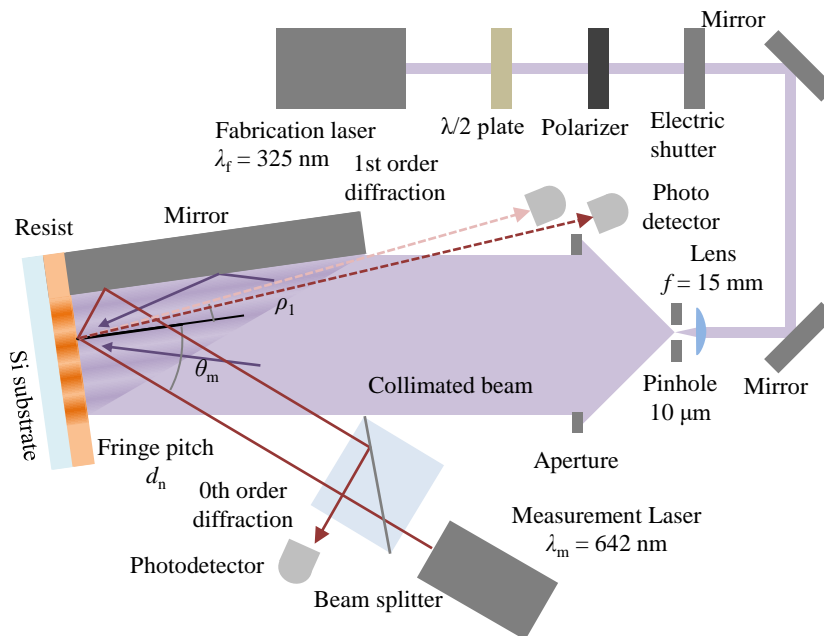


図 5-3 インプロセス回折効率計測装置

表 5-1 二重周期回折格子のインプロセス回折効率測定装置の素子

計測用光源	型番(メーカー)	LBX-642(Omicron)
	波長	642 nm
	出力	120 mW
	ビーム径	1.3 mm
	出力安定性	±0.5%
	偏光比	>100:1
ビームスプリッタ	型番(メーカー)	CCM1-BS013/M
	透過率: 反射率	50:50
ディテクタ 1	型番(メーカー)	Star Bright (Ophire)
ディテクタ 2	型番(メーカー)	S120VC (Thorlab)

### 5.4.2 インプロセス回折光計測実験の基礎実験

本節においては、二重周期回折格子のインプロセス計測、加工後の回折効率の推定を実証するために必要な基礎実験を行う。具体的には、単一周期回折格子の造形を行い、①物理モデル構築に必要な物理パラメータの取得②レジストの化学反応のリアルタイム計測③物理モデルの妥当性検証の3つを目指した。1点目に関しては、露光による内部屈折率の変化は一般的に微小( $10^{-2}$ ~ $10^{-4}$  オーダ)であるため、露光エネルギーを変化させたレジストをエリプソメータで計測することで、理論モデルの計算に必要な物理パラメータの取得を目指した。次に2点目として、レジストは種類により反応機構が異なるが、本研究では最終的に露光エネルギーのフィードバック制御を目指しているため、露光後にすぐに反応が終了するようなレジストである事が望ましい。そこで、ポジ型レジスト AZP1350 に対して露光中のレジストのリアルタイム計測を行い上記の事項を確認する。最後に3点目として、前節で構築したスカラー回折理論モデルの妥当性確認するために、単一周期回折格子を干渉リソグラフィにより造形し、露光中・現像後のレジストの回折特性を計測し、理論モデルとの比較を行った。

まず、レジストの屈折率を取得するために、エリプソメータ(J.A.Woollam 社の M-2000DI-T)で計測を行った。エリプソメータは、薄膜に白色光を照射し、偏光状態の変化に対して、フィッティングを行うことで屈折率や吸収係数を得る。インプロセス計測においては、波長 642 nm の屈折率  $n$  と吸収係数  $k$  が回折効率に影響を及ぼすため、上述の実験条件で同じように準備したレジストに対して、干渉させずに均一な波面での露光を行ったサンプルを、吸収ありの Bspline モデル[93]で波長 600-1690 nm のデータをフィッティングして屈折率を計測した結果を図 5-4 に示す。まず、計測データをフィッティングした際の平均二乗誤差 MSE を図 5-4(c)に示したが、エリプソメータ M-2000DI-T の解析ソフト CompleteEASE 上の解析では、 $MSE < \sim 10$  程度であればフィッティングの精度は十分である。そのため、露光エネルギー  $6 \text{ mJ/cm}^2$  以上でばらつきが大きいものの、いずれもフィッティング自体は問題ないと言える。また、図 5-4(d)に示した膜厚については、サンプル面内の分布により最大 7 nm 程度のばらつきが確認できる。薄膜多重干渉の式から計算すると、レジストの膜厚が最大 7 nm 程度ばらつ

くことで、反射率が10%程度ばらつく事が予想される。次に、図5-4(b)に示した屈折率  $n$  については、露光エネルギーが0のときが最も小さく、露光エネルギーが2~14  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ の間では、計測のばらつきが大きい。一般的にポジ型レジストでは、露光エネルギーに対して屈折率は減少することが知られているが、露光エネルギーに対する一定のトレンドは確認できない。レジスト内部の微小な屈折率変化が計測出来なかった原因として、エリプソメータの測定のばらつきやフィッティングによる影響などが考えられる。また、図5-4(a)に示した吸収係数  $k$  は、前節の理論モデルでは、無視していたが露光エネルギー0~2  $\text{mJ}/\text{cm}^2$ の範囲で  $k=0.01\sim 0.03$ のオーダーとなることが確認できる。そして、露光エネルギーが上昇するのに従って吸収係数  $k$  は、ほぼ0に収束していく。これは、光を吸収し反応を起こす感光物質が、化学反応により分解されていくために生じるブリーチング現象と一致している。波長  $\lambda_m = 642 \text{ nm}$  膜厚  $d = 560 \text{ nm}$ 、Si基板屈折率( $n_{\text{sub}} = 3.86 - 0.018i$ )として、レジスト屈折率を  $n_0 = 1.636, 1.636 - 3.0 \cdot 10^{-4}i$ と変化させたときの薄膜多重干渉における理論的な反射率の差は0.6%程度と計算できる。そのため、以降の実験においてこの吸収係数  $k$  が、どの程度計測結果や理論モデルとの誤差に影響するかは以降のインプロセスでの計測実験において確認する必要がある。また、これらのエリプソメータの計測結果から、物理パラメータとして膜厚  $d = 560 \text{ nm}$ 、 $n_0 = 1.636$  を取得した。

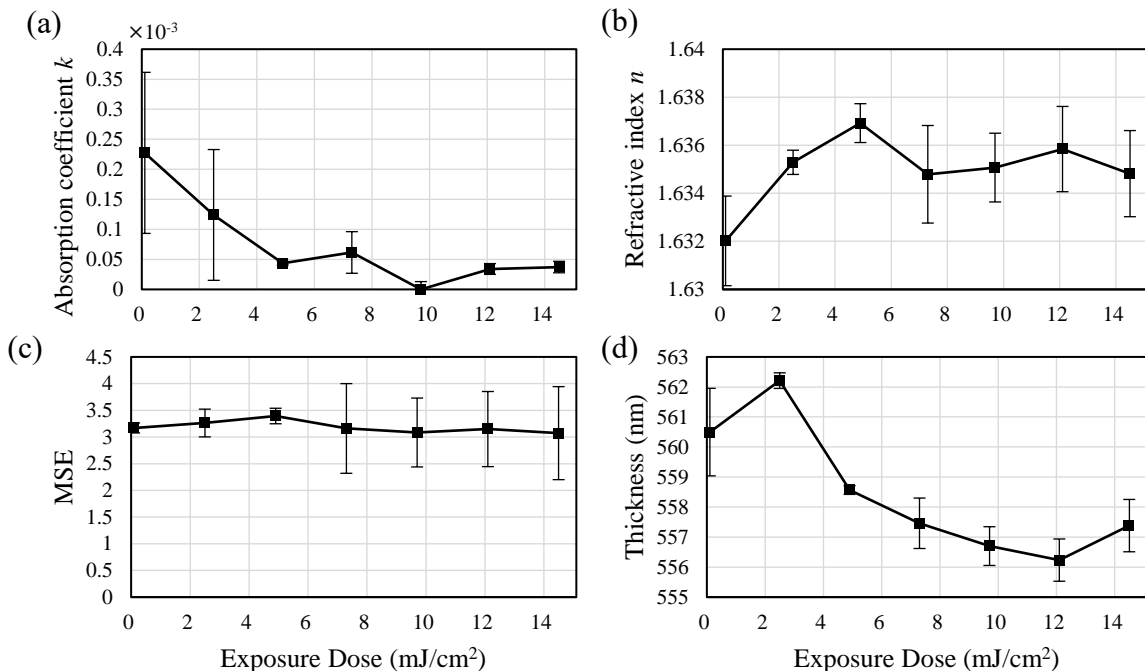


図 5-4 エリプソメータの計測結果 (a)吸収率  $k$  (b)屈折率  $n$  (c)平均二乗誤差 MSE (d)膜厚  $d$

次に、②レジストの化学反応のリアルタイム計測実験として、ポジ型レジスト AZ P1350 を用いて干渉リソグラフィの露光中の回折効率計測を行った。

## 【実験目的】

- ① 内部屈折率の微小な変化によって生じる回折効率は、非常に小さく  $10^{-6}$ ~ $10^{-4}$  程度と報告されているが、本実験装置で計測可能かを確認する。
- ② 露光直後の回折効率の変化から、化学反応の時間応答を確認する。

## 【実験の手順】

## ① 基板の準備

実験の手順としては、Si 基板を 3-4 cm 角に切断したものをアセトンで洗浄した後、HMDS を数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで  $100^{\circ}\text{C}$  で 1 分加熱し、疎水化処理をした。ポジ型レジスト AZ P1350 を 2000 rpm で膜厚 560 nm になるようにスピコートした後、 $100^{\circ}\text{C}$  で 6 分間ソフトベークした。

## ② 露光中の回折光を計測

基板を設置し、造形用の HeCd レーザー(波長  $\lambda_f = 325\text{ nm}$ , 入射強度  $0.24\text{ mW/cm}^2$ )を入射角  $\theta = 5.9^{\circ}$ , 理論干渉縞周期 1580 nm で露光時間を 140 秒露光した。各入射条件に対して、現像前の 0, 1 次光の回折光強度  $P_0, P_1$  を 0.5 秒間隔で 170 秒間計測した。計測用レーザーは、波長  $\lambda_m = 642\text{ nm}$  の半導体レーザーを強度 16.6 mW, 基盤に対して入射角  $\theta_m = 26^{\circ}$ , P 偏光となるように入射した。1 次回折角は  $\rho_1 = 2.7^{\circ}$  となり、十分小さな回折角が得られるため、スカラー回折理論を十分適用可能な設定とした。

露光中の 0, 1 次回折効率  $P_0, P_1$  の変化を図 5-5 に示した。0 次回折効率  $P_0$  は、露光を行っていない段階で回折効率(反射率)19.4%であり、実験条件( $\lambda_m = 642\text{ nm}$ ,  $\phi_m = 26^{\circ}$ ,  $d = 560\text{ nm}$ ,  $n_{\text{resist}} = 1.636$ ,  $n_{\text{substrate}} = 3.86 - 0.018i$ , P 偏光)を想定した薄膜多重干渉の式から計算される反射率 19.5%とよく一致している。以降理論モデルにおける反射率  $R^2 = 0.194$  として計算した。露光時間が増加するにつれて、徐々に増加し 140 秒露光後~4.1%増加した。スカラー回折理論モデルでは図 4-2(b)に示したように 0 次 Bessel 関数に従い、露光時間に対して単調減少になることが予想されるが、実験的にはわずかに増加し理論モデルとの誤差が生じている。これは、前述のエリプソメータでの計測結果から、吸収係数  $k$  が露光とともに減少したため透過率が上昇したと考えられる。

次に、1 次回折効率  $P_1$  は指数関数的に増加し、露光が終わると同時に急激に変化が緩やかになることがわかった。露光後に 30 秒経った 170 秒付近では回折効率  $P_1$  の変化は殆どなくなり、露光直後と比べ 4%程度の増加にとどまった。この結果から、ポジ型レジスト AZP1350 の反応時間が十分早く、インプロセス計測での使用に適していると判断した。また、回折効率自体は非常に小さい( $10^{-5}$  オーダ)ため、高ダイナミックレンジのディテクタによる計測の必要性が明らかになった。

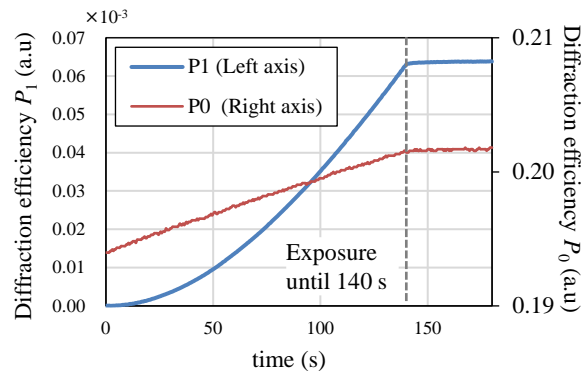


図 5-5 露光中、露光後のレジストの回折効率変化

次に、前節で構築した露光中・現像後回折格子のスカラー回折理論モデルの妥当性検証や物理パラメータの取得を目指して、基本となる単一周期回折格子のインプロセス計測を行った。特に、スカラー回折理論モデルでは、5.3節で記載した4つの物理的な仮定のもとで回折効率の導出を行ったため、実験結果と比較してモデルの妥当性を検証する必要がある。また、モデル構築において単位露光エネルギーあたりのレジストの屈折率変化量  $\Delta n$  を仮定したが、エリプソメータでの計測ではばらつきが大きく計測出来なかったため、理論モデルによって実験結果をフィッティングすることで  $\Delta n$  の取得を目指した。また、5.3節で定義した現像前の0,1次回折効率  $P_{0,1}$  と現像後の0,1次回折効率  $Q_{0,1}$  を計測して、理論モデルと比較することで妥当性の検証を行った。

#### 【実験目的】

- ① 構築した露光中・現像後のスカラー回折理論モデルの妥当性を検証する
- ② 理論モデルの計算に必要な物理パラメータを取得する。

#### 【実験の手順】

##### ① 基板の準備

実験の手順としては、Si基板を3-4 cm角に切断したものをアセトンで洗浄した後、HMDSを数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで100°Cで1分加熱し、疎水化処理をした。レジスト(AZ P1350)を2000 rpmで膜厚560 nmになるようにスピコートした後、100°Cで6分間ソフトベークした。

##### ② 露光中の回折光を計測

基板を設置し、造形用のHeCdレーザー(波長  $\lambda_f = 325$  nm, 入射強度  $0.24$  mW/cm<sup>2</sup>)を入射角  $\theta = 5.9^\circ$ 、理論干渉縞周期1580 nmで露光時間を2-20秒まで2秒刻みで変化させた。各入射条件に対して、現像前の0,1次光の回折光強度  $P_0, P_1$  を計測した計測用レーザーは、波長  $\lambda_m = 642$  nmの半導体レーザーを強度16.6 mW、基盤に対して入射角  $\theta_m = 26.0^\circ$ 、P偏光となるように入射した。1次回折角は  $\rho_1 = 2.7^\circ$  となり、十分小さな回折角が得られるため、スカラー回折理論を十分適用可能な設定とした。

##### ③ 現像

現像液(AZ Developer)で、室温 24° C、60 秒静止現像した。

#### ④ 現像後の回折光を計測

現像後の構造を、インプロセス計測時と同じ入射条件になるように、再度露光装置に設置し、現像後の 0, 1 次光の回折光強度  $Q_0, Q_1$  を計測した。

まず、図 5-6 (b)露光後 0 次回折効率  $P_0$  は、実験値では 3-4 cm 角の基板の異なる箇所計測を行っているため、エリプソメータの計測結果からわかるように、各データに対して最大で 10% 程度の反射率のばらつきが生じることが予想される。また、理論的な変化率は、露光エネルギーが  $0 \text{ mJ/cm}^2$  から  $4.8 \text{ mJ/cm}^2$  に変化したときでも 0.033% 程度と小さく、膜厚による反射率のばらつきが支配的であったため、レジスト内部の回折による 0 次光への変化は計測できなかった。次に、現像前の 0, 1 次回折効率  $P_{0,1}$  について、計測結果を図 5-6 に示した。まず、図 5-6 (b)に示した露光後の 1 次回折効率  $P_1$  については、そして、物理パラメータ取得の為に、理論曲線とのフィッティングを行い、 $\Delta n = 9.5 \cdot 10^{-5}$  としてスカラー回折理論モデルの計算結果と実験での計測値がよく一致する事が確かめられた。

次に、現像後の回折格子で得られた回折効率の計測結果を図 5-7 に示した。まず、図 5-7(b)に示した現像後 1 次回折効率  $Q_1$  は露光エネルギー  $4 \text{ mJ/cm}^2$  程度までは、理論値と良く一致しており、 $3 \text{ mJ/cm}^2$  程度で最大値を取ることが確認できた。しかし、露光エネルギーが  $4 \text{ mJ/cm}^2$  を超えると計測値は  $Q_1 = 0.06$  でほぼ一定なのに対して、理論値は減少し誤差が生じている。これは、レジストの薄膜多重干渉によって生じる反射率  $R$  を、露光時間や現像に寄らず一定としていた事が原因だと考えられる。実際の実験結果では、露光エネルギーが高くなると共に現像で溶解する干渉縞高さが増加するため、有効的なレジストの膜厚と共に反射率  $R$  も変化していると考えられる。また、現像後 0 次回折効率  $Q_0$  に関しては、理論値と大きく異なった計測結果となった。そこで、RCWA シミュレーションを用いて図 5-8 に示したモデルでの挙動を計算した結果を図 5-7 (a)に合わせて示した。その結果、定量的には違いがあるものの、曲線の極小値を取る露光エネルギーやトレンドが一致しており、計測結果が破綻している訳ではなく、スカラー回折理論による理論計算値に誤差が含まれていると考えられる。これは、4.3.1 節に示したようにスカラー回折理論モデルの前提条件の一つである「回折角が小さい」に対して、入射角  $\theta_m$ 、回折角  $\rho_0$  が大きくなり過ぎた事が原因だと考えられる[98]。これらの結果から、今回の入射条件において露光中・現像後の 1 次回折効率  $P_1, Q_1$  は、スカラー回折理論モデルとよく一致していることがわかった。さらに、0 次回折効率に関しては、露光中の回折効率  $P_0$  ではほとんど変化が見られず、現像後の回折効率  $Q_0$  は、入射、回折角が大きいために理論モデルとは一致しなかったが、厳密なベクトル電磁場解析とは定性的に一致した。



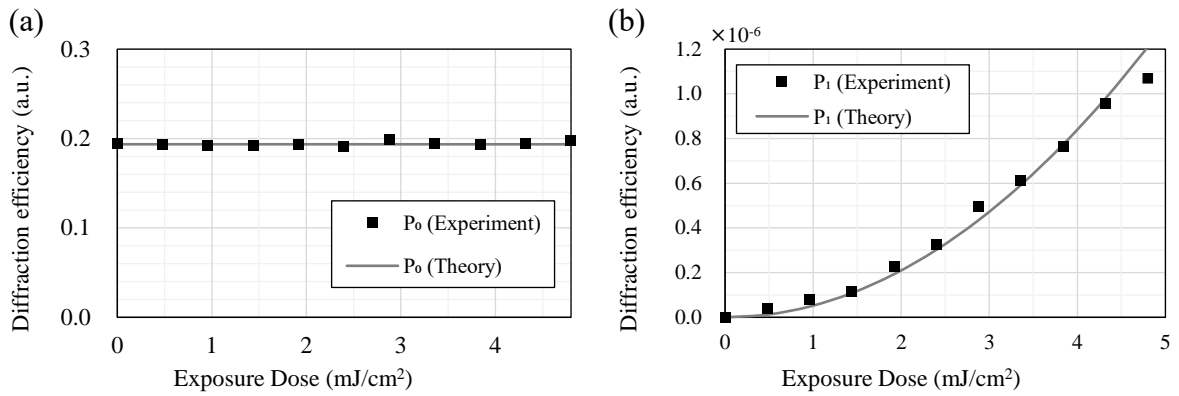


図 5-6 現像前の回折効率 (a)0 次回折効率  $P_0$  (b) 1 次回折効率  $P_1$

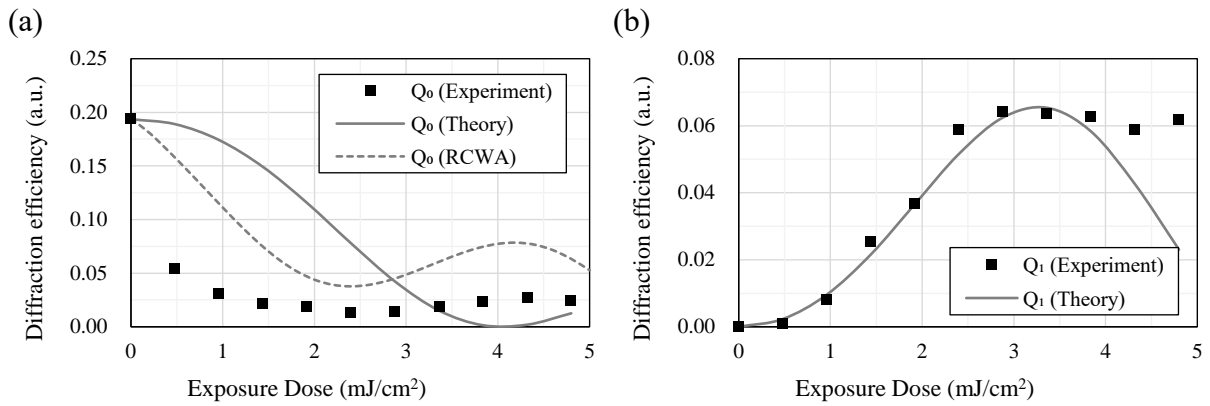


図 5-7 現像後の回折効率 (a)0 次回折効率  $Q_0$  (b) 1 次回折効率  $Q_1$

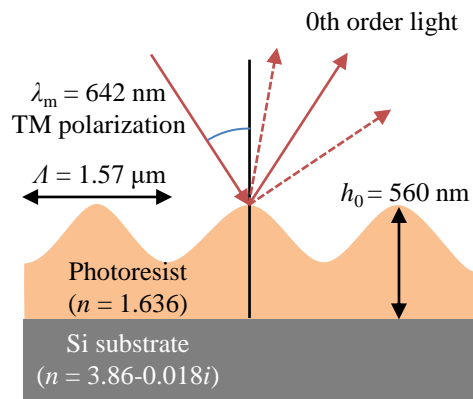


図 5-8 ベクトル電磁場解析の単一周期回折格子モデル

本実験において前述した3つの目的に関しては、以下のようにそれぞれ結論付けられる。

#### 【本節の実験の結論】

##### ①理論モデルの計算に必要な物理パラメータの取得

エリプソメータの計測結果では、レジストの感光による屈折率変化  $\Delta n$  を計測することは出来なかった。しかし、単一周期回折格子の露光実験において理論モデルを用いて、実験結果をフィッティングする形で屈折率変化量を取得した。図 5-9 にエリプソメータの計測結果と、実験結果を理論モデルでフィッティングして得られた屈折率変化を比較したものを示す。その結果、図 5-4 に示したように、露光エネルギーが小さく ( $< 4 \text{ mJ/cm}^2$ ) 吸収係数  $k$  が大きい ( $> 0.1 \cdot 10^{-3}$ ) 領域では、フィッティングの結果と一致しない。しかし、露光エネルギーが十分大きくなり ( $> 4 \text{ mJ/cm}^2$ )、吸収係数が小さく ( $< 0.1 \cdot 10^{-3}$ ) レジストが透明とみなせる領域では、計測のばらつきが大きいものトレンドは似ている。特に、エリプソメータの屈折率算出方法では、吸収係数  $k$  の影響が屈折率  $n$  の結果に影響するため露光エネルギーが小さい領域でグラフが一致しなかったと考えられる。そのため、エリプソメータの計測のばらつきの範囲で、理論モデルのフィッティングによって得られた屈折率変化量  $\Delta n$  は妥当だと考えられる。

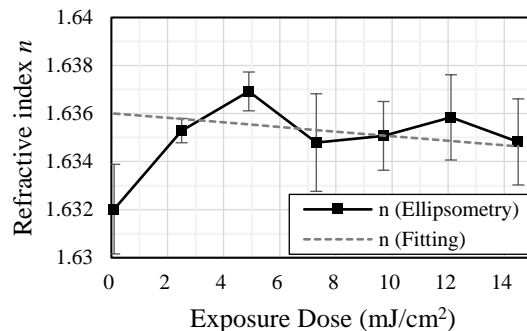


図 5-9 エリプソメータ計測結果とフィッティングによる推定屈折率変化量の比較

##### ②レジストの化学反応のリアルタイム計測

使用したポジ型レジスト AZP1350 に関しては、140 秒の露光後に回折光の増加は微小であり (30 秒で~4%程度)、反応スピードが十分早く本研究の用途に適していると考えられる。使用したレジストは、露光後のポストバークが不必要な種類であったが、ポストバークが必要で、加熱時に反応が完了するようなレジストへの適用が可能かどうかなど、今後検討する必要がある。

##### ③理論モデルの妥当性検証

露光中・現像後のレジストを正弦波状のプロファイルを持つ回折格子と考えることで、インプロセス計測・加工後の光学特性の予測を目指したが、入射角  $\theta$ 、回折角  $\rho_m$  が大きい条件では、理論モデルと実験結果の誤差が見られた。しかし、本実験の露光条件では、1 次回折光の回折角が  $\rho_1 = \sim 3^\circ$  と十分小さく、実験値と理論モデルは、露光

中・現像後の回折効率  $P_1$ ,  $Q_1$  がよく一致した。そのため、露光中・現像後の 1 次回折効率を  $P_1$ ,  $Q_1$  を理論モデルで対応させることで、現像後の最終的な機能と露光中のインプロセス計測結果を紐付けて、露光エネルギーのフィードバック制御や環境の擾乱を検知するなどの高精度な加工の実現が期待される。

## 5.5 二重周期回折格子のインプロセス計測方法の実証

本節では、わずかに周期の異なる干渉縞を 2 回露光して得られる二重周期回折光の現像前後の回折効率を計測し、5.3 節で構築した理論モデルで予測される結果との比較を行った。また、前述の通りうなりを伴う二重周期構造には、解析領域の問題から従来の数値解析の適用が困難であるため、理論的なモデルの構築が非常に重要である。そこで、構築した理論モデルの妥当性の確認を行い、インプロセス計測や加工後の光学応答の推定への適用を目指した。

### 【実験目的】

- ① 二重周期回折格子の物理モデルから計算される回折効率と実験結果を比較し、物理モデルの妥当性を確認する。
- ② 二重周期回折格子のインプロセス計測結果から、露光時の光学的応答の変化など実験的な知見を得る。

### 【実験の手順】

#### ① 基板の準備

実験の手順としては、Si 基板を 3-4 cm 角に切断したものをアセトンで洗浄した後、HMDS を数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで 100° C で 1 分加熱し、疎水化処理をした。レジスト(AZP1350)を 2000 rpm で膜厚 560 nm になるようにスピコートした後、100° C で 6 分間ソフトベークした。

#### ② 露光中の回折光を計測

光源は HeCd レーザー(波長  $\lambda_f = 325$  nm, 入射強度 0.24 mW/cm<sup>2</sup>)を用いた。入射角  $\theta_{1,2} = 5.9^\circ, 5.6^\circ$ , 理論干渉縞周期  $A_{1,2} = 1580, 1665$  nm の 2 つの周期の簡素湯島を重ね合わせた。そして、総露光エネルギーは一定で、それぞれの干渉縞の露光時間  $t_1, t_2$  を調整し、露光エネルギー  $D_{1,2}$  を変えて図 5-7 に示した入射条件で露光した。条件 4 に関しては、比較の為に単一周周期回折格子の造形を行った。そして、露光エネルギー比を変化させた各条件で、露光中の(1, 0), (0, 1)次回折光強度  $P_{1,0}, P_{0,1}$  を計測した。計測用レーザーは、波長  $\lambda_m = 642$  nm の半導体レーザーを強度 16.6 mW, 基板に対して入射角  $\theta_m = 26.0^\circ$ , P 偏光となるように入射した。1 次回折角は  $\rho_1 = 2.7, 3.7^\circ$  となり、十分小さな回折角が得られるため、スカラー回折理論を十分適用可能な設定とした。

#### ③ 現像

現像液(AZ Developer)で、室温 24°C、60 秒静止現像した。

④ 現像後の回折光を計測

現像後の構造を、インプロセス計測時と同じ入射条件になるように、再度露光装置に設置し、現像後の(1, 0), (0, 1)次光の回折光強度  $Q_{1,0}$ ,  $Q_{0,1}$  を計測した。

表 5-2 露光エネルギー比を変えた実験条件

		条件 1	条件 2	条件 3	条件 4
露光エネルギー比 $D_2/D_1$		1.0	0.60	0.33	0
1 回目の露光：	入射角 $\theta_1$ (°)	5.9	5.9	5.9	5.9
干渉縞 1	露光エネルギー $D_1$ (mJ/cm <sup>2</sup> )	1.92	2.40	2.88	3.84
2 回目の露光：	入射角 $\theta_2$ (°)	5.6	5.6	5.6	5.6
干渉縞 2	露光エネルギー $D_1$ (mJ/cm <sup>2</sup> )	1.92	1.44	0.96	0

まず、現像後に得られた二重周期回折格子を AFM 計測した結果を図 5-10 に示す。まず、条件 1 の露光エネルギー比が 1:1 に近い結果では、 $\sim 50 \mu\text{m}$  程度の干渉縞のうなりがはっきりと確認できる。露光エネルギー比が 1:1 から離れるに従って、うなりによるマクロな高さの変化が小さくなり、徐々に単一周周期構造である条件 4 の結果に近づいて行く。また、単一周周期での造形結果から、干渉縞周期は  $\lambda_{1,2} = 1570, 1680 \text{ nm}$  となり、入射角の誤差から理論値の  $\lambda_{1,2} = 1580, 1665 \text{ nm}$  と僅かに異なる結果となった。そして、 $\lambda_{1,2} = 1570, 1680 \text{ nm}$  から計算されるうなりの周期  $47.8 \mu\text{m}$  と計測結果はよく一致する。

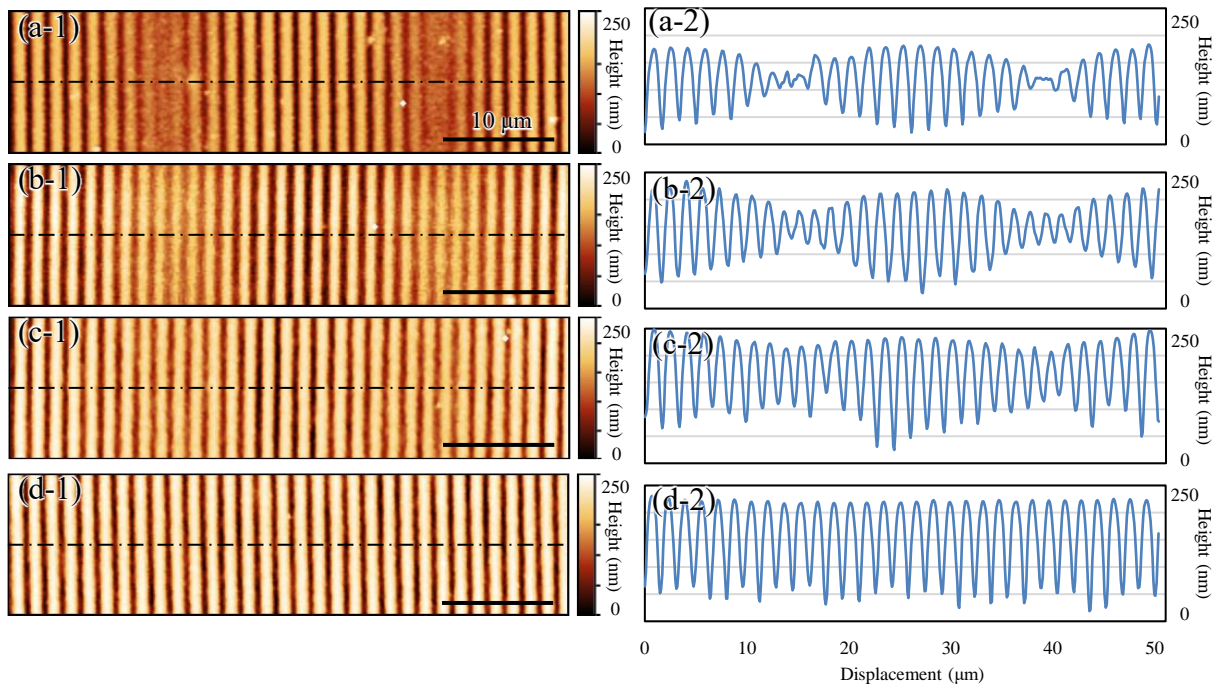


図 5-10 二重周期回折格子の AFM 計測結果.2 次元計測像と断面プロファイル

(a-1,2)条件 1 (b-1,2)条件 2 (c-1,2)条件 3 (d-1,2s)条件 4

次に、現像前後の回折効率の計測結果を図 5-11 に示す。図 5-11(a)に示した条件 1 の回折効率比  $D_2/D_1$  が 1:1 の条件で最大 15%ほど理論値から低下しているものの、実験値と理論値は、定量的に良く一致している。回折効率が  $10^{-6}$  オーダと非常に低いため、計測時のノイズの影響を低減させることでより精度の良い計測結果が期待される。次に、図 5-11(b)に示した現像後の回折効率計測結果でも、同じく条件 1 の結果で 16%ほど理論値からの誤差が確認できるが、条件 2, 3 の結果については、誤差 2%以内に収まっている。さらに、理論モデルでは、二重周期回折格子の高さから位相差を計算しているため、回折効率が理論と一致するという事は、形状ある程度一致しているといえる。また、二重周期回折格子の最終的な機能としては、形状ではなく回折効率として表れるため、形状を精度良く加工する方法ではなく、機能を直接計測、予測しながら加工を行うといった直接的な加工プロセスの管理も可能となる。さらに、回折光の観察像を同じく図 5-11 (b)に示したが、露光エネルギー比が 1:1 の条件 1 では、中央の 2 つの回折光スポットが同程度の明るさなのに対して、条件 2,3 では、露光エネルギーが多い干渉縞周期  $d_1$  に由来する回折スポットの明るさが相対的に強くなっていくことが分かる。

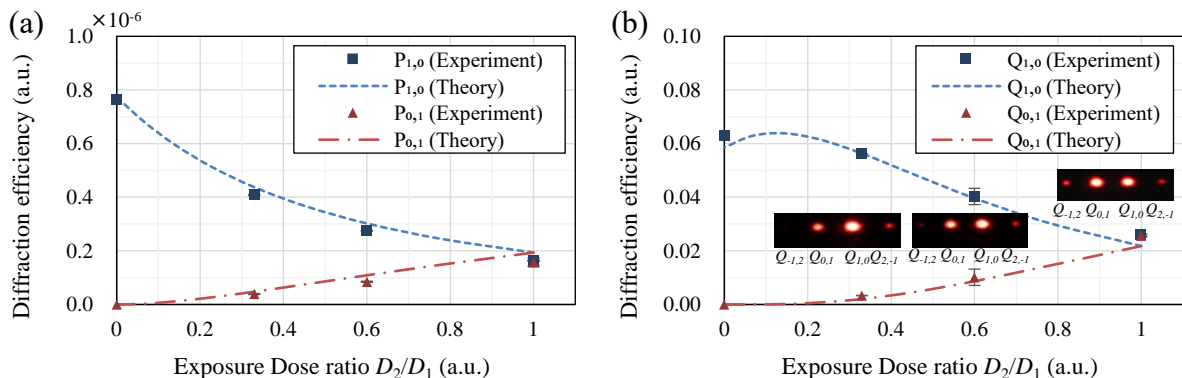


図 5-11 (1, 0), (0, 1)次回折効率の計測結果(a)露光中  $P_{1,0}$ ,  $P_{0,1}$  (b)現像後  $Q_{1,0}$ ,  $Q_{0,1}$

また、今後より高精度化するための改善点として以下項目が考えられる。

【誤差の原因，モデル，計測法の改善点】

- ① レジストの非線形な感度曲線の影響で、加工形状が正弦波からのずれているため、正弦波と仮定した理論モデルからの誤差が生じた。もし、加工形状を正弦波状に近づけるのであれば、線形な感度曲線をもつレジストの選定が必要となる。
- ② レジストと Si 基板界面からの反射によって、レジスト内部に高さ方向の定在波効果が生じていると考えられる。2章でも述べたように、レジストの厚み方向に定在波ができることで、高さ毎に現像のスピードが変化するため、単純な感度曲線と実際に得られる形状の誤差が生じると考えられる。本実験では、基板からの反射、回折光の強度を得るために、定在波効果を防止するための反射防止膜をコートせずに実験を行った。そのため、定在波効果を防ぐ反射防止コートをした上で、ロック

イン検出法などで高感度に信号を検出するなどの工夫が必要だと考えられる。このような改善点は考えられるものの、二重周期回折格子の現像前後の回折効率をスカラー回折理論モデルから、最大誤差 16%程度で予測、計算可能なことを初めて実証した。この結果から、理論モデルを介して、現像前のインプロセス計測値から、現像後の高さ、回折効率を予測可能になるため、露光条件へのフィードバック制御などによる加工プロセスの改善が可能となった。

## 5.6 結言

これまで、単一周周期回折格子に対して、干渉リソグラフィのインプロセス計測を行った研究例はいくつかあったが、それを二重周期回折格子に適用した例はなかった。さらに、本研究では、多重周期化した際に、得られる回折効率が多次元化する問題を明らかにした結果、単一周周期構造でのインプロセス計測、加工制御方法をそのまま適用することは難しいことが分かった。そこで、前章で構築した二重周期回折格子モデルをインプロセス計測、加工プロセス制御へ適用する方法を提案、開発した。まず、干渉リソグラフィの加工プロセス中のレジストを位相回折格子として扱い、前章で導出した二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルを適用した。さらに、エリプソメータでのレジストの計測や単一周周期回折格子のインプロセス回折光計測の結果を理論モデルでフィッティングすることで、理論モデルとよく一致する物理パラメータを取得できた。他にも、露光中のレジストの回折効率をリアルタイムで計測することで、レジストの反応スピードが十分早く、露光工程でのフィードバック制御が十分適用可能だと考えた。そして、得られた物理パラメータと理論モデルから、二重周期回折格子のインプロセス、ポストプロセス計測を行い、実験で得られた回折効率が理論とよく一致することを確認できた。これらの結果から、インプロセス回折光計測結果と加工後の回折効率が対応するため、目的の加工形状からインプロセスでの回折光を推定し、その目標回折効率となるように加工エネルギーを制御することで高精度な加工が期待できる。

また、本研究においては 3 mm 角の露光部に対して、ビーム径 1.3 mm の計測ビームでの計測を行った。そのため、数 cm~数十 cm という大型の回折格子を加工する際には、露光部で複数の点を計測することが望ましい。そこで、大面積回折格子のインプロセス計測には、図 5-12 のように回折素子(SLM, 回折格子等)でビームを分割して露光部に照射する方法などが考えられる。回折光も 2 次元のアレイ状に得られるため、CCD などの二次元撮像素子で各回折光の強度を計測することで、面内での露光エネルギーのばらつきなどが計測可能だと考えられる。

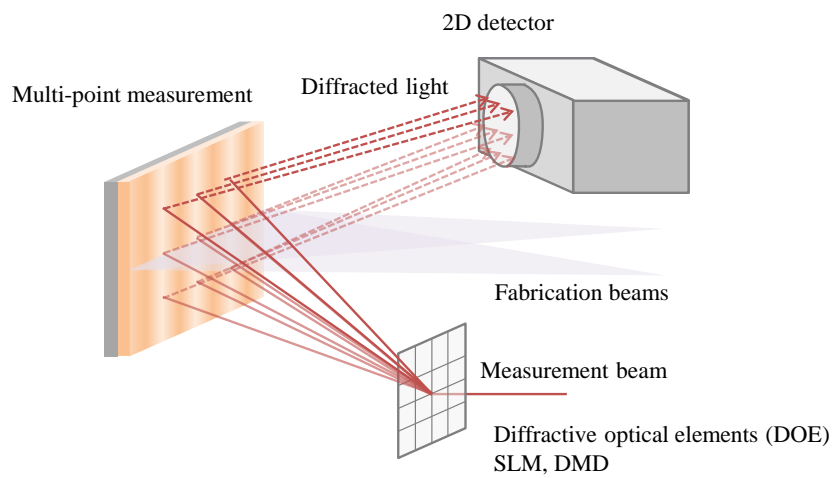


図 5-12 大面積回折格子の多点インプロセス計測の模式図





# 第6章 多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーの開発

---

6.1 諸言 .....	86
6.2 多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーの提案 .....	86
6.3 エバネッセント光干渉の理論解析 .....	87
6.4 多光束エバネッセント光干渉露光装置の開発 .....	90
6.5 二光束エバネッセント光干渉による基礎造形実験 .....	92
6.5.1 サブ波長格子構造の造形実験 .....	92
6.5.2 造形サンプルの複屈折性評価 .....	93
6.6 四光束エバネッセント光干渉によるナノ・マイクロ二重周期構造の造形実験....	96
6.7 結言 .....	100

---

## 6.1 諸言

本章では、本論文における3つ目の研究課題として、100 nm オーダの微細性と多重周期性を両立した新しい干渉リソグラフィの開発を行った。特に、超高 NA 露光によるエバネッセント光を多光束干渉させることで、従来の空气中での干渉リソグラフィでの加工微細性を突破し、多重周期性の両立を実現する多光束エバネッセント光干渉リソグラフィを提案した。そして、はじめに提案したエバネッセント光による多光束干渉の特性を理論的な解析により明らかにし、次に4光束エバネッセント光干渉装置を開発、実証実験を行い、次世代光学機能素子の加工実現性を議論した。

## 6.2 多光束エバネッセント光干渉リソグラフィの提案

次世代の半導体露光装置、~100 nm オーダの次世代光学素子や半導体プロセスへの応用を目指し、2006年頃から Anton[69], Murukeshan ら[70], Smith ら[72]によって、エバネッセント光を用いた干渉リソグラフィについては様々な報告がなされていた。しかし、いずれの研究においても、単一周期構造の微細性が議論の中心であり、次世代光学機能構造に求められるような多重周期性をもつ複雑な形状については十分な検討がなされていなかった。そこで、本研究ではエバネッセント光干渉リソグラフィによるサブ波長以下の高分解能とマイクロオーダの周期を組み合わせた、(空間周波数のダイナミックレンジが広い)多重周期構造の造形を目的とした多光束エバネッセント光干渉リソグラフィを提案した[94]。図 6-1 に示したように、複数本のビームにより生成したエバネッセント光を重ね合わせることで、高 NA での微細な干渉縞とマイクロオーダの周期構造を一括で造形できる。波長よりも十分小さい構造単位がマイクロオーダで整列・変調しているような階層的な構造の造形も可能となる。そのため、可視光用のメタサーフェスなどの応用に対して十分な微細性とマクロな周期性を両立した方法となると考えられる。本研究では、多光束干渉での多重周期構造の造形を目指しているため、一例として4光束エバネッセント光干渉について理論的に解析を行うと共に、実証実験を行った。

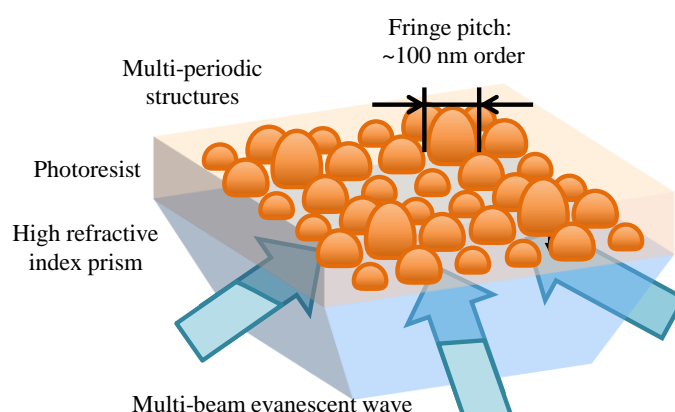


図 6-1 多光束エバネッセント光干渉の模式図

### 6.3 エバネッセント光干渉の理論解析

次に、多光束エバネッセント光干渉で得られる強度分布特性を明らかにするために、理論解析を行った。多光束干渉を表す  $n$  光束エバネッセント光の干渉強度分布は以下の様に表される。

$$\begin{aligned}
 I(x, y, z) &= \left| \sum_a^n \mathbf{E}_a \right|^2 \\
 &= \sum_a^n A_a^2 + 2 \sum_{a < b}^n A_a A_b \mathbf{P}_a \cdot \mathbf{P}_b \cos[(\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a) \cdot (x, y, 0) + (\alpha_b - \alpha_a)] \exp[-(\beta_a \\
 &\quad + \beta_b)z]
 \end{aligned} \tag{6-1}$$

この式から、波数ベクトル  $\mathbf{k}_{a,b}$  を持った入射光で生じたエバネッセント光干渉で生じる  $xy$  平面内での干渉縞ピッチは  $\Lambda_{ab} = 2\pi/|\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a|$  の様に表すことができる。そのため、うなりを伴うような多重周期構造の造形を目指す場合には、入射光の入射角  $\theta_n$  や方位角  $\phi_n$  を変えることで、わずかに干渉縞周期を変化させれば良いことがわかる。このときの、 $z$  方向の強度は、減衰定数  $\beta_{a,b} = k_{a,b}(n_1 \sin^2 \theta_{a,b} - n_2^2)^{1/2}$  によって挙動が決まる。減衰定数  $\beta_{a,b}$  は、入射角  $\theta_{a,b}$  が、臨界角  $\theta_c = \arcsin(n_2/n_1)$  を超えたときに実数となるため、エバネッセント光の強度は  $z$  方向に沿って指数関数的に減衰する。減衰定数自体は、入射角  $\theta$  と 2 つの媒質の屈折率  $n_{1,2}$ 、波長  $\lambda$  によって制御が可能である。通常の干渉リソグラフィにおいては、レジスト内部を光が伝播したために、2 章で述べたようなレジストの高さ方向の定在波効果によって加工形状が悪化するという問題が生じていた。しかし、エバネッセント光干渉リソグラフィにおいては、露光するレジストに染み出す深さを入射角などで制御が可能となるため、伝搬光による定在波効果を抑える事が可能だと考えられる。反対に、エバネッセント光の高さ方向の減衰によって露光深さが制限されることも考えられるが、基板に導波路を形成することでエバネッセント光のレジストへの染み出し長を改善し、微細性と露光深さを両立する方法なども提案されている[95]。

次に、実際の実験環境を想定した 4 光束エバネッセント光干渉によるナノ・マイクロ 2 重周期構造の強度分布を理論的に解析する。まずは、最も基本的な配置例として、すべての入射光の波数ベクトルが同一入射面内に存在する場合(図 6-3)を考える。以降、波長  $\lambda = 488 \text{ nm}$ 、入射側屈折率  $n_1 = 1.81$ 、レジスト屈折率  $n_2 = 1.70$  として、4 つのビームは振幅  $A_{1-4} = 1$ 、S 偏光( $\psi_{1-4} = \pi/2$ )、初期位相  $0(\alpha_{1-4} = 0)$  として解析を行った。そして、それぞれのビームの入射角、方位角を  $(\theta_{1-4}, \phi_{1-4}) = (70.5^\circ, 0^\circ), (70.5^\circ, 180^\circ), (86.9^\circ, 0^\circ), (86.9^\circ, 180^\circ)$  とした。そして、これらの条件の下、4 本のビーム  $\mathbf{E}_{1-4}$  を足し合わせた際に生じる干渉強度分布は、式(6-1)から計算され、図 6-1(b)のようになる。前述のように 4 ビーム干渉においては、 $4C_2 = 6$  通りの干渉が生じている。そこで、それぞれの干渉縞がどのような強度分布になっているかを図 6-3 に示した。それぞれのエバネッセント光同士の干渉による  $xy$  平面での干渉縞ピッチは、 $\Lambda_{12} = 143 \text{ nm}, \Lambda_{13} = \Lambda_{24} = 4826 \text{ nm}, \Lambda_{14} = \Lambda_{23} = 139 \text{ nm}, \Lambda_{34} = 135 \text{ nm}$  となる。このとき、入射角差が  $\theta_3 - \theta_1 = 15.4^\circ$  とな

る組み合わせで、 $\Lambda_{13} \sim 4.8 \mu\text{m}$  という他のサブ波長周期 $\sim 140 \text{ nm}$  の約 34 倍大きなマイクロオーダの周期が得られることがわかる。この強度分布がすべての電場の重ね合わせとして図 6-3(b)のように生じる大きな周期性と一致している。さらに、それぞれの 2 光束干渉におけるエバネッセント光の染み出し長は、 $(\beta_1 + \beta_2)^{-1} = 267 \text{ nm}$ ,  $(\beta_1 + \beta_3)^{-1} = (\beta_2 + \beta_4)^{-1} = (\beta_1 + \beta_4)^{-1} = (\beta_2 + \beta_3)^{-1} = 102 \text{ nm}$ ,  $(\beta_3 + \beta_4)^{-1} = 63 \text{ nm}$  となっている。入射角が大きくなるに従って、染み出し長が現象していることが、得られた強度分布(図 6-3)からもわかる。

次に、エバネッセント光の波数ベクトル  $\mathbf{k}_n$  を変化させ、より複雑な 2 次元パターンを 4 光束エバネッセント光干渉において設計する。まず、2 次元の干渉パターンを設計するにあたり考えなければいけないことは、独立に設計することができる干渉縞の逆格子ベクトルの数である。前述の通り、2 つの波数ベクトルの差で干渉縞の逆格子ベクトルが決まるので、4 光束干渉においては、3 つの逆格子ベクトルを独立に設計することが可能である。そのため、ナノ・マイクロ 2D 干渉パターンの設計例として、①1D マイクロ格子+2D ナノドットパターン②2D マイクロドット+1D ナノ格子の 2 種

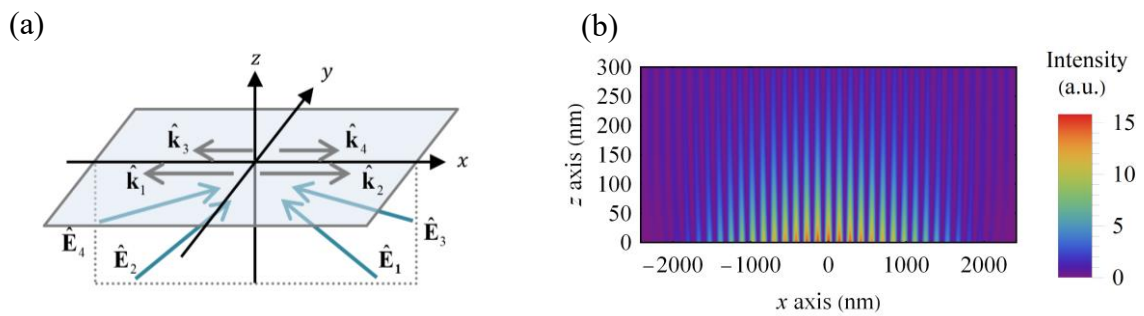


図 6-3 二重周期 1 次元格子構造の入射モード図(a)入射ビームのモード図(b)干渉強度分布 $|E_1 + E_2 + E_3 + E_4|^2$

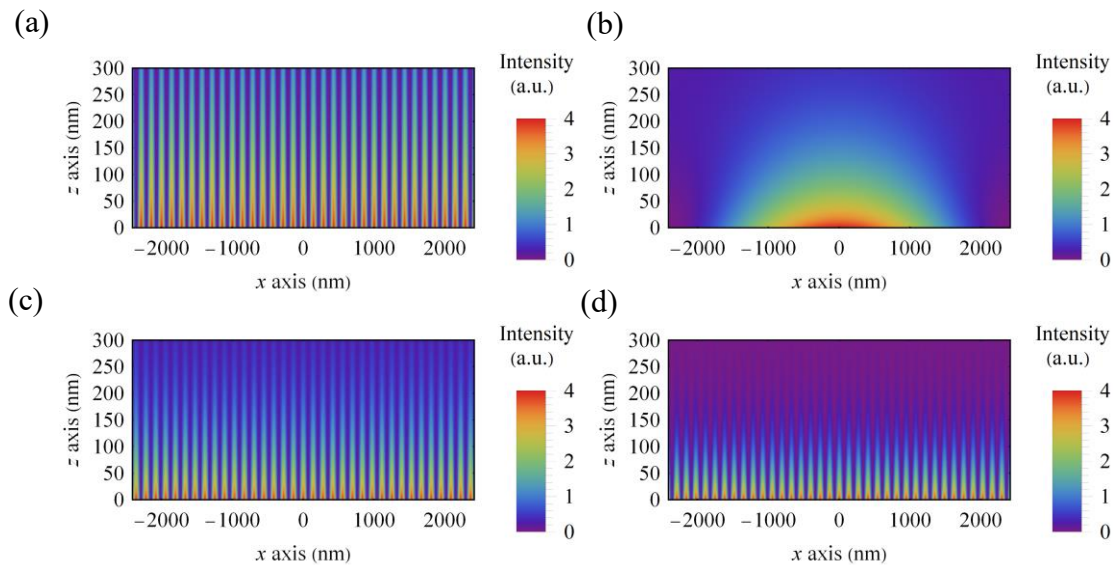


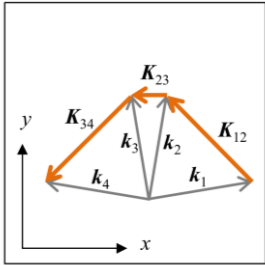
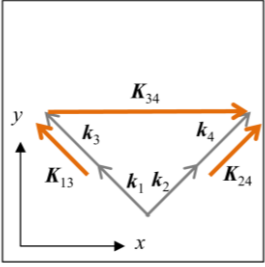
図 6-3 各 2 光束干渉の強度分布

(a) $|E_1 + E_2|^2$  (b) $|E_1 + E_3|^2$ ,  $|E_2 + E_4|^2$  (c) $|E_1 + E_4|^2$ ,  $|E_2 + E_3|^2$  (d) $|E_3 + E_4|^2$

類の干渉パターンを表 6-1 のように設計した。まず、逆格子ベクトルが 1 本で 1D 格子、縞状の強度分布が得られ、直交する 2 本の波数ベクトルによりドットパターンが得られる。さらに、逆格子ベクトルの大きさにより干渉縞のピッチの大小が決まる。そこで、①1D マイクロ格子+2D ナノドットパターンでは、表 6-1 の様に、マイクロスケールの逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{23}$  と 2 つの直交するマイクロオーダーの逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{12}$ ,  $\mathbf{K}_{34}$  となるように、4 つの波数ベクトル  $\mathbf{k}_{1-4}$  を設計した。それぞれの周期は、マイクロ 1D 格子の周期  $\Lambda_{23} = 1.59 \mu\text{m}$ , ナノ 2D ドットの周期  $\Lambda_{12} = \Lambda_{34} = 204 \text{ nm}$  となる。計算された強度分布は、図 6-4(a) のようになる。設計した干渉縞の逆格子ベクトルは 3 つであり、それ以外にも 3 つの干渉縞( $\mathbf{K}_{14}$ ,  $\mathbf{K}_{13}$ ,  $\mathbf{K}_{24}$ )が足し合わされているものの、設計したマイクロスケールの 1D 格子とナノサイズの 2D ドットが組み合わせられたパターンが確認できる。波長以下の大きさのドットパターンは、モスアイに代表される反射防止効果を示すことが広く知られている[25],[26]。そのため、このようなパターンは、透過型回折格子の高効率化などに利用が可能だと考えられる[27]。

次に入射条件②では、マイクロオーダーの 2D ドットとナノ 1D 格子を重ね合わせたパターンを設計した。表 6-1 の様に、マイクロスケールの直交する 2 つの逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{13}$ ,  $\mathbf{K}_{24}$  とナノオーダーの逆格子ベクトル  $\mathbf{K}_{34}$  となるように、4 つの波数ベクトル  $\mathbf{k}_{1-4}$  を設計した。それぞれの周期は、マイクロ 2D 格子の周期  $\Lambda_{23} = 5.0 \mu\text{m}$ , ナノ 2D ドットの周期  $\Lambda_{12} = \Lambda_{34} = 360 \text{ nm}$  となる。入射条件②で得られる強度分布は、図 6-4(b) のようになる。入射条件①と同様に独立に設計した 3 つの干渉縞の逆格子ベクトル以外に、3 つの干渉縞( $\mathbf{K}_{14}$ ,  $\mathbf{K}_{23}$ ,  $\mathbf{K}_{12}$ )が重ね合わさっているものの、設計目標であるマイクロ 2D ドット+ナノ 1D 格子からなる強度分布が得られることがわかる。この様なナノサイズの 1D 格子は、光学的に強い異方性、構造複屈折[16]を示すことが知られており、波長板への応用などが盛んに報告されている。さらに、光の強度ではなく、偏光状態を取得可能な偏光カメラなどでは、構造複屈折波長板をカメラのピクセルサイズで敷き詰めた波長板アレイが必要である。そのため、2D マイクロドット+ナノ 1D 格子といった構造は、波長板アレイへの応用が可能だと考えられる。以上のような多光束エバネッセント光干渉の例から、エバネッセント光干渉の特徴である微細な周期構造とマイクロオーダーの周期構造を組み合わせることで、様々な応用に結びついた二重周期構造の造形が期待されることがわかる。

表 6-1 2D ナノ・マイクロパターンの設計例

	入射条件 1 : 1D マイクロ格子+2D ナノドットパターン	入射条件 2 : 2D マイクロドット+1D ナノ格子
波数, 逆格子ベクトル模式図		
入射条件	$(A_{1-4}, \theta_{1-4}, \phi_{1-4}, \psi_{1-4}, \alpha_{1-4}) = (1, 77^\circ, 185^\circ, 0^\circ, 0), (1, 77^\circ, 265^\circ, 0^\circ, 0), (1, 77^\circ, 275^\circ, 0^\circ, 0), (1, 77^\circ, 355^\circ, 0^\circ, 0)$	$(A_{1-4}, \theta_{1-4}, \phi_{1-4}, \psi_{1-4}, \alpha_{1-4}) = (1, 71^\circ, 315^\circ, 0^\circ, 0), (1, 71^\circ, 225^\circ, 0^\circ, 0), (1, 87^\circ, 315^\circ, 0^\circ, 0), (1, 87^\circ, 225^\circ, 0^\circ, 0)$

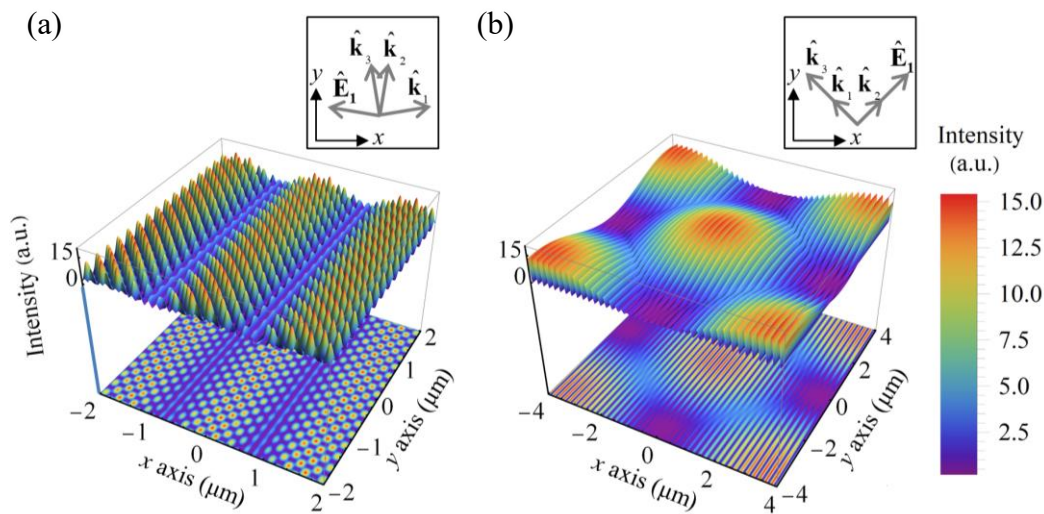


図 6-4 2D ナノ・マイクロ干渉強度パターン (a)入射条件 1 (b)入射条件 2

## 6.4 多光束エバネッセント光干渉露光装置の開発

次に、提案した造形手法の実証を目指して、4 光束エバネッセント光干渉リソグラフィ装置の開発を行った。露光装置の外観の写真、模式図を図 6-6 に示す。光源には、波長 488 nm の半導体連続波(CW)レーザー(Sapphire 488 LP, Coherent)を用いた。レーザーの偏光状態は、半波長板と偏光子で S,P 偏光に調整した。ビームは、2 つのビームスプリッターで 4 つのビームに分割され、3 つのミラーによって入射角、方位角を調整してプリズムへ入射した。全反射を生じさせるために、3 cm 角の立方体高屈折率ガラスプリズム(S-TIH,  $n_F = 1.81$ )を用いた。二光束エバネッセント光干渉では、光学的な評

価を行うために、3 mm 角以上の大面積での加工を目指し、ビーム径 4.2 mm に拡大し露光を行った。4 光束エバネッセント光干渉では、実証実験のため、ビーム径は 0.7 mm で、入射角 $\sim 70^\circ$ で 0.7 mm $\times$ 2.0 mm の楕円状の露光部を得た。露光部は、図 6-5 に示したように、レジストをコートした基板とプリズム上面の間を屈折率整合液(Cargile,  $n_F = 1.81$ )で満たした。レジストの屈折率は、エリプソメータの計測結果から、 $n_2 = 1.7$ とした。これにより、レジスト表面と屈折率整合液の界面で生成したエバネッセント光の干渉縞でレジスト表面を露光することができる。

基板は、2.5 cm 角に切断した石英基板(SK1300,  $n = 1.5$ )をアセトンで洗浄する。次に、レジストの剥離を防ぐために、ヘキサメチルジシラザンを数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで 100 $^\circ\text{C}$ 、1 分加熱し疎水化処理を行った。その後、レジストの膜厚が $\sim 500$  nm になるように、基板へスピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで 100 $^\circ\text{C}$ 、6 分ソフトベークした。そして、露光後は、現像液(AZ developer)で 60 秒静止現像した後、蒸留水で洗浄、乾燥させ構造を得た。

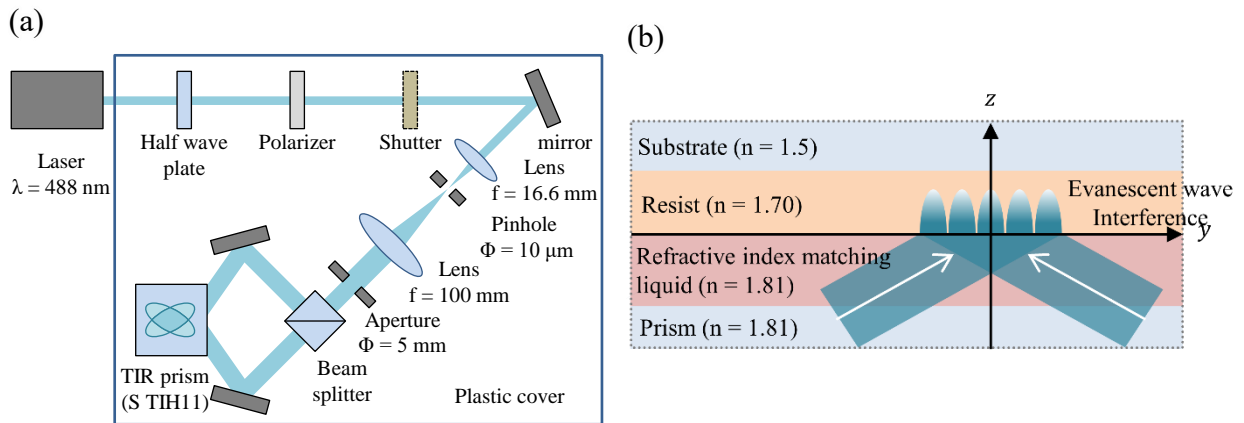


図 6-5 二光束エバネッセント光干渉装置 (a)装置模式図 (b) 露光部の屈折率図

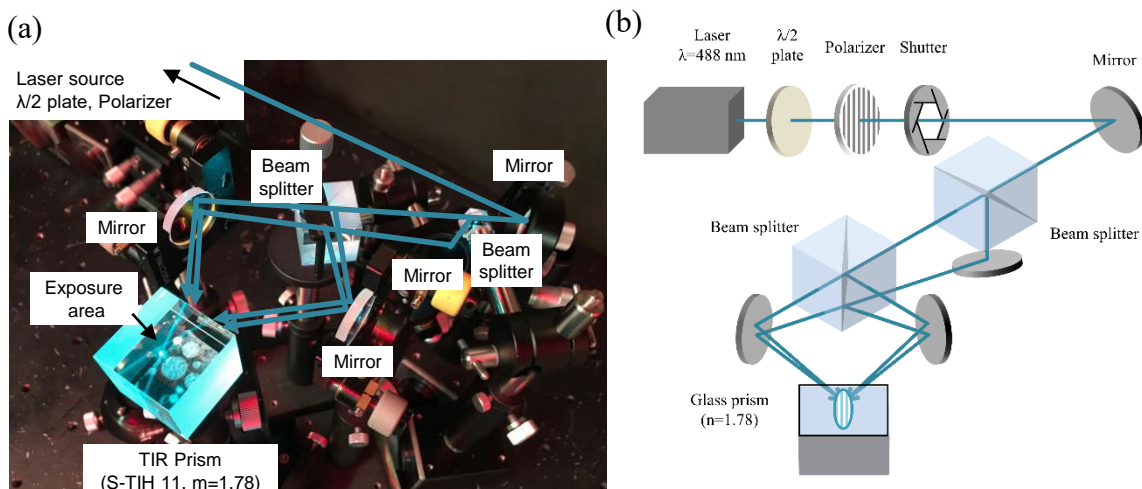


図 6-6 4 光束エバネッセント光干渉装置 (a)装置外観写真 (b)装置模式図

## 6.5 二光束エバネッセント光干渉による基礎造形実験

### 6.5.1 サブ波長格子構造の造形実験

提案した多光束エバネッセント光干渉法の基礎実験として、提案した露光装置を用いて二光束エバネッセント光干渉による造形を行った。各ビームの強度は 5 mW として、P 偏光とした。入射角  $\theta_{1,2} = 72^\circ$ 、方位角  $\phi_{1,2} = 30, -30^\circ$  として、理論干渉縞 330 nm の干渉縞での 30 秒間露光を行った。そして、二光束エバネッセント光干渉によって得られた造形結果の観察像を図 6-7 に示した。さらに、露光部の中央と辺縁部の 2 点を AFM で計測した結果を図 6-8 に示す。AFM の結果から、干渉縞の周期が 333 nm となり、入射角、方位角から計算される理論的に計算できる干渉縞周期 330 nm とよく一致

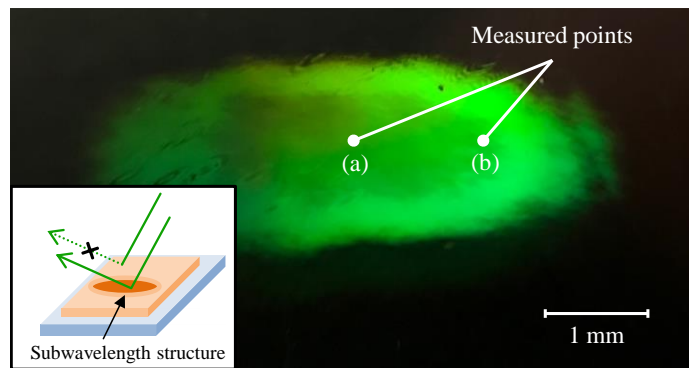


図 6-7 二光束エバネッセント光干渉造形構造の観察像

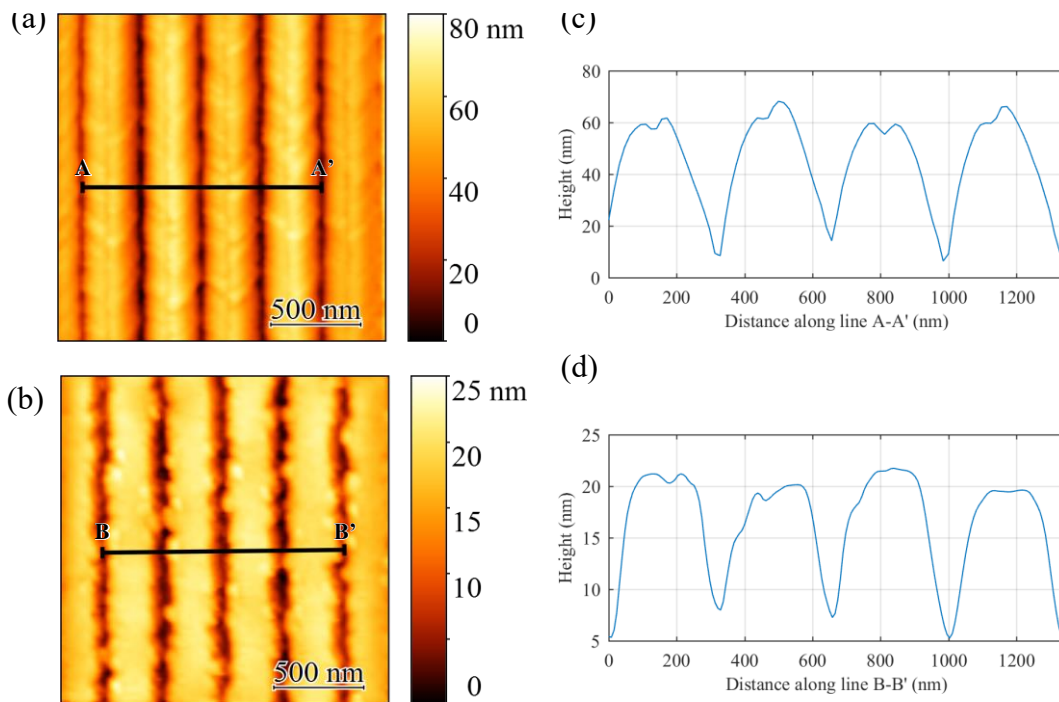


図 6-8 二光束エバネッセント光干渉の造形結果

二次元 AFM 像 : (a) 測定点 a (b)測定点 b, 断面プロファイル : (c) A-A' (d)B-B'



している。そして、図 6-7 のサブ波長構造のある部分は回折光が観察され、緑色の波長 500 nm 付近の回折光が観察された。そして、中央部の計測点(a)で高さ 50 nm、辺縁部の計測点(b)で高さ 15 nm 程度となった。これは、ビーム径が 4.2 mm 程度であり、露光部の中央部と辺縁部ではレーザー強度のガウス分布による影響で加工深さが大きく変わったと考えられる。これらの結果から、開発したエバネッセント光干渉露光装置によるサブ波長構造の造形が確認できた。

### 6.5.2 造形サンプルの複屈折性評価

電磁波の波長より小さな一次元の周期構造に対しては、章で述べた有効媒質理論から、構造複屈折と呼ばれる屈折率の異方性が生じる。本節では、造形したサブ波長格子サンプルの複屈折性を評価することで、提案したエバネッセント光干渉リソグラフィによるサブ波長光学素子への応用性を確認した。

まず、造形サンプルの構造複屈折性を確認するために、偏光顕微鏡での観察を行った。偏光顕微鏡は、図 6-9 に示した様に、偏光子を直交させたクロスニコル状態でサンプルを透過観察する。この時、サンプルが等方的な屈折率を持つ一般的な媒質であれば、偏光状態は変わらない為、検光子によって入射光は遮られる。しかし、サンプルが構造複屈折性を有する場合、格子に並行な偏光に対する屈折率  $n_{\parallel}$  と格子に垂直な偏光に対する屈折率  $n_{\perp}$  が生じる。そのため、入射光へ位相差が生じ、楕円偏光になることで、検光子を透過する光が観察できる。用いた偏光顕微鏡とサブ波長格子サンプルを回転させた際の観察像を図 6-11 に示す。楕円状の露光部は、長軸方向に沿ってサブ波長格子が造形されている。そのため、サンプル角度が  $0, 90^{\circ}$  のときは観察像暗く、複屈折性に由来する位相差が生じていない。しかし、 $0^{\circ}$  からサンプルを傾けると透過光の光量が増加し、 $45^{\circ}$  で最大になる。そして、さらに回転させると観察像は暗くなっており、造形サンプルによる複屈折性を観察することができた。サンプル中央部にすべての回転角で暗く映る部分が確認されたが、これは、図 6-10 に示した様に、プリズムとレジストの間を満たす数百  $\mu\text{m}$  程度のイマージョンオイル層に気泡が存在した為に生じた欠陥だと考えられる入射した光が、イマージョンオイルと気泡の界面で全反射してしまい、レジストまで到達しなかったと考えられる。そのため、気泡の影となった部分は、干渉縞が生じずサブ波長構造も得られなかった為、複屈折性を生じなかった。

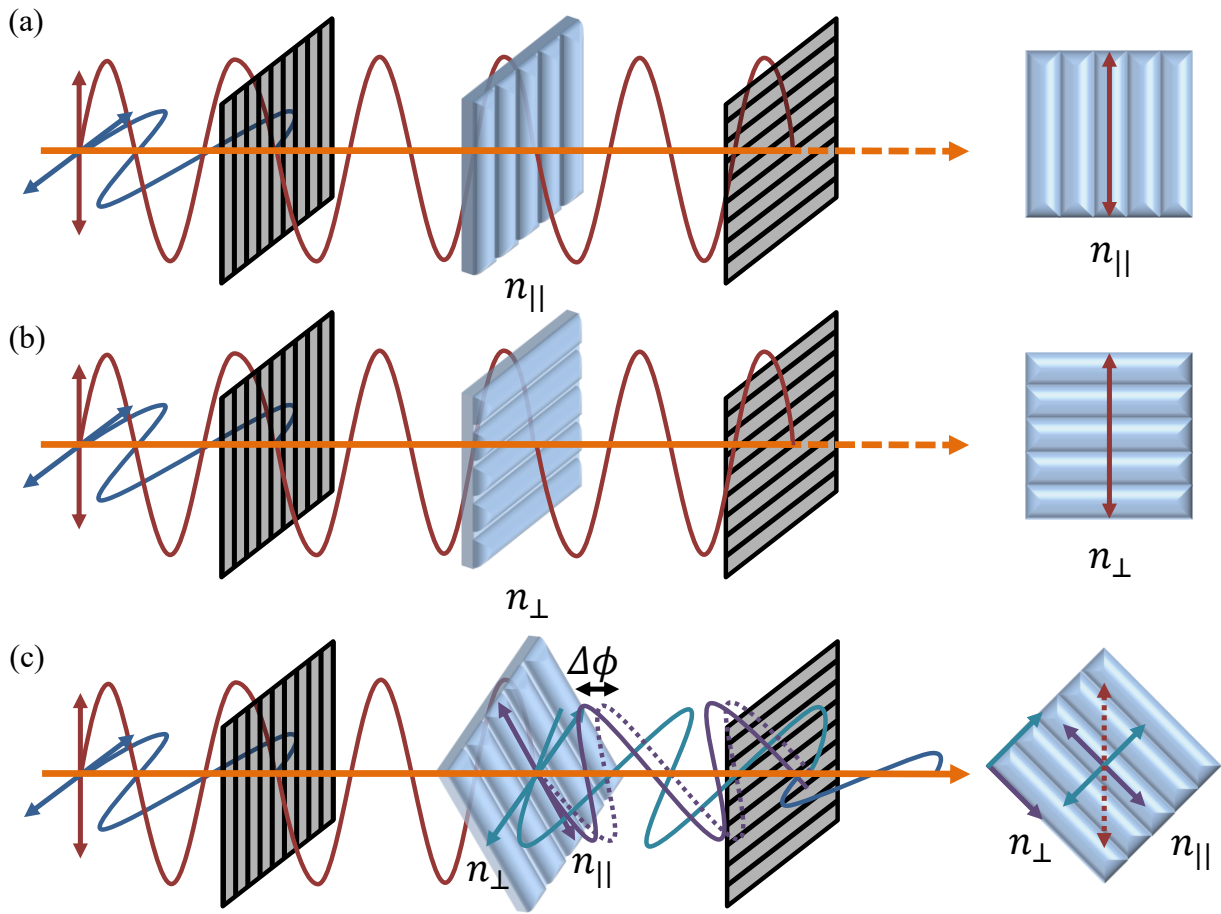


図 6-9 偏光顕微鏡によるサブ波長格子構造の観察 (a)偏光方向と格子が並行 (b) 偏光方向と格子が直交(c) 偏光方向と格子がある角度を持つ場合

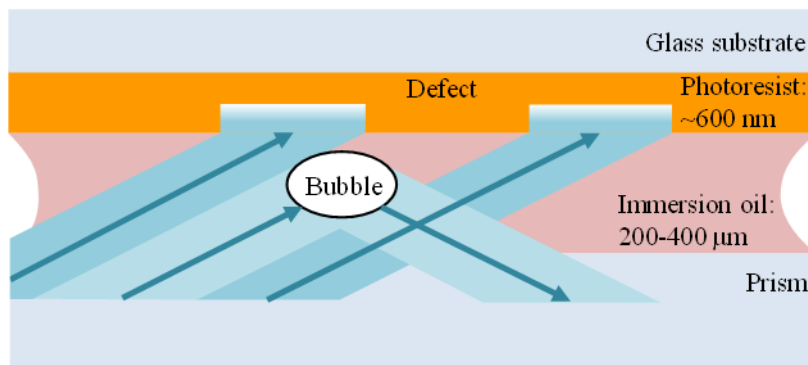


図 6-10 イメージンオイル中の気泡による露光部の欠陥

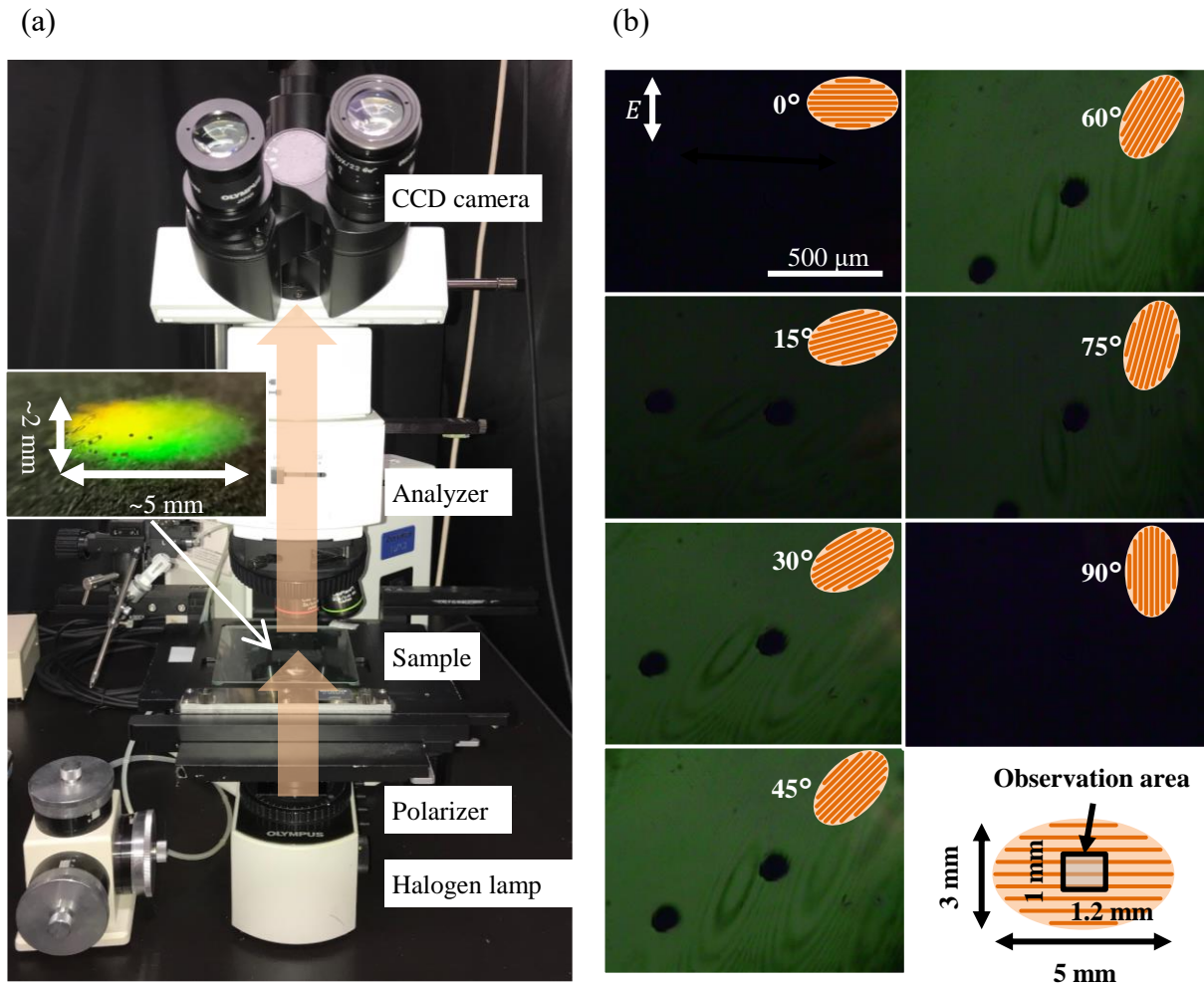


図 6-11 偏光顕微鏡による複屈折性の観察 (a)偏光顕微鏡の写真 (b)サブ波長格子を回転させたときの偏光顕微鏡での観察像

偏光顕微鏡による観察では、定性的に複屈折性を確認することができたが、定量的にどの程度の複屈折性、位相差を生じさせるかを評価することができなかった。そこで、偏光カメラ WPI-200(フォトリテック社)を用いて、定量的な位相差の評価を行った。用いた偏光カメラの仕様は表 6-2 に示す。測定波長 543 nm での位相差と軸方位の計測結果を図 6-12 に示す。露光部の中央付近で最大位相差 20 nm 程度が得られており、サブ波長格子の造形されていない観察領域の端では、位相差が 0 となった。構造複屈折を用いた位相差板への応用を考えると、可視光用の 1/4, 1/2 波長板においては、位相差が 100-300 nm 程度必要になる。そのため、サンプルをそのまま光学素子へ転用することはできないが、高屈折率媒質を成膜することで位相差の向上や、エバネッセント光干渉リソグラフィの高アスペクト比化[95]といった方法と組み合わせ、均一性向上や欠陥の防止を行うことで、十分光学素子への応用が可能だと考えられる。また、軸方位は、格子と垂直な方向を均一に示していた。また、前述の気泡による露

光部の結果においては、殆ど位相差が見られず、偏光顕微鏡の観察結果とも一致した。ただし、エバネッセント光干渉によって造形したサブ波長構造の複屈折性の評価を行い、サブ波長構造特有の複屈折性が得られていることを確認した。

表 6-2 複屈折性評価装置の仕様

型番(メーカー)	測定範囲	動作波長	データ数
WPA-micro (フォトリテックス社)	位相差 0-3500 nm	523, 543, 575 nm	384×288 pixel

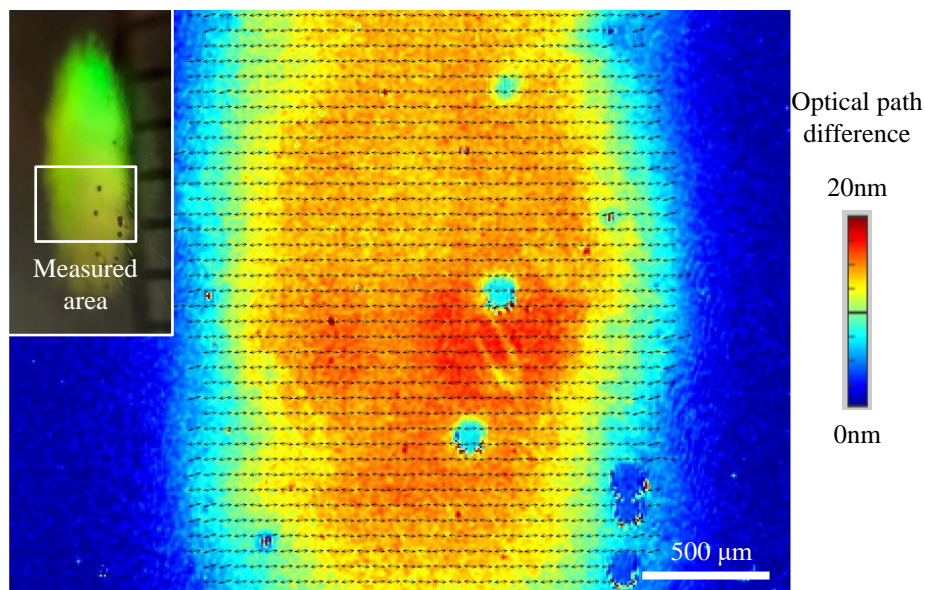


図 6-12 サブ波長格子の複屈折位相差計測結果

## 6.6 四光束エバネッセント光干渉によるナノ・マイクロ二重周期構造の造形実験

提案した4光束エバネッセント光干渉造形法を実証するために、表 6-3 にまとめた露光条件の通り実験を行った。まずは、入射条件①として、4つの入射光の波数ベクトルが同一平面内にあり、干渉パターンは図 6-3 のようなナノ・マイクロ 1D 格子状になるように設定した。また、それぞれのビームの強度は、 $|E_{1,2}|^2 = 100 \text{ mW/cm}^2$ 、 $|E_{3,4}|^2 = 170 \text{ mW/cm}^2$ とした。そして、露光エネルギーは $\sim 540 \text{ mJ/cm}^2$ となるように露光時間を設定した。ビームの偏光は、S 偏光とした。そして、ビームの入射条件を確かめるために、まずはエバネッセント光  $E_{1,2}$  による干渉縞強度  $|E_1 + E_2|^2$  とエバネッセント光  $E_{3,4}$  による干渉縞強度  $|E_3 + E_4|^2$  によって露光して得られた干渉縞構造の AFM での計測結果を図 6-13 に示す。各 2 光束エバネッセント光干渉における干渉縞ピッチは、式(3-1)から  $\Lambda_{12} = 142.6 \text{ nm}$ 、 $\Lambda_{34} = 138.9 \text{ nm}$  と計算される。図 6-13 に示した AFM の計測結果

から、実験で得られた干渉縞ピッチは  $A_{12} = 143 \text{ nm}$ ,  $A_{34} = 139 \text{ nm}$  となり、理論値とよく一致している。入射角から計算される開口数 NA は、それぞれ 1.71, 1.76 となる。

表 6-3 実証実験の露光条件

	入射条件①： ナノ・マイクロ 1D 格子	入射条件②： マイクロ 2D ドット+ナノ 1D 格子
入射パラメータ	$(\theta_{1-4}, \phi_{1-4}, \psi_{1-4}) = (71^\circ, 0^\circ, 90^\circ), (71^\circ, 180^\circ, 90^\circ), (76^\circ, 0^\circ, 90^\circ), (1, 76^\circ, 180^\circ, 0^\circ)$	$(\theta_{1-4}, \phi_{1-4}, \psi_{1-4}) = (71^\circ, 287.6^\circ, 0^\circ), (71^\circ, 252.4^\circ, 0^\circ), (76^\circ, 288^\circ, 90^\circ), (1, 76^\circ, 252^\circ, 0^\circ)$

これらの結果から、プリズムへの入射角  $\theta_{1-4}$  は適切に調整できており、臨界角  $\theta_c = 69.9^\circ$  を超える入射角で入射することで、エバネッセント光を生成できていることを確認した。次に、これらの 4 光束のエバネッセント光干渉によって得られた構造を図 6-14 に示す。まず、顕微鏡観察像(図 6-14 (a))から、 $12.5 \mu\text{m}$  周期のマイクロオーダの縞構造が見られる。これは、ビーム  $E_1$  と  $E_3$  若しくは、 $E_2$  と  $E_4$  の干渉によって生じる干渉縞のピッチ  $A_{13} = A_{24} = 10.9 \mu\text{m}$  と近い値となった。式(3-1)から分かるように、干渉縞のピッチ  $A_{ab}$  は干渉させた 2 つのエバネッセント光の波数ベクトルの差の逆数に比例する。つまり、入射条件の誤差などは、干渉縞のピッチが大きい(波数ベクトルの差  $|\mathbf{k}_b - \mathbf{k}_a|$  が小さい)ほど影響が大きく表れる。そのため、図 6-13 に示した干渉縞ピッチの小さい  $E_1$  と  $E_2$ ,  $E_3$  と  $E_4$  では干渉縞ピッチの理論と実験値の誤差は数 nm 以下であったが、図 6-14(a)に示したマイクロオーダの干渉縞では  $1.6 \mu\text{m}$  ほどのピッチの誤差が確認できた。次に、図 6-14 (b), (c)に AFM で計測した 2 次元, 1 次元データを示す。2 次元での計測結果から、顕微鏡で確認されたマイクロオーダの縞構造の中に、 $140 \text{ nm}$  周期のナノ格子が造形できていることが確認された。さらに、一次元の高さプロファイルから、ナノ格子の高さが最大で  $\sim 10 \text{ nm}$  程度あり、マイクロオーダの包絡線に沿って高さを変化していることが分かる。本実験では、ポジ型レジストを用いたので、図 6-3(b)の強度分布を上下反転させたような造形結果が得られた。この結果から、提案した多光束エバネッセント光により、 $140 \text{ nm}$  と  $12.5 \mu\text{m}$  という約 90 倍も大きさの異なる縞構造を同時に造形することに成功した。

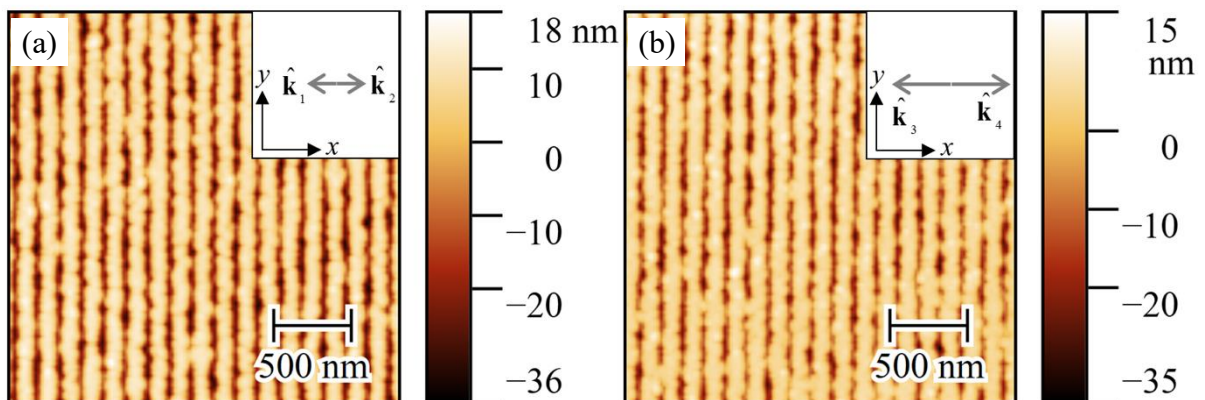


図 6-13 二光束エバネッセント光干渉の基礎造形結果 (a) $E_1, E_2$  の干渉縞 (b) $E_3, E_4$  の干渉縞

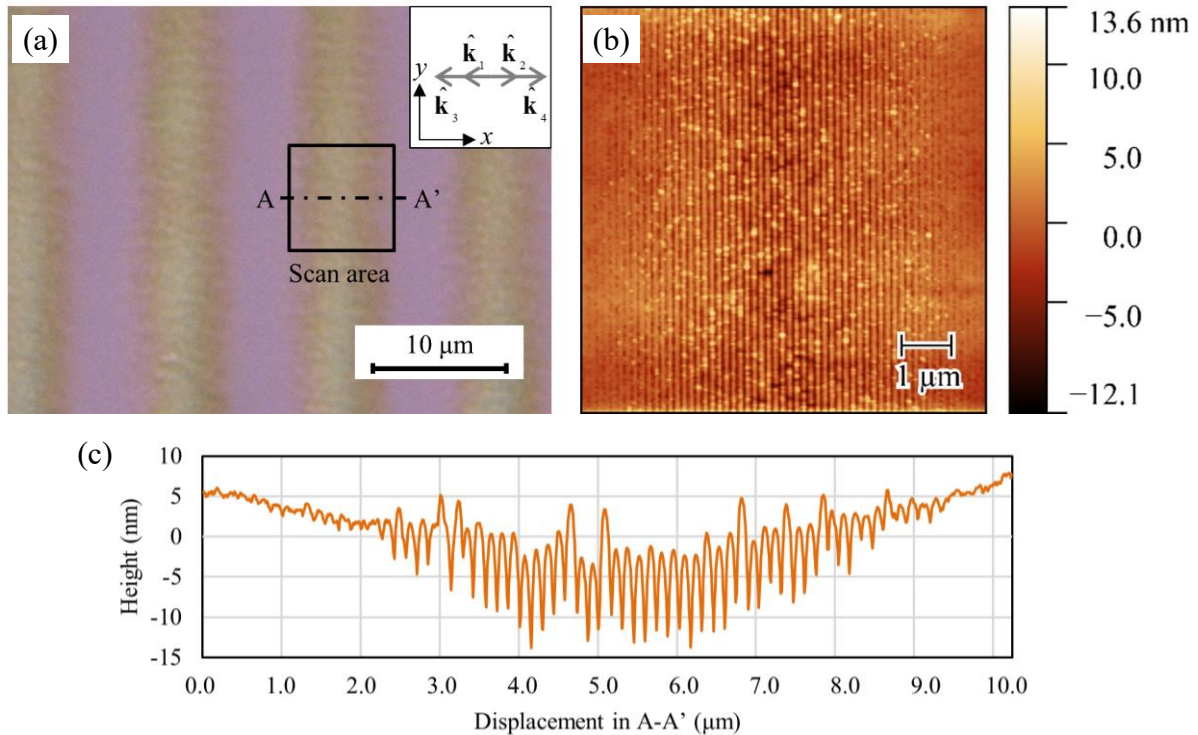


図 6-14 入射条件①造形結果 (a)顕微鏡観察像 (b)2次元 AFM 計測結果 (c)断面プロファイル

次に、入射条件②として、マイクロ 2D ドット+ナノ 1D 格子の造形を試みた。入射ビームの偏光はすべて P 偏光とした。入射条件から計算された強度分布と造形結果の顕微鏡、AFM 計測像を図 6-15 に示した。顕微鏡観察像から、マイクロオーダの楕円状のドットが、 $43\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$  間隔で面心格子状に配列している様子が観察できる。図 6-15 (b)に示したように、格子の成す角度が  $81^\circ$  と理論的な解析に比べ、歪んでいることも確認できる。これは、入射条件①で述べたのと同様に、マイクロオーダのドットパターンは、入射ビームのアライメント誤差の影響を強く受けるため、この様に歪んだと考えられる。そして、顕微鏡の暗く写っているドットを AFM で計測すると、図 6-15 (c)に示したピッチ $\sim 450\ \text{nm}$  のナノ格子が造形されていることが分かる。モスアイ形状と同様に、サブ波長オーダのナノ格子が反射防止機能を示したことで、顕微鏡で暗く写ったと考えられる。さらに、AFM 計測像でナノ格子の高さプロファイルに着目すると、図 6-15 (c)で示したうなりの包絡線と似た  $25\ \mu\text{m}$  周期で高さを変調していることが分かる。これらの結果から、多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーにより、サブ波長+マイクロオーダの多重周期構造の造形の実験的な検証に成功した。

そして、さらに微細な構造をエバネッセント光干渉によって実現する際に予想される実践的な課題は、プリズムや屈折率整合液と光源である。まず、現実的にレジストの屈折率は 1.5-1.7 程度であり、 $\text{NA} > 1.7$  を超えるためには、エバネッセント光による露光が必要となる。しかし、レジストの露光に用いられる波長  $500\ \text{nm}$  以下から UV 領域の波長において、プリズムの材料となるサフィア ( $\sim 1.8$ )、高屈折率のガラス ( $< \sim 2.0$ )、

TiO<sub>2</sub>(~2.6)などで吸収が大きくなりプリズムの透過率が著しく低下する。さらに、プリズムとレジストの間に空気が存在する場合、図 6-10 で示したように露光不良箇所が生じてしまう。そのため、プリズムと同程度の屈折率整合液でレジストとプリズムのギャップを埋める必要がある。本研究においては、プリズムとレジストの間を満たす液体として、ジヨードメタン(CH<sub>2</sub>I<sub>2</sub>,  $n = 1.741$ )に硫黄を溶解させて屈折率 1.78 をもつ屈折率整合液を用いた。しかし、市販の屈折率整合液では 1.8 程度が限界であり、研究レベルにおいても、アニリン(C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>NH<sub>2</sub>)に硫黄やセレンを溶解させたもので 2.1 程度となっている[97]。特に屈折率 1.8 を超えるものは、毒性や反応性が高く産業的な利用は現実的でない。さらなる高 NA 化においては、高屈折率材料の開発が非常に重要になってくる。

最後に、理論解析、実証実験を通して、実際の次世代光学素子の加工実現におけるエバネッセント光干渉リソグラフィーの問題点を整理する。一つ目は、エバネッセント光の高さ方向の指数関数的な減衰による加工高さの問題である。1 章で表 1-1 に整理したように、次世代光学素子の一般的な設計寸法から、アスペクト比 0.5-2 程度の構造が必要であるとした。本節で 2 光束、多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーで造形した周期構造は、いずれも 0.1~0.3 程度であった。そのため、面内方向の加工

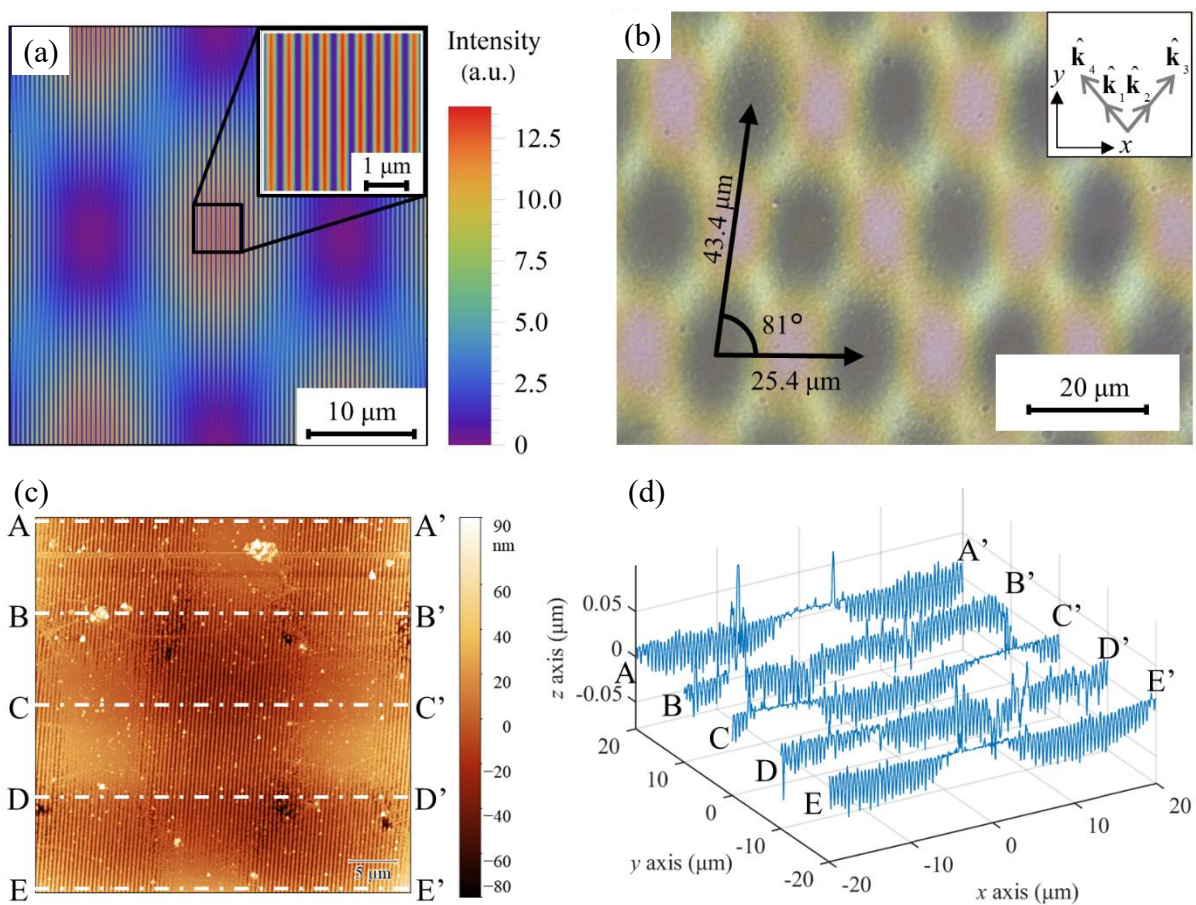


図 6-15 入射条件②：解析，造形結果 (a)解析結果 (b)顕微鏡観察像 (c)2次元 AFM 計測像 (d)AFM 計測高さプロファイル

分解能が十分なことは、実験的に明らかになったが、加工深さ、構造の高さについてはある。大きく分けて露光と露光後の2つ工程において、改善が可能だと考えている。まず、エバネッセント光露光においては、アスペクト比 $\sim 0.5$ の造形結果[70]、基板への成膜によりエバネッセント光の染み出し深さを増強する方法で高アスペクト比 $\sim 1$ を達成した先行研究[68]も報告されているため、材料や現像工程の最適化、露光配置の工夫により高アスペクト比化の改善余地がある。次に、露光後のエッチング工程において、反射防止膜やサブ波長構造への適用例も多い反応性イオンエッチング(Reactive Ion Etching, RIE)を用いることで、レジストの干渉縞高さ以上の深さで基板へパターンを転写することが可能である。2つ目の問題点は、特にメタサーフェスなどの加工において、周期的に配列する単位構造であるメタアトム of 造形自由度の向上が必要だと考えられる。特に、実証実験で用いた4光束干渉では、独立に制御できる干渉縞の逆格子ベクトルが3つに限定されており、干渉パターンの設計自由度に改善の余地がある。そこで、2.3.4節で述べたSLMを用いた多光束エバネッセント光干渉などの方法で、より多くのエバネッセント光を干渉させることで、超高NA露光での微細性を保ちつつ、干渉パターンの自由度の向上が見込める。最後に3つ目の問題として、100 nm オーダから数十 $\mu\text{m}$  オーダの複数の周期性を有する構造では、空間周波数のダイナミックレンジが非常に高いという特徴を有している。その結果、通常のベクトル電磁場解析では4章で述べたように解析コストが膨大になるだけでなく、計測においても、白色干渉計や、AFMなど一つの方法で複数の周期構造を一括で評価することが困難といった課題が明らかになった。つまり、本研究ではスケール横断的な構造の加工が困難であるため、干渉リソグラフィーを用いた次世代光学機能構造の加工方法の開発をめざしたが、同じように適切な評価、計測方法の開発も求められていることも明らかになった。

## 6.7 結言

本章では、次世代光学素子の造形で要求される、サブ波長+マイクロオーダの多重周期構造が造形可能な方法として、多光束エバネッセント光干渉リソグラフィーを提案した。これまで、2光束エバネッセント光干渉により単一周期のサブ波長格子構造の造形は報告されていたが、多光束干渉と組み合わせ構造スケールが大きく異なる形状を一括で造形可能かということは、実証されていなかった。そこで、我々は多光束エバネッセント光干渉の一例として4光束エバネッセント光干渉の理論的解析を行い、入射パラメータが最終的な干渉パターンへ与える影響などを明らかに、2D ナノドット+マイクロ 1D 格子構造や 1D マイクロ格子+2D ナノドットといった干渉パターンが得られることを明らかにした。それらは、高効率透過回折格子、マイクロ波長板アレイなど、サブ波長+マイクロオーダの構造ならではの応用が期待される。そして、実証実験においては、高屈折率プリズムを用いた4光束エバネッセント光干渉造形装置を開発し、ナノ・マイクロ 1D 格子構造で 140 nm と 12.5  $\mu\text{m}$  の周期が $\sim 90$ 倍異なる多重周



期構造の造形に成功した。さらに、マイクロ 2D ドット+ナノ 1D 格子構造の造形にも成功し、450 nm のサブ波長格子が  $43\ \mu\text{m} \times 25\ \mu\text{m}$  周期に配列した構造を得た。今後の課題としては、構造高さが数十 nm にとどまっていることである。しかし、実際に波長板や反射防止膜として機能するためには数百 nm 程度の格子の高さが必要となる [95],[96]。そのため、レジストの選定、加工条件の最適化や基板の工夫によりアスペクト比の改善を行い、SLMなどを組み合わせることでより自由な干渉パターンの設計が可能となり、実際に次世代光学機能構造の加工への適用が期待される。



## 第7章 結論と展望

---

7.1 結論.....	104
7.2 展望.....	106

---

## 7.1 結論

本研究は、次世代光学素子の加工を目指して、レーザー干渉リソグラフィを用いた加工法の開発を行った。まず、次世代光学素子であるメタサーフェス、多重周期回折格子、サブ波長格子などに要求される加工特性として、100 nm オーダから数百 nm オーダの微細性、構造の多重周期性を挙げた。さらに、産業的な応用の為には大面積での加工、低コスト、高スループットが求められるため、これらの微細性、多重周期性、大面積性を原理的に達成しうる干渉リソグラフィに着目した。

第1章「序論」では、メタサーフェスやサブ波長格子などの次世代光学素子の加工に、求められている要件として、100~300 nm 程度の微細周期構造とマイクロオーダの周期構造を同時に加工可能で、大面積、低コストといった点を挙げた。そして、レーザーを干渉させて周期構造を加工する干渉リソグラフィに着目し、次世代光学素子の加工を目指した。

第2章「干渉リソグラフィの基礎」では、本研究で着目した干渉リソグラフィの理論、実践的な点を述べた。特に、次世代光学素子の加工に求められる、微細性、多重周期性を達成するためのいくつかの方法を比較して議論した。

第3章「サブ波長格子偏光フィルタの理論モデル構築と加工検討」では、従来動作メカニズムが完全には解明されていなかったサブ波長偏光ビームスプリッタの理論的なモデルの構築を行った。偏光分離機能の原理として、導波モード共振と薄膜多重干渉を組み合わせた理論モデルを提案した。そして、有効媒質近似による理論値の誤差を修正するために、理論設計値を初期値とした厳密な電磁波解析理論による最適化による簡易な設計方法を実証した。また、動作原理を明らかにしたことによって、干渉リソグラフィの加工時に想定される加工誤差が、光学機能に与える影響を明らかにした。特に、格子部の形状誤差により、共振波長のシフトや薄膜多重干渉の反射防止条件からのずれが生じることで、偏光分離機能を示す消光比が大きく低下する事が分かった。そのため、第5章で行ったようなインプロセス計測を用いた、加工形状の精密な制御の必要性が明らかになった。

第4章「二重周期回折格子のスカラー回折理論モデルの構築」では、多重露光干渉リソグラフィによる加工が期待される二重周期回折格子の回折特性に着目した。特に、加工形状のもつ回折特性を理論モデルにより明らかにすることができれば、新しい回折素子の開発だけでなく、干渉リソグラフィのインプロセス計測などに応用が可能だと考えた。さらに、従来は大きく分けて2つの形状①うなりを伴う二重周期回折格子と②整数倍周期を重ね合わせた二重周期回折格子を統一的に扱える理論モデルの構築を行った。更に、回転ロイドミラー光学系を用いた多重露光干渉リソグラフィで造形した二重周期回折格子の回折特性を計測し、理論モデルとの比較を行った。スカラー回折理論では、入射角、回折角が小さいこという Fraunhofer 近似の仮定を用いるため、回折角の大きな回折光では誤差が確認できた。しかし、重ね合わせた二田の正弦波の高さに応じて、回折効率が変化するなど定性的にはよく一致しており、構築したモデルの妥当性を確認できた。また本章の内容の二重周期回折格子の理論式の

構築は、畚野剛瑠氏(現東京大学工学系研究科精密工学専攻修士一年)と共同で行った。

第5章「多重露光干渉リソグラフィの加工プロセス計測」では、うなりを伴う二重周期回折格子に対して、回折光のインプロセス制御を行うことで、その回折効率比を高精度に制御するための加工プロセス制御の実証を行った。まず、現像前後のレジストを二重周期位相回折素子とみなしたモデルを構築し、インプロセス計測結果と現像後のポストプロセス計測結果との対応を初めて明らかにした。簡略化したスカラーモデルにおいても回折効率比を良く予想可能であり、加工プロセス制御へ応用可能なことを示した。

第6章「多光束エバネッセント光干渉リソグラフィ」では、3-7章で得た知見を元に、次世代光学素子の加工に求められる多重周期性と微細性を兼ね備えた加工法として、エバネッセント光干渉リソグラフィを提案、実証した。理論的に、エバネッセント光の干渉によって得られる強度分布を解析した。そして、実証実験を行うための4光束エバネッセント光干渉リソグラフィ露光装置を開発した。9章で開発した露光装置を用いて、基礎実験として二光束エバネッセント光干渉造形を行った。造形したサンプルの特性を評価し、サブ波長格子特有の光学検証を発現していることを確認した。そして、4光束エバネッセント光干渉露光実験では、従来の空気中での干渉縞の限界ピッチである  $\lambda/2$  を大きく超えた  $\lambda/3.5$ , NA1.76 に相当する超微細加工を実証した。さらに、多光束干渉によって、ナノ・マイクログレーティング構造、ナノグレーティング+マイクロドットパターンの造形に成功した。

以上の結果から、次世代光学素子の一例として取り上げたサブ波長偏光フィルタの理論的なモデルの構築により、加工に求められる条件や加工形状が持つ回折特性を明らかにできた。その結果、格子の周期や高さを数 nm の高い精度で加工する必要性が明らかになった。そこで、多重周期構造のインプロセス計測方法を提案することによって高精度な加工に貢献した。さらに、従来の干渉リソグラフィの微細性の限界を超え、100 nm オーダの微細性を達成する為に、多光束エバネッセント光干渉による干渉リソグラフィの開発した。開発した多重周期構造のインプロセス計測手法をエバネッセント光干渉リソグラフィと組み合わせることで、~100 nm オーダの構造の露光メカニズムの解明やプロセス管理といったより高度な加工が可能になると期待される。

最後に本研究の総括を述べる。レーザー干渉リソグラフィは、低コストかつ原理的に大面積の一括加工が可能であるため、次世代光学素子への適用が実現すれば、産業的、学術的意味合いは非常に大きい。そこで、本研究では、次世代光学素子の設計、造形から評価までをカバーした加工方法全体における3つの課題の解決に取り組み、前述のような研究成果を得た。課題①については、共振を用いた微細光学素子の物理モデルを明らかにすることで、設計手法を確立しただけではなく、加工誤差が光学特性へ及ぼす影響を明らかにするといった光学素子開発の一つのモデルケースを示した。課題②では、従来の数値解析的アプローチが困難な多重周期構造に対して、理論的に構築した物理モデルにより、加工形状を実現する方法論を示した。課題③では、従来の加工微細性の限界を超える超高 NA 露光法の開発により、今後益々微細性が求められるであろう次世代光学素子に対しても、干渉リソグラフィの適用が可能なることを

示した。

## 7.2 展望

本研究においては、周期のサイズや周期性のことなる3つの領域に対して干渉リソグラフィという加工方法に着目し、理論モデルの構築や計測・加工方法の開発を行った。これらの知見を組み合わせることで、新たな加工方法が期待される。

### ・サブ波長フィルタを用いたエバネッセント光リソグラフィ

エバネッセント光干渉リソグラフィにおける問題点の一つは、全反射を起こすために高屈折率プリズムや高 NA 対物レンズが必要となる点である。一回の露光で数 cm~数十 cm という大面積を加工するためには、それ以上のサイズのプリズムが必要となるが、そこまで三次元的に大きな光学素子を用意することは現実的ではなく、コストも増加してしまう。そこで、他の方法としてサブ波長格子を用いてエバネッセント光を生成する方法が考えられる。特に、図 3-5 に示したサブ波長偏光フィルタ内部の電場強度から、ガラス基板部分にわずかに電場が染み出していることが確認できる。このことから、第3章で設計したフィルタなどを用いて励起した導波モード共振でレジスト内部にエバネッセント光を露光するような加工方法が考えられる。さらに、プリズムなどの三次元的な光学素子ではなく、サブ波長格子をもつ2次元のシートによる露光することで、大面積の加工へ展開しやすくなる。さらに、露光されたレジストの屈折率変動は、共振状態に影響を及ぼすために、共振状態をモニタリングすることで露光されたレジストのモニタリングも期待できる。

### ・新しい動作原理のサブ波長偏光フィルタの設計

サブ波長格子の導波モード共振を用いた偏光分離フィルタの加工例は、先行研究に置いていくつか報告がなされているが、いずれも消光比は最大で 30 dB 程度と理論値に比べて 20 dB 程度低下している。これは、3章で解析したような矩形格子のフィリングファクタや断面形状に求められる精度が高いために、加工誤差によってもたらされた機能低下だと考えられる。特に、矩形の格子プロファイルを採用した場合には、透過偏光では薄膜多重干渉の原理で反射を低減させるが、現実的には格子のエッジにおける散乱などで、消光比が低下することが予想される。そこで、透過偏光に対して反射を低減する原理として、モスアイ形状を採用することで異なった加工原理のサブ波長偏光フィルタが実現すると考えられる。モスアイ形状では、薄膜多重干渉と異なり、有効的な屈折率を連続的に変化させることで反射率を低減させるために、加工誤差による影響が低くなるのではと考えている。

### ・エバネッセント光干渉リソグラフィのインプロセス計測

また、多光束エバネッセント光干渉リソグラフィで、100 nm オーダの構造と数十  $\mu\text{m}$  オーダの多重周期構造の造形に成功したが、小さな周期は、もはや回折格子として働かないほど小さい。そこで、半導体製造技術として、微細なレジストパターンを測定

する方法として、スキヤトロメトリが注目されている。これは、微細な構造の回折パターンをライブラリ化し、測定結果とマッチングさせることで測定を行う。多重周期化する構造のインプロセス、ポストプロセスでの形状測定の要求に対して、スキヤトロメトリで微細なパターンを検出し、よりマクロな構造をスカラー回折理論モデルと照合するといった複合的な測定手法も考えられる。

このように、本研究においていくつかのスケールや周期性の異なる形状に着目して理論モデルの構築や計測、加工方法の開発を行ったことで、それぞれのトピックを組み合わせた新しい素子の利用方法、動作原理、加工方法が期待できる。これらの新たな取組が、次世代光学素子の実現に向けた研究となることを期待する。





# 付録

---

付録 A.	回転ロイドミラー露光装置 .....	110
付録 B.	回転ロイドミラー露光装置による基礎造形実験 .....	117
付録 C.	回折特性計測装置の開発 .....	120

---

## 付録A. 回転ロイドミラー露光装置

本研究において、多重周期光学素子の造形を目指して露光光学系の開発について述べる。第2章でまとめたいくつかの方法から、重ね合わせる干渉縞を独立に制御しやすい多重露光干渉リソグラフィを採用し、入射角の制御が容易な回転ロイドミラー光学系を採用した。さらに、Table. A-1 に示したように①加工する周期構造の造形自由度(干渉縞周期や姿勢)の高さ②光学的評価が可能な数ミリ角の造形面積③200 nm(サブ波長)から数  $\mu\text{m}$  オーダの干渉縞生成④同一基板への複数回露光が可能という4つの点を満足するような装置の開発を行った。

まず、回転ロイドミラー光学系の座標系を Fig. A-1 のように設定した。入射ビームは、レンズ1で集光し、ピンホールによって空間フィルタリングされて、理想的なTEM00モードのガウシアンビームとしてロイドミラー光学系に入射すると仮定する。ロイドミラー光学系において、ミラーとサンプル面が垂直に交わる交線を  $x$  軸、ミラーに垂直かつビームの中心を通る  $z$  軸、サンプル表面に平行でビーム中心を通るように  $y$  軸を設定する。このとき、 $x$  軸とガウシアンビームの集光点の距離を  $L_0$  とする。

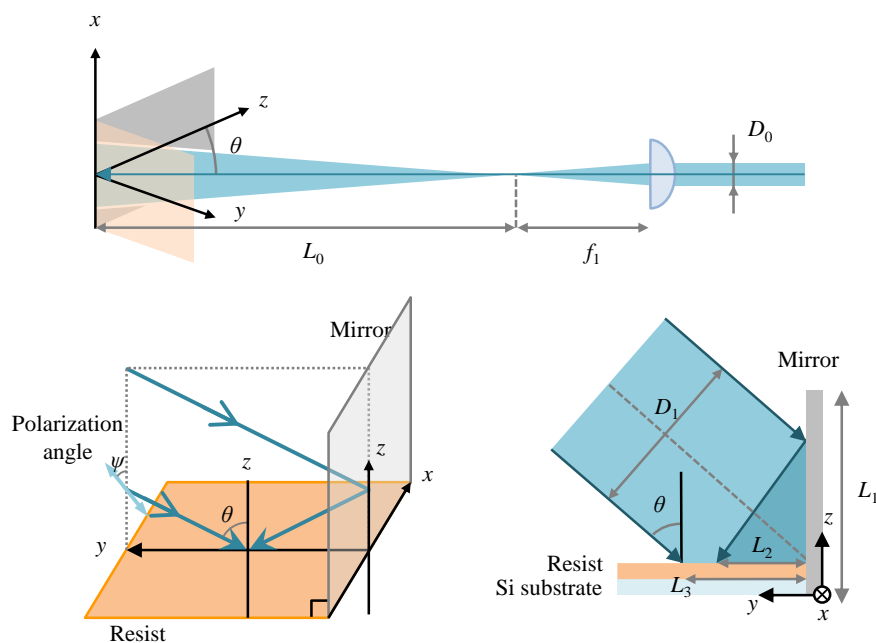


Fig. A-1 ロイドミラー光学系の模式図

Table. A-1 回転ロイドミラー干渉造形装置の要求仕様

要求仕様	項目	
①	最小加工ピッチ	~200 nm
②	最大加工ピッチ	~4 $\mu\text{m}$
③	加工面積	3 mm 角
④	強度の不均一性	<5%
⑤	ピッチエラー	<0.1 %
⑥	ステージ自由度	4 自由度

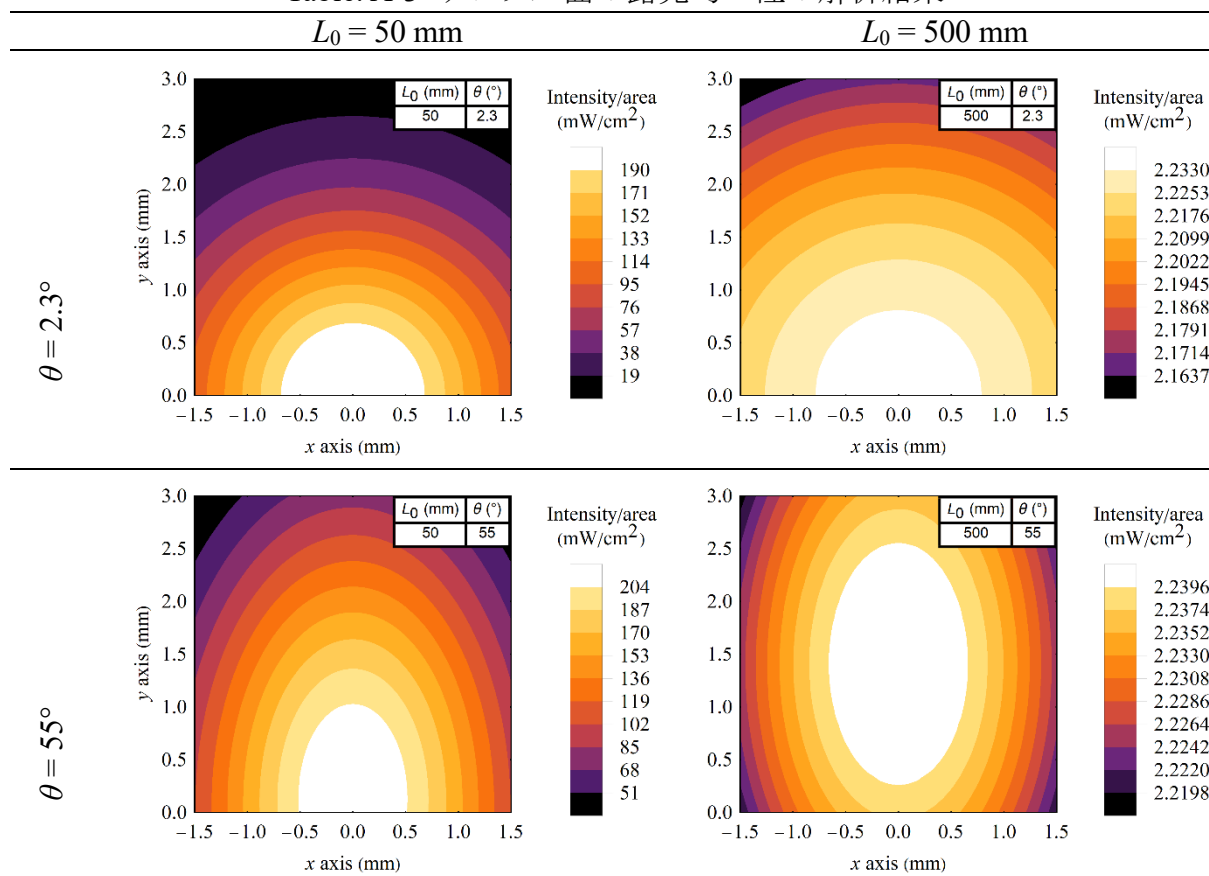
はじめに、要求仕様①最小加工ピッチ 200 nm を達成し、その他の仕様を決める上で基盤となる光源の選定を行う。2 章で述べたとおり、空気中の干渉造形では光源波長の 1/2 が最小加工ピッチとなるため、要求仕様①を満たすためには、光源波長  $\lambda < 400$  nm となる必要がある。そこで、波長 325 nm の HeCd レーザー(IK3083R-D, 金門光波)を採用した。光源の仕様を Table. A-2 にまとめる。光源のコヒーレンス長が 10 cm と数 cm 角の素子開発には不十分であるが、3 mm 角の試作に対しては十分である。光源波長から、要求仕様①, ②を満たすために入射角  $\theta = 2.3\text{-}55^\circ$  の範囲で、その他の要求仕様を満たせば良いことが分かる。

Table. A-2 レーザー光源の装置仕様

型番	波長 (nm)	出力 (mW)	モード	コヒーレンス長 (cm)	ビーム径 (mm)
IK3101R-D	325	10	TEM00	10	1.0

次に、要求仕様④強度均一性、⑤ピッチ誤差を③加工面積 3 mm 角内で満たすために、ビームの伝搬距離  $L_0$  等を適切に設定する必要がある。干渉リソグラフィーにおいては、微小な露光部に対して  $L_0$  を十分長くすることで、コリメートしていないガウシアンビームの発散角を十分小さくし、近似的に平行光として扱う。まず、強度 10 mW, ビーム径 1.0 mm のビームがレンズ 1 ( $f_1 = 15.0$  mm) で集光する。そして、ミラーの反射率を 100% と仮定し、ガウシアンビームの伝搬の式からサンプル面 ( $xy$  平面) での強度分布を Table. A-3 の様に計算した。ロイドミラーとの距離  $L_0 = 50, 500$  mm, 入射角は、最大、最小ピッチを得るために必要な入射角  $\theta = 2.3, 55^\circ$  に対して強度分布の露光部 3 mm 角での最大強度に対する強度の変化率を評価した。 $L_0 = 50$  mm の場合は、露光部の端 ( $\pm 1.5$  mm, 3 mm) では 90% 以上低下している。しかし、十分に長い距離  $L_0 = 500$  mm の場合は、入射角  $\theta = 2.3^\circ$  のとき最大で 4.5% 程度の強度低下,  $\theta = 55^\circ$  のとき最大で 1.1% 程度の低下となった。したがって、 $L_0 > 500$  mm であれば要求仕様④の面内での強度変化  $< 5\%$  を達成できることがわかった。そして、これまでの解析ではミラーの反射率 100% を仮定したが、強度均一性のためには、入射角に依存しない高反射率ミラーが必要となる。そのため、反射率の入射角依存性の高い誘電体多層膜ミラーではなく、紫外領域でも反射率が 90% 以上となるアルミニウムミラーを採用した。2 つの波面の振幅の差は、干渉縞の可視度  $V$  に影響する。そこで、ミラーでの反射率を 90% とし、 $(A_1^2, A_2^2) = (1, 0.9)$  を式(2-8)に代入すると、可視度は  $V = 0.999$  となり十分高い干渉縞可視度が得られることがわかった。

Table. A-3 サンプル面の露光均一性の解析結果



次に、要求仕様⑤の露光面内でのピッチの変化量  $\delta A < 0.1\%$  を達成するために、必要なロイドミラーとビーム集光点との距離  $L_0$  について検討する。球面波同士の干渉縞は、双曲線関数状になることが知られており、サンプル面で干渉縞ピッチがわずかに変化する。そこで、最も誤差の大きな露光部の端  $(x, y) = (\pm 1.5 \text{ mm}, 3 \text{ mm})$  において、理想的な平面波による干渉縞のピッチ  $A = \lambda / (2 \sin \theta)$  との誤差の解析結果を Fig. A-2 に示す。  $L_0 > 200 \text{ nm}$  で、干渉縞ピッチ  $A$  に対するピッチの変化  $\delta A$  が  $0.1\%$  以下となり、  $L_0 > 400 \text{ nm}$  で、干渉縞の誤差が  $0.01\%$  以下となることがわかった。  $L_0 > 200 \text{ nm}$  で、すべての入射角において最大誤差  $\delta A < 2 \text{ nm}$ 、  $L_0 > 400 \text{ nm}$  で、ピッチの最大誤差  $\delta A < 0.4 \text{ nm}$  となった。これらの結果から、  $L_0 > 200 \text{ nm}$  で要求仕様⑤のピッチの変化量  $\delta A < 0.1\%$  が達成できることがわかった。面内の強度分布のばらつき、ピッチの誤差についての解析結果から、レーザー集光点からロイドミラー間の距離を  $L_0 = 500 \text{ mm}$  とした。

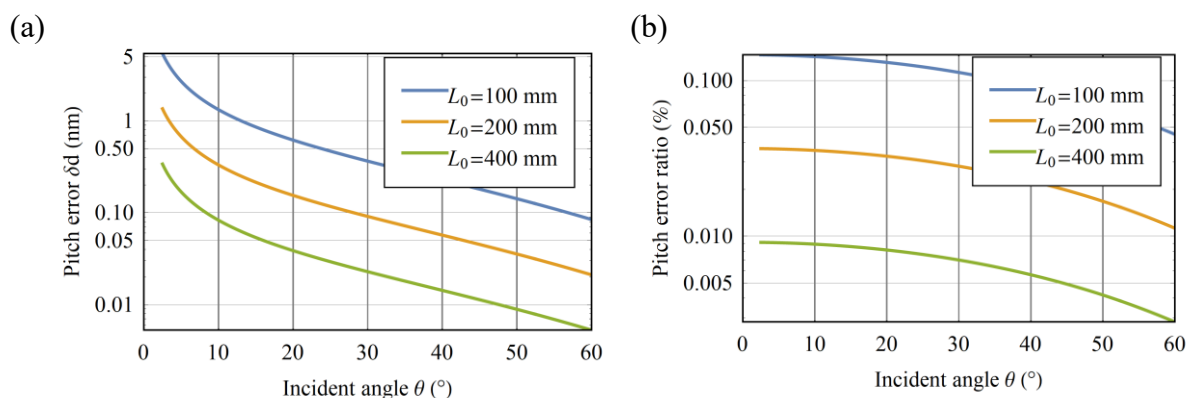


Fig. A-2 干渉縞ピッチの誤差(a)ピッチの絶対誤差 (b)ピッチの誤差比率

次に、要求仕様③露光面積  $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$  を達成するためには、Fig. A-1 (c)に示したように、ミラーの長さ  $L_1$  とビーム径  $D_{0,1}$  と入射角  $\theta$  で以下の式で決まるビームの露光幅  $L_2, L_3$  を適切に設定する必要がある。

$$L_2 = \min\left(\frac{D_1}{2 \cos \theta}, L_1 \tan \theta\right) \quad (\text{A-1})$$

$$L_3 = \frac{D}{2 \sin \theta} \quad (\text{A-2})$$

ただし、 $L_0 = 500 \text{ mm}$  としたので、ビーム径  $D_1 = \sim 30 \text{ mm}$  となり、式(A-1)から  $\theta = 2.3\text{-}55^\circ$  で  $L_2 > 15 \text{ mm}$ ,  $L_2 > 7.5 \text{ mm}$  となる。そのため、ミラーの長さ  $L_1$  によって露光部の最小幅  $\min(L_2, L_3)$  が決まるため、式(A-1)によって計算される露光幅とミラー長さ  $L_1$  への影響を計算した結果を Fig. A-3 に示す。結果から、露光面積  $3 \text{ mm}$  を達成するためにはミラーの長さは  $L_1 \geq 80 \text{ mm}$  の必要がある。

要求仕様⑥のロイドミラー光学系の稼働部に関しては、以下のように回転，平行移動ステージを組み込み，干渉縞の多重露光を実現した。

- $x$  軸回りの回転ステージ：ビームの入射角  $\theta$  の調整
- $z$  軸回りの回転ステージ：干渉縞のサンプルに面内での  $z$  軸周りの角度  $\phi$  の調整

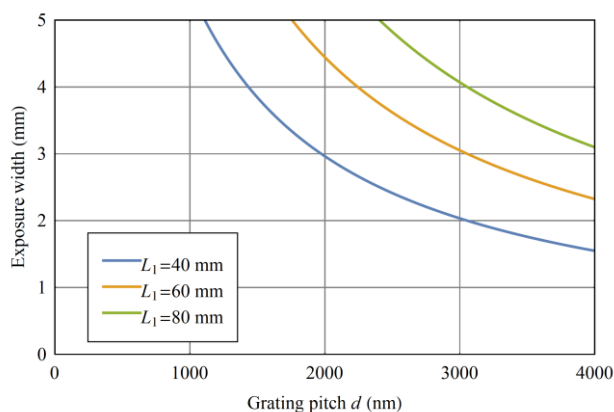


Fig. A-3 ミラー長さ  $L_1$  の露光幅への影響

- $x$ ,  $y$  軸の平行移動ステージ：基板の平行移動による露光箇所の調整

以上の解析結果から，Table. A-4 に示した様に装置の仕様を定めた．

- HeCd レーザー( $\lambda = 325 \text{ nm}$ )を光源として使用．
- レーザー集光点とロイドミラーの距離  $L_0 > 500 \text{ mm}$
- ミラーは，長さ  $L_1 > 80 \text{ mm}$  のアルミミラーを使用．
- 回転ロイドミラー部に 4 軸の手動ステージを組み込む

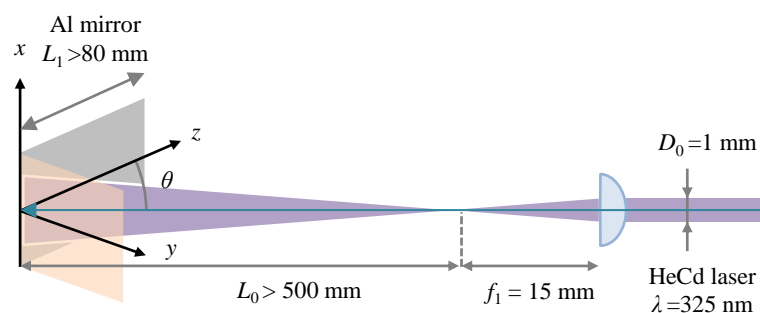


Fig. A-4 回転ロイドミラー光学系の設計仕様

次に，開発した回転ロイドミラー露光装置の外観を Fig. A-5 に示し，構成する素子の仕様を Table. A-5 に示す．ロイドミラー光学系のミラー部には， $60 \text{ mm} \times 80 \text{ mm}$  の長方形アルミミラーを採用した．また， $3 \text{ mm}$  角の加工部以外の入射光を遮るために， $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$  の矩形遮光マスクを設置し，同一基板に複数回の造形を可能にした．また，露光時間は，光路の途中に設置した電磁シャッターで制御した．

Table. A-4 装置の要求，設計仕様

要求仕様	項目	値	設計仕様
	最小加工ピッチ	$\sim 200 \text{ nm}$	$\lambda = 325 \text{ nm}, \theta < 55^\circ$
②	最大加工ピッチ	$\sim 4 \mu\text{m}$	$\theta > 2.3^\circ$
③	加工面積	$3 \text{ mm}$ 角	$L_1 \geq 80 \text{ mm}$
④	強度の不均一性	$< 5\%$	$f_1 = 15 \text{ mm},$ $L_0 \geq 500 \text{ mm}$
⑤	ピッチエラー	$< 0.1 \%$	$f_1 = 15 \text{ mm},$ $L_0 \geq 200 \text{ mm}$
⑥	ステージ自由度	4 自由度	

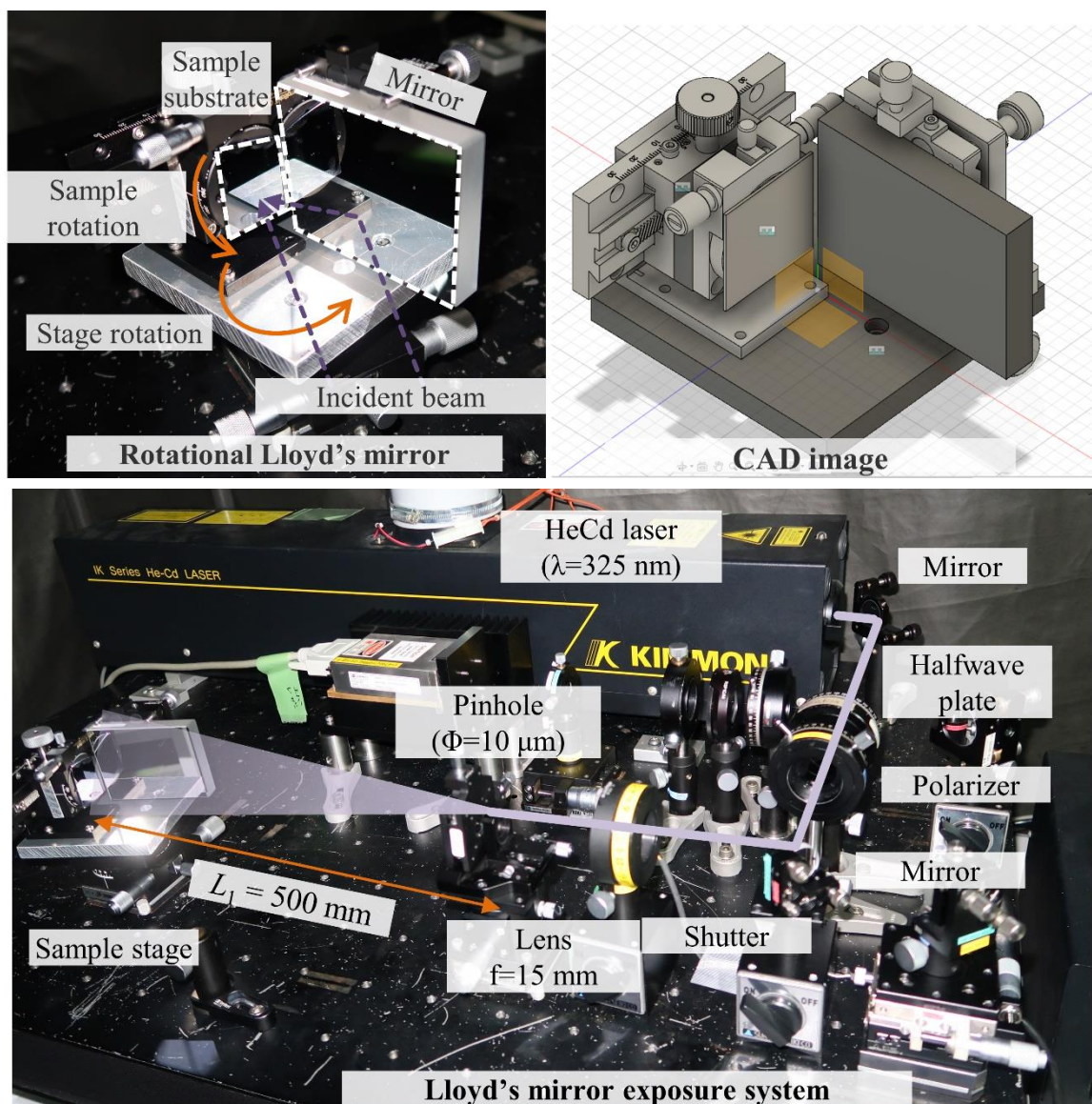


Fig. A-5 開発したロイドミラー光学系の外観

Table. A-5 装置構成素子仕様

素子名	項目	仕様
光源	型番(メーカー)	IK3101R-D(金門光波)
	波長	325 nm
	ビーム径	1.0 mm
	強度	10 mW
ミラー1	型番(メーカー)	TFA-25C05-4(シグマ光機)
	反射率	~90%
$\lambda/2$ 板	型番(メーカー)	WPQ-3250-2M(シグマ光機)
偏光子	型番(メーカー)	NSPFU-30C(シグマ光機)
	消光比	~23 dB
ミラー2	型番(メーカー)	TFM-25.4C05-325/337(シグマ光機)
レンズ	型番(メーカー)	LA4917-UV(Thorlabs)
	焦点距離	15 mm
ピンホール	型番(メーカー)	PA-10(シグマ光機)
	ピンホール径	10 $\pm$ 2 $\mu$ m
ミラー3	型番(メーカー)	TFA-6080R12-10(シグマ光機)
	寸法	60 mm $\times$ 80 mm
	基板面精度	$\lambda/10$
電磁シャッター	型番(メーカー)	F77-4(駿河精機)
シャッターコントローラ	型番(メーカー)	F77-6(駿河精機)
	切り替え時間	11~9999999 ms~
	切り替え時間誤差	$\pm$ 10%



## 付録B. 回転ロイドミラー露光装置による基礎造形実験

次に、開発したロイドミラー干渉装置の基本的な造形性能を確認するため、①レジストの感度曲線取得実験②二重周期構造の造形実証を行った。

まず、①レジストの感度曲線取得実験として、二光束干渉で得られる干渉縞構造を造形、計測し露光エネルギーと現像後の形状の対応関係を得た。実験の手順としては、Si 基板を 3-4 cm 角に切断したものをアセトンで洗浄した後、HMDS を数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで 100°C で 1 分加熱し、疎水化処理をした。レジスト(AZ P1350)を 2000 rpm で膜厚~560 nm になるようにスピコートした後、100°C で 6 分間ソフトベークした。露光後は現像液(AZ Developer)で、室温 24°C、60 秒静止現像した。その後蒸留水で洗浄、乾燥させ干渉縞構造を得た。

二光束干渉によって生じる干渉縞の加工深さを AFM で計測し、露光エネルギーの関係から、レジストの感度曲線を取得する。入射角 6°で入射し、理論干渉縞周期 1554 nm の干渉縞を露光した。直接光とミラー反射光の強度を合わせた入射光強度を 0.24 mW/cm<sup>2</sup>として露光時間を 2-20 秒で 2 秒毎に露光時間を変えて造形を行い、それぞれの造形結果の干渉縞深さを AFM で計測した。露光エネルギーと加工深さの関係を 2 次関数でフィッティングした感度曲線を Fig. B-1 に示した。加工深さは露光エネルギーに対して、ほぼ線形に推移し、2 次関数で良く近似できている。近似曲線と計測結果の誤差は 10 nm 以下程度であり、加工深さに対して 5%程度の差となっている。

次に、多重露光法による②二重周期構造の造形を試みた。実験の手順としては、Si 基板を 3-4 cm 角に切断したものをアセトンで洗浄した後、HMDS を数滴スピコート(3000 rpm)し、ホットプレートで 100°C で 1 分加熱し、疎水化処理を行う。次に、基板上面からの反射を防ぐ為に底面反射防止コート(BARC)剤(AZ BARLi-II-90)を 4000

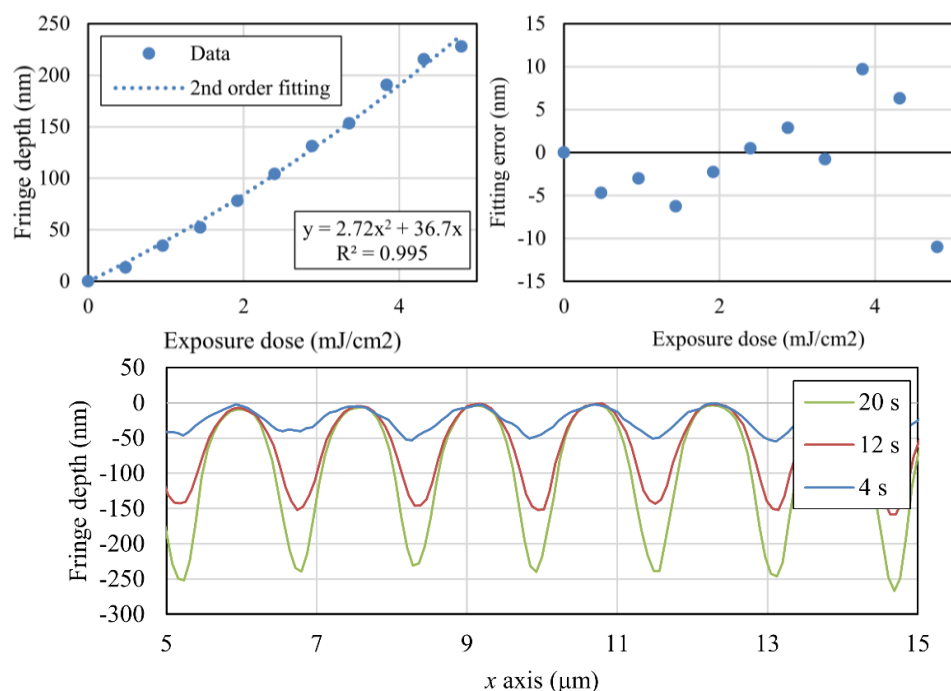


Fig. B-1 露光エネルギーと干渉縞深さの関係

rpm で膜厚約 90 nm になるようにスピコートした。レジスト(AZ P1350)を 800 rpm で膜厚 1000 nm になるようにスピコートした後、100° C で 1 分半ソフトベークした。露光後は現像液(AZ Developer)で、室温 24° C, 60 秒静止現像した。その後蒸留水で洗浄、乾燥させ干渉縞構造を得た。

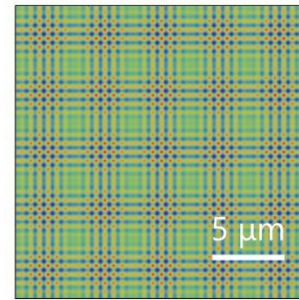
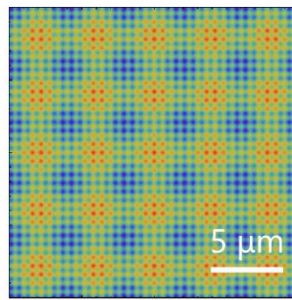
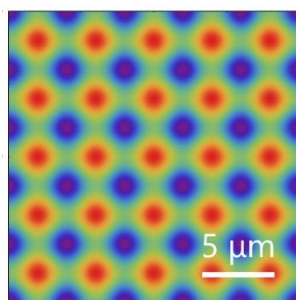
露光条件と、解析した強度分布は Table. B-1 の通りである。条件 1 では比較のために、周期 4  $\mu\text{m}$  の単一周周期構造の造形を行った、すべての条件で基板角度  $\phi$  を 90°回転させて同じ干渉縞を 2 回露光することで、2 次元ドット構造を造形した。条件 2, 3 では、大きな周期が 4  $\mu\text{m}$ , 小さな周期が 600 nm になるように異なる干渉縞の重ね合わせにより、ナノ・マイクロ構造の造形を行った。

顕微鏡と AFM で計測した結果を Fig. B-2 に示す。条件 1 では、正方格子状に直径 2.3  $\mu\text{m}$  程度のマイクロホール形状が得られ、設計周期 4  $\mu\text{m}$  に対して、造形周期 3.5  $\mu\text{m}$  程度となった。この周期誤差は、入射角の誤差に換算すると約 0.3°となる。次に、ナノ、マイクロオーダの周期を直接重ね合わせた条件 2 では、Fig. B-2(b), (e)から分かるように、解析結果とよく一致した造形結果を得た。AFM で計測された断面プロファイルと理論的な強度プロファイルを Fig. B-3 に示した。Fig. B-3(c)の断面プロファイルから、600 nm 周期のドットは高さ 100-200 nm となり、全体の高さは 500-600 nm の多重周期構造になっていることが確認できた。次に、Fig. B-2(c), (f)に示したうなりによってマイクロオーダの周期を得る条件 3 では、4  $\mu\text{m}$  周期のうなりの包絡線がはっきりと得られた。断面プロファイル(Fig. B-3(d))も強度分布とよく一致しており、小さな周期は 590 nm 程度であった。これらの結果から、インプロセス計測における二重周期回折格子の理論モデル作成に用いたレジストの感度曲線の取得に成功し、回転ロイドミラー光学系による多重露光干渉リソグラフィの基礎的な造形特性の確認に成功した。

Table. B-1 多重周期構造造形実験の露光条件

	条件 1		条件 2		条件 3	
露光ステップ	1, 2 回目	1, 2 回目	3, 4 回目	1, 2 回目	3, 4 回目	
基板角度 $\phi$ (°)	0, 90	0, 90	0, 90	0, 90	0, 90	
干渉周期(nm)	4000	4000	600	625	571	
入射角(°)	2.3	2.3	15.7	15.1	16.3	
露光量 (mJ/cm <sup>2</sup> )	12.8	6.4	6.4	6.4	6.4	

解析強度分布



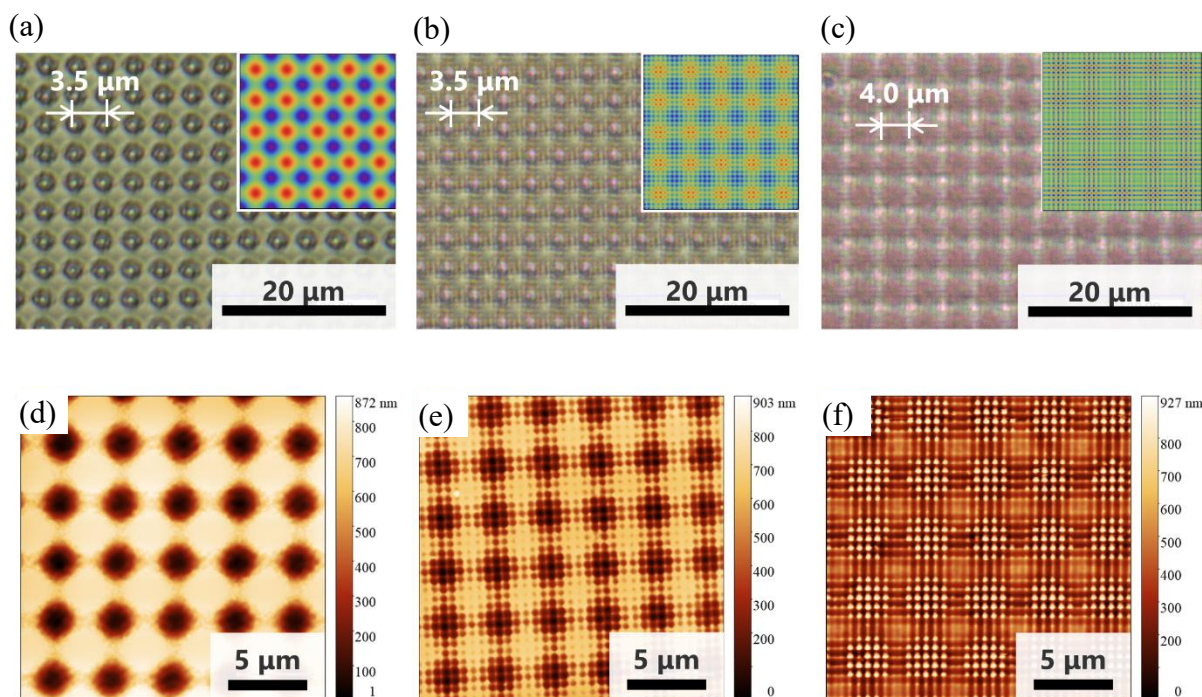


Fig. B-2 多重周期構造の造形結果. 顕微鏡観察像 : (a)条件 1(b)条件 2(c)条件 3,  
AFM 計測結果 : (d)条件 1(e)条件 2(f)条件 3

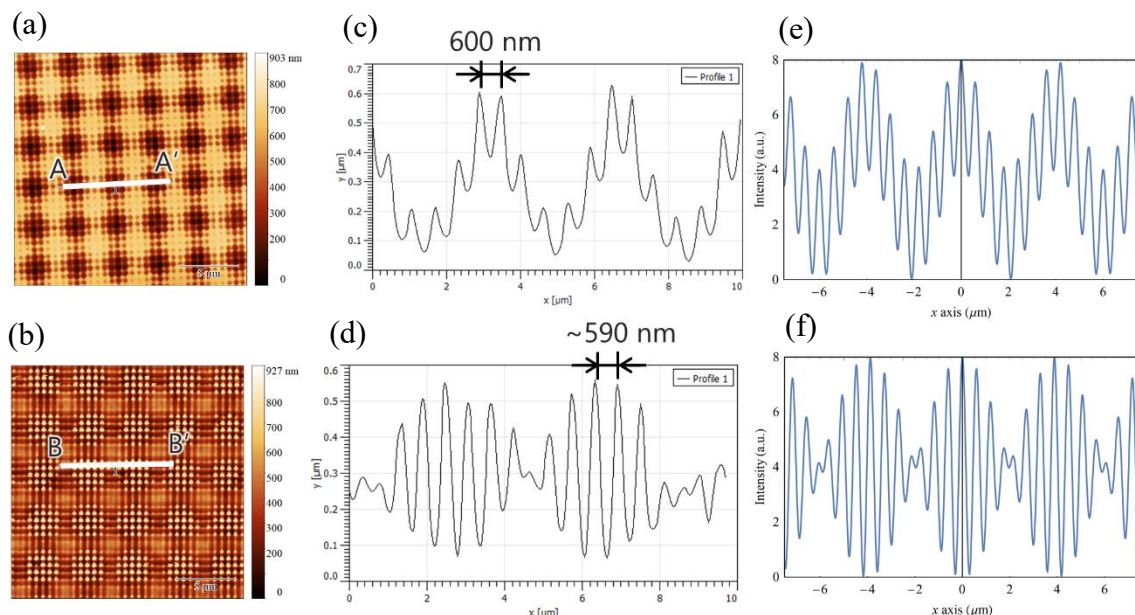


Fig. B-3 断面, 強度プロファイル比較. 2次元 AFM 計測像 : (a)条件 1 (b)条件 2, 断面プロファイル : (c)条件 1, A-A'断面(d)条件 2, B-B'断面, 強度プロファイル : (e)条件 1 (f)条件 2

## 付録C. 回折特性計測装置の開発

第5章で試作した反射型二重周期回折格子の回折特性計測を目指した計測装置の開発について述べる。具体的には、要求機能①3 mm 角の試料の回折光を計測②回折光の角度分布を取得③サンプルへの入射角を調整可能な3点を満足するような計測装置の開発を行った。具体的には、Table. C-1 にまとめた要求仕様を満たすような装置の設計を行った。

まず、回折特性計測用の光源、ディテクタへの要求として、第4章で述べたように、うなりを伴う二重周期回折格子の回折効率、回折次数が高くなるに従って指数関数的に低減するため、高強度の光源と高ダイナミックレンジのディテクタが必要となる。そのため、第5章の二重周期回折格子のインプロセス計測で用いた波長 642 nm の半導体レーザー(最大出力 120 mW)を用いた。ディテクタには、1 nW-5 mW で6桁以上の高ダイナミックレンジでの強度計測が可能なパワーメータ「PM100D」、センサヘッド「SV120VC」を採用した。

次に、構築した計測装置の外観を Fig. C-1 に示す。また、要求機能②、③を満足するために、2軸回転ステージ「RAW-135」を採用した。ステッピングモータによって駆動し、最小角度分解能は 0.005°である。内側の回転ステージに計測サンプルを設置し、外側の回転ステージに測定系を組み込んだ。2点の回折光スポットを角度的に分離可能な最小角度分解能は、サンプルから計測系への距離とビーム径によって決まる。また、計測ビーム径は、造形されるサンプルの寸法よりも小さい必要があるため、入射光のビーム径を~1 mm 程度で調整可能な機構にした。そして、サンプルから 85 mm の距離に、幅 150 μm のスリットを設置することで、計測角 0.1° (85 mm×tan(0.1°)=150 μm)刻みでの回折光強度の角度分布を絶対値で計測可能となった。

また、入射光の偏光は半波長板と偏光子によって調整した。また、計測用のディテクタが入射ビームに干渉するため、入射光に対して±10°程度で回折光の計測が制限される。

Table. C-1 光学測定計測装置の要求仕様

要求仕様	項目	数値
①	計測角度分解能	0.1°
②	計測強度レンジ	1 nW-1 mW (60 dB)
③	入射偏光を調整可	S, P

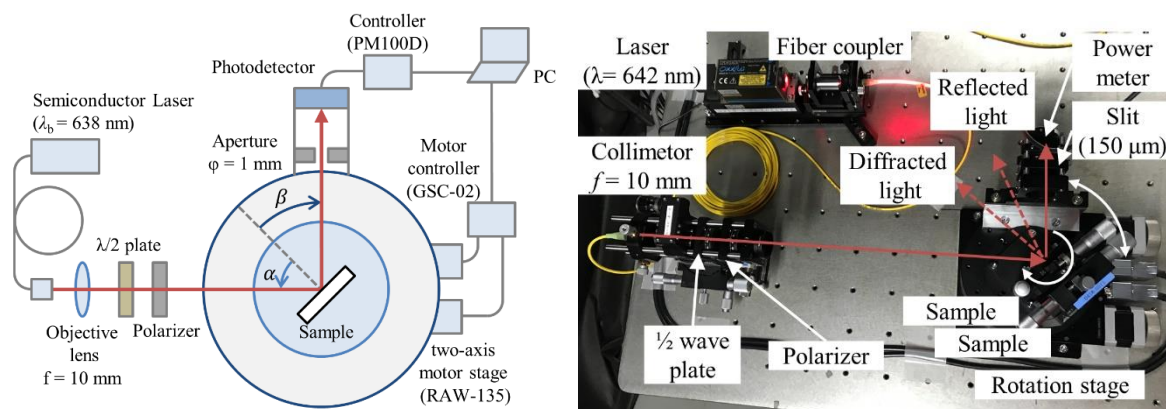


Fig. C-1 回折特性計測装置の外観

Table. C-2 光学測定計測装置の部品表

素子/装置名	項目	仕様
光源 1(回折光測定時)	型番(メーカー)	LBX-642(OXXIUS)
	波長	642 nm
	強度安定性	±0.5%
	出力	130 mW
光源 2(反射率測定時)	型番(メーカー)	LBX-638(OXXIUS)
	波長	642 nm
	強度安定性	±0.5%
コリーメートレンズ	型番(メーカー)	LWD 20(Nikon)
	焦点距離	10 mm
1/2 波長板	型番(メーカー)	AHWP10M-600(Thorlab)
偏光子	型番(メーカー)	LPVISC100-MP2(Thorlab)
スリット(回折光測定時)	型番(メーカー)	S150RD(Thorlab)
	型番(メーカー)	RAW-135(Twin Nines)
2 軸回転ステージ	回転分解能	0.005°/パルス
	位置決め精度	0.1°
	繰り返し位置決め精度	0.02°
	バックラッシュ	0.08°
ステージコントローラ	型番(メーカー)	GSC-02(シグマ光機)
	型番(メーカー)	S120VC(Thorlab)
パワーメータセンサ	波長帯	200-1100 nm
	パワーレンジ	50 nW-50 mW
	分解能	0.1 nW
パワーメータ筐体	型番(メーカー)	PM100D(Thorlab)

装置の基本的な機能を確認するために、Si 基板の S, P 偏光での反射率を測定した。反射率測定の為に、ディテクタ前のスリットを開口径 1 mm のアパーチャに置き換え、光源を 638 nm の半導体レーザーを使用した。入射角を 20-85° で変化させ、基板と検出器を回転させて、入射角を 2° ずつ変化させ反射率を測定した。計測した反射率と Si の屈折率 ( $n = 3.86 + 0.0179i$ ) から計算されるフレネルの反射率を比較したものを Fig. C-2 に示す。S 偏光については、入射角 20-85° で、理論反射率に対して正規化した誤差が 0.34% 程度、P 偏光については、ブリュースター角付近を除いた入射角 20-70° で正規化した誤差が 1.26% 程度での計測に成功した。

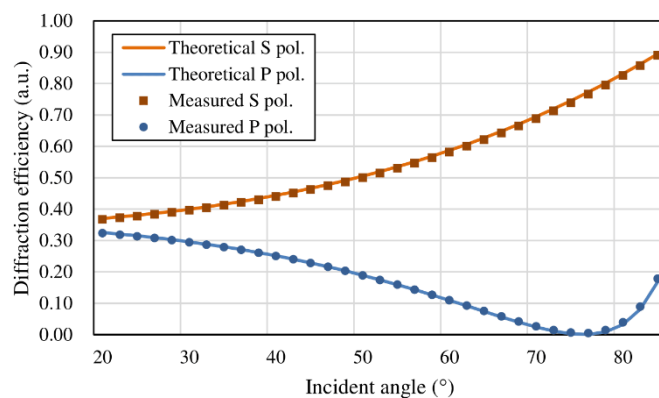


Fig. C-2 Si 基板の反射率計測結果

次に、ディテクタの前に幅 150  $\mu\text{m}$  のスリットを設置し、計測ビーム径の計測を行った。平行光の計測ビームに対して、ステージを中心にスリットを回転させて移動させるが、スキャン角度幅を 1° としたので、回転の影響を無視してスリットが平行移動すると考えた。また、スリット透過時の散乱による強度の低下などは無視できるものとした。その結果、Fig. C-3(a)に示したようにビーム(ビーム径  $w_0$ )の中心から  $x$  ずれた幅  $d$  のスリットが透過する光量  $I_1(x)$  は、以下の式で計算される。

$$\begin{aligned}
 I_1(x) &= \int_{x-\frac{d}{2}}^{x+\frac{d}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{8}{\pi w_0^2} \exp\left(-8 \frac{X^2 + Y^2}{w_0^2}\right) dY dX \\
 &= \int_{x-\frac{d}{2}}^{x+\frac{d}{2}} \frac{2}{w_0} \sqrt{\frac{2}{\pi}} \exp\left(-8 \frac{X^2}{w_0^2}\right) dX
 \end{aligned} \tag{C-3}$$

計測結果と式(C-3)から計算される理論的な強度分布を Fig. C-3(b)に示す。ディテクタで得られた強度分布に対してビーム径  $w_0$  をフィッティングした結果は  $w_0 = 1.56 \text{ mm}$  となり、理論値とよく一致している。また、ビームプロファイラでのビーム径の計測も行い、プロファイラの計測結果  $w_0 = 1.54 \text{ mm}$  は強度分布の計測結果とよく一致する。また、レイリーの基準から 2 つのスポットを区別可能な距離は、 $w_0/2$  であり、角度に換算すると  $\arcsin(w_0/2/85 \text{ mm}) = 0.52^\circ$  となる。波長 642 nm において回折角  $0.52^\circ$  以下と

なる格子周期は  $70.7 \mu\text{m}$  以上となる。つまり、回折角の差が  $0.52^\circ$  以下となる  $70.7 \mu\text{m}$  以上の格子周期によって生じる回折スポットは分離できない。しかし、本研究で想定しているマイクロオーダの周期性は数十  $\mu\text{m}$  程度あるため、本装置の設計においては問題なく分離して計測が可能となる。また、スポット径  $w_0$  を小さくすることで、分離可能な格子周期の最大値を改善することも可能である。

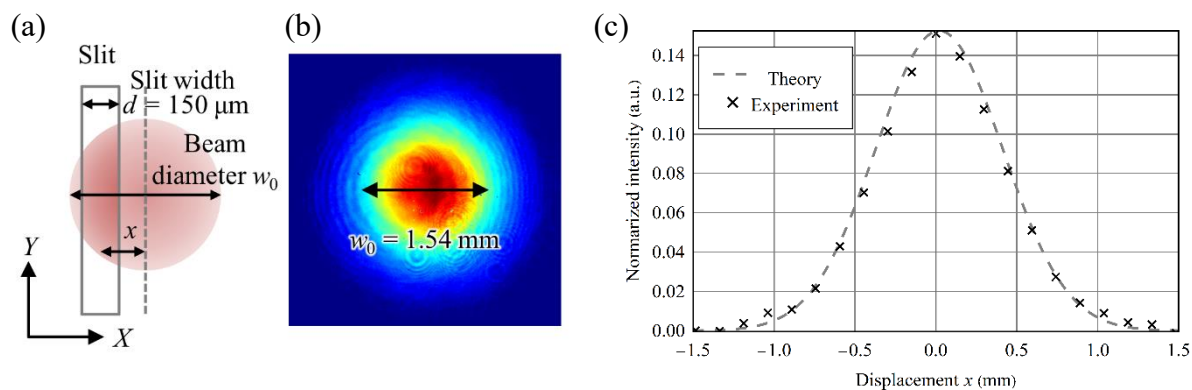


Fig. C-3 (a)スリットからの透過光の模式図 (b)ビームプロファイルの計測結果  
(c)計測ビームの強度分布





## 参考文献

- 
- [1] Jarrell, R. F., & Stroke, G. W. (1964). Some new advances in grating ruling, replication, and testing. *Applied Optics*, 3(11), 1251-1262.
- [2] Gabor, D. (1948). A new microscopic principle. *Nature*, 161, 777-778
- [3] Veselago, V. G. (1968). The Electrodynamics of Substances with Simultaneously Negative Values of  $\text{Im}g$   $\text{Align} = \text{Absmiddle}$   $\text{Alt} = \epsilon$   $\text{Eps}/\text{Im}g$  and  $\mu$ . *Physics-Uspekhi*, 10(4), 509-514.
- [4] Fang, N., & Zhang, X. (2002, August). Imaging properties of a metamaterial superlens. In *Proceedings of the 2nd IEEE Conference on Nanotechnology* (pp. 225-228). IEEE.
- [5] Cai, W., Chettiar, U. K., Kildishev, A. V., & Shalaev, V. M. (2007). Optical cloaking with metamaterials. *Nature photonics*, 1(4), 224-227.
- [6] Smith, D. R., Padilla, W. J., Vier, D. C., Nemat-Nasser, S. C., & Schultz, S. (2000). Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity. *Physical review letters*, 84(18), 4184.
- [7] Shelby, R. A., Smith, D. R., & Schultz, S. (2001). Experimental verification of a negative index of refraction. *science*, 292(5514), 77-79.
- [8] Sun, S., Yang, K. Y., Wang, C. M., Juan, T. K., Chen, W. T., Liao, C. Y., ... & Zhou, L. (2012). High-efficiency broadband anomalous reflection by gradient meta-surfaces. *Nano letters*, 12(12), 6223-6229.
- [9] Dharmavarapu, R., Ng, S. H., Eftekhari, F., Juodkazis, S., & Bhattacharya, S. (2020). MetaOptics: opensource software for designing metasurface optical element GDSII layouts. *Optics Express*, 28(3), 3505-3516.
- [10] Khorasaninejad, M., Shi, Z., Zhu, A. Y., Chen, W. T., Sanjeev, V., Zaidi, A., & Capasso, F. (2017). Achromatic metalens over 60 nm bandwidth in the visible and metalens with reverse chromatic dispersion. *Nano letters*, 17(3), 1819-1824.
- [11] Walther, B., Helgert, C., Rockstuhl, C., Setzpfandt, F., Eilenberger, F., Kley, E. B., ... & Pertsch, T. (2012). Spatial and spectral light shaping with metamaterials. *Advanced Materials*, 24(47), 6300-6304.
- [12] Noda, S., Chutinan, A., & Imada, M. (2000). Trapping and emission of photons by a single defect in a photonic bandgap structure. *nature*, 407(6804), 608-610.
- [13] Ogawa, S., Imada, M., Yoshimoto, S., Okano, M., & Noda, S. (2004). Control of light emission by 3D photonic crystals. *Science*, 305(5681), 227-229.
- [14] Lowell, D., Lutkenhaus, J., George, D., Philipose, U., Chen, B., & Lin, Y. (2017). Simultaneous direct holographic fabrication of photonic cavity and graded photonic lattice with dual periodicity, dual basis, and dual symmetry. *Optics express*, 25(13), 14444-14452.
- [15] Wang, S. S., & Magnusson, R. J. A. O. (1993). Theory and applications of guided-mode resonance filters. *Applied optics*, 32(14), 2606-2613.
- [16] Kikuta, H., Ohira, Y., & Iwata, K. (1997). Achromatic quarter-wave plates using the

- dispersion of form birefringence. *Applied optics*, 36(7), 1566-1572.
- [17] Quaranta, G., Basset, G., Martin, O. J., & Gallinet, B. (2018). Recent advances in resonant waveguide gratings. *Laser & Photonics Reviews*, 12(9), 1800017.
- [18] Lee, K. J., LaComb, R., Britton, B., Shokoooh-Saremi, M., Silva, H., Donkor, E., ... & Magnusson, R. (2008). Silicon-layer guided-mode resonance polarizer with 40-nm bandwidth. *IEEE Photonics Technology Letters*, 20(22), 1857-1859.
- [19] Nordin, G. P., & Deguzman, P. C. (1999). Broadband form birefringent quarter-wave plate for the mid-infrared wavelength region. *Optics express*, 5(8), 163-168.
- [20] Dostalek, J., Čtyroký, J., Homola, J., Brynda, E., Skalský, M., Nekvindova, P., ... & Schröfel, J. (2001). Surface plasmon resonance biosensor based on integrated optical waveguide. *Sensors and actuators B: Chemical*, 76(1-3), 8-12.
- [21] Monzón-Hernández, D., & Villatoro, J. (2006). High-resolution refractive index sensing by means of a multiple-peak surface plasmon resonance optical fiber sensor. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 115(1), 227-231.
- [22] Petefish, J. W., & Hillier, A. C. (2015). Multipitched diffraction gratings for surface plasmon resonance-enhanced infrared reflection absorption spectroscopy. *Analytical chemistry*, 87(21), 10862-10870.
- [23] Lassaline, N., Brechbühler, R., Vonk, S. J., Ridderbeek, K., Spieser, M., Bisig, S., ... & Norris, D. J. (2020). Optical Fourier surfaces. *Nature*, 582(7813), 506-510.
- [24] Sun, J., Wang, X., Wu, J., Jiang, C., Shen, J., Cooper, M. A., ... & Wu, D. (2018). Biomimetic moth-eye nanofabrication: enhanced antireflection with superior self-cleaning characteristic. *Scientific reports*, 8(1), 1-10.
- [25] Ko, D. H., Tumbleston, J. R., Henderson, K. J., Euliss, L. E., DeSimone, J. M., Lopez, R., & Samulski, E. T. (2011). Biomimetic microlens array with antireflective “moth-eye” surface. *Soft Matter*, 7(14), 6404-6407.
- [26] Rao, J., Winfield, R., & Keeney, L. (2010). Moth-eye-structured light-emitting diodes. *Optics communications*, 283(11), 2446-2450.
- [27] Shao, T., Tang, F., Sun, L., Ye, X., He, J., Yang, L., & Zheng, W. (2019). Fabrication of antireflective nanostructures on a transmission grating surface using a one-step self-masking method. *Nanomaterials*, 9(2), 180.
- [28] Palmer, C. A., & Loewen, E. G. (2002). *Diffraction grating handbook* (Vol. 5). New York: Thermo RGL.
- [29] Lepage, J. F., & McCarthy, N. (2004). Analysis of the diffractive properties of dual-period apodizing gratings: theoretical and experimental results. *Applied optics*, 43(17), 3504-3512.
- [30] Zaidi, S. H., & Brueck, S. J. (1993). Multiple - exposure interferometric lithography. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*

- Processing, Measurement, and Phenomena, 11(3), 658-666.
- [31] Momosaki, R., Kawai, K., Sakamoto, M., Noda, K., Sasaki, T., Kawatsuki, N., & Ono, H. (2019). Diffraction properties of liquid crystal cell with beat structure formed by photoalignment substrates. *Applied Optics*, 58(12), 3229-3237.
- [32] Skigin, D. C., Fowlkes, J. D., Roberts, N. A., Scaffardi, L. B., Schinca, D. C., & Lester, M. (2014). Control of the diffracted response of a metallic wire array with double period: experimental demonstration. *Optics letters*, 39(19), 5693-5696.
- [33] Breidne, M., Johansson, S., Nilsson, L. E., & Åhlén, H. (1979). Blazed holographic gratings. *Optica Acta: International Journal of Optics*, 26(11), 1427-1441.
- [34] Skigin, D. C., & Depine, R. A. (2007). Diffraction by dual-period gratings. *Applied optics*, 46(9), 1385-1391.
- [35] Pimpin, A., & Srituravanich, W. (2012). Review on micro-and nanolithography techniques and their applications. *Engineering Journal*, 16(1), 37-56.
- [36] Chen, Y., Yang, H., & Cui, Z. (2006). Effects of developing conditions on the contrast and sensitivity of hydrogen silsesquioxane. *Microelectronic Engineering*, 83(4-9), 1119-1123.
- [37] Heusinger, M., Banasch, M., & Zeitner, U. D. (2017). Rowland ghost suppression in high efficiency spectrometer gratings fabricated by e-beam lithography. *Optics express*, 25(6), 6182-6191.
- [38] LaFratta, C. N., Fourkas, J. T., Baldacchini, T., & Farrer, R. A. (2007). Multiphoton fabrication. *Angewandte Chemie International Edition*, 46(33), 6238-6258.
- [39] Tétreault, N., von Freymann, G., Deubel, M., Hermatschweiler, M., Pérez - Willard, F., John, S., ... & Ozin, G. A. (2006). New route to three - dimensional photonic bandgap materials: silicon double inversion of polymer templates. *Advanced Materials*, 18(4), 457-460.
- [40] Maruo, S., Nakamura, O., & Kawata, S. (1997). Three-dimensional microfabrication with two-photon-absorbed photopolymerization. *Optics letters*, 22(2), 132-134.
- [41] Ehrlich, J. E., Wu, X. L., Lee, I. Y., Hu, Z. Y., Röckel, H., Marder, S. R., & Perry, J. W. (1997). Two-photon absorption and broadband optical limiting with bis-donor stilbenes. *Optics Letters*, 22(24), 1843-1845.
- [42] <https://www.upnano.at/products/#nanoone> (2020/10/27 時点)
- [43] Wollhofen, R., Katzmann, J., Hrelescu, C., Jacak, J., & Klar, T. A. (2013). 120 nm resolution and 55 nm structure size in STED-lithography. *Optics express*, 21(9), 10831-10840.
- [44] Lotito, V., & Zambelli, T. (2017). Approaches to self-assembly of colloidal monolayers: A guide for nanotechnologists. *Advances in colloid and interface science*, 246, 217-274.
- [45] Li, L., Zhai, T., Zeng, H., Fang, X., Bando, Y., & Golberg, D. (2011). Polystyrene sphere-

- assisted one-dimensional nanostructure arrays: synthesis and applications. *Journal of Materials Chemistry*, 21(1), 40-56.
- [46] Fu, Y., Fang, F., & Xu, Z. (2011). Nanofabrication and characterization of plasmonic structures (Vol. 9, pp. 243-266).
- [47] Pirati, A., Peeters, R., Smith, D., Lok, S., Minnaert, A. W., van Noordenburg, M., ... & Zoldesi, C. (2015, March). Performance overview and outlook of EUV lithography systems. In *Extreme Ultraviolet (EUV) Lithography VI* (Vol. 9422, p. 94221P). International Society for Optics and Photonics.
- [48] <https://qd-europe.com/fi/en/news/product-application-news-spectrum/the-microwriter-powerful-photolithography/>
- [49] Khumpuang, S., & Hara, S. (2015). A MOSFET fabrication using a maskless lithography system in clean-localized environment of minimal fab. *IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing*, 28(3), 393-398.
- [50] <https://www.amo.de/products-services/interference-lithography-gratings/> (2020/10/27 時点)
- [51] Lutkenhaus, J., George, D., Moazzezi, M., Philipose, U., & Lin, Y. (2013). Digitally tunable holographic lithography using a spatial light modulator as a programmable phase mask. *Optics express*, 21(22), 26227-26235.
- [52] Xavier, J., & Joseph, J. (2014). Complex photonic lattices embedded with tailored intrinsic defects by a dynamically reconfigurable single step interferometric approach. *Applied Physics Letters*, 104(8), 081104.
- [53] Sarkar, S., & Joseph, J. (2020, May). Phase controlled interference lithography: a dynamic tool for large-area fabrication of nano-photonic structures. In *Three-Dimensional Imaging, Visualization, and Display 2020* (Vol. 11402, p. 114020B). International Society for Optics and Photonics.
- [54] Lu, C., Hu, X. K., Dimov, S. S., & Lipson, R. H. (2007). Controlling large-scale film morphology by phase manipulation in interference lithography. *Applied optics*, 46(29), 7202-7206.
- [55] Liu, M. N., Wang, L., Yu, Y. H., & Li, A. W. (2017). Biomimetic construction of hierarchical structures via laser processing. *Optical Materials Express*, 7(7), 2208-2217.
- [56] 駒野博司. (1995). 微細加工技術と表面処理 フォトリソグラフィ (1) レジスト材料. *表面技術*, 46(9), 778-783.
- [57] Karafyllidis, I., Hagouel, P. I., Thanailakis, A., & Neureuther, A. R. (2000). An efficient photoresist development simulator based on cellular automata with experimental verification. *IEEE transactions on semiconductor manufacturing*, 13(1), 61-75.
- [58] van Wolferen, H., & Abelmann, L. (2011). Laser interference lithography. *Lithography:*

- Principles, processes and materials, 133-148
- [59] Naqvi, S. S. H., & McNeil, J. R. (1999, July). Optical scatterometry for process metrology. In *Optical Metrology: A Critical Review* (Vol. 10294, p. 1029407). International Society for Optics and Photonics
- [60] Yoon, E., Green, C. A., Gottscho, R. A., Hayes, T. R., & Giapis, K. P. (1992). Latent image diffraction from submicron photoresist gratings. *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena*, 10(5), 2230-2233.
- [61] 下川房男. (2011). エッチング技術の基礎. *精密工学会誌*, 77(2), 162-168.
- [62] [https://research.engineering.ucdavis.edu/cnm2/wp-content/uploads/sites/11/2014/07/dry\\_etching\\_photoresist.pdf](https://research.engineering.ucdavis.edu/cnm2/wp-content/uploads/sites/11/2014/07/dry_etching_photoresist.pdf) (2021/01/12 時点)
- [63] Lowell, D., Hassan, S., Sale, O., Adewole, M., Hurley, N., Philipose, U., ... & Lin, Y. (2018). Holographic fabrication of graded photonic super-quasi-crystals with multiple-level gradients. *Applied optics*, 57(22), 6598-6604.
- [64] Xiong, W., Xu, Y., Xiao, Y., Lv, X., & Wu, L. (2015). Polarization manipulation in single refractive prism based holography lithography. *Photonics and Nanostructures-Fundamentals and Applications*, 13, 74-79.
- [65] <https://www.photonicsolutions.co.uk/upfiles/LineNarrowedExcimersDatasheetLG06Feb18.pdf>
- [66] Bloomstein, T. M., Marchant, M. F., Deneault, S., Hardy, D. E., & Rothschild, M. (2006). 22-nm immersion interference lithography. *Optics express*, 14(14), 6434-6443.
- [67] Bagal, A., & Chang, C. H. (2013). Fabrication of subwavelength periodic nanostructures using liquid immersion Lloyd's mirror interference lithography. *Optics letters*, 38(14), 2531-2534.
- [68] Mehrotra, P., Mack, C. A., & Blaikie, R. J. (2012, March). A solid immersion interference lithography system for imaging ultra-high numerical apertures with high-aspect ratios in photoresist using resonant enhancement from effective gain media. In *Optical Microlithography XXV* (Vol. 8326, p. 83260Z). International Society for Optics and Photonics.
- [69] Martinez-Anton, J. C. (2006). Surface relief subwavelength gratings by means of total internal reflection evanescent wave interference lithography. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 8(4), S213.
- [70] Sreekanth, K. V., Chua, J. K., & Murukeshan, V. M. (2010). Interferometric lithography for nanoscale feature patterning: a comparative analysis between laser interference, evanescent wave interference, and surface plasmon interference. *Applied optics*, 49(35), 6710-6717.

- 
- [71] Bezus, E. A., Doskolovich, L. L., & Kazanskiy, N. L. (2011). Evanescent-wave interferometric nanoscale photolithography using guided-mode resonant gratings. *Microelectronic Engineering*, 88(2), 170-174
- [72] Smith, B. W., Fan, Y., Zhou, J., Lafferty, N., & Estroff, A. (2006, March). Evanescent wave imaging in optical lithography. In *Optical Microlithography XIX* (Vol. 6154, p. 61540A). International Society for Optics and Photonics.
- [73] Lee, K. J., Curzan, J., Shokooh-Saremi, M., & Magnusson, R. (2011). Resonant wideband polarizer with single silicon layer. *Applied Physics Letters*, 98(21), 211112.
- [74] Hemmati, H., Bootpakdeetam, P., Lee, K. J., & Magnusson, R. (2020). Rapid large-scale fabrication of multipart unit cell metasurfaces. *Optics Express*, 28(13), 19304-19314.
- [75] Lee, J. H., Woong Yoon, J., Jin Jung, M., Kyun Hong, J., Ho Song, S., & Magnusson, R. (2014). A semiconductor metasurface with multiple functionalities: A polarizing beam splitter with simultaneous focusing ability. *Applied Physics Letters*, 104(23), 233505.
- [76] Shokooh-Saremi, M., & Magnusson, R. (2007). Particle swarm optimization and its application to the design of diffraction grating filters. *Optics letters*, 32(8), 894-896.
- [77] Lee, K. J., Giese, J., Ajayi, L., Magnusson, R., & Johnson, E. (2014). Resonant grating polarizers made with silicon nitride, titanium dioxide, and silicon: design, fabrication, and characterization. *Optics Express*, 22(8), 9271-9281.
- [78] Yoon, J. W., Lee, K. J., & Magnusson, R. (2015). Ultra-sparse dielectric nanowire grids as wideband reflectors and polarizers. *Optics express*, 23(22), 28849-28856.
- [79] Kikuta, H., Yoshida, H., & Iwata, K. (1995). Ability and limitation of effective medium theory for subwavelength gratings. *Optical Review*, 2(2), 92-99.
- [80] Strong, J. (1936). On a method of decreasing the reflection from nonmetallic substances. *JOSA*, 26(1), 73-74.
- [81] Catalán, L. A. (1965). p-Polarized Reflectances for Transparent Thin Films on Transparent Substrates. *JOSA*, 55(7), 857-859.
- [82] Brundrett, D. L., Glytsis, E. N., Gaylord, T. K., & Bendickson, J. M. (2000). Effects of modulation strength in guided-mode resonant subwavelength gratings at normal incidence. *JOSA A*, 17(7), 1221-1230.
- [83] Heusinger, M., Flügel-Paul, T., & Zeitner, U. D. (2016). Large-scale segmentation errors in optical gratings and their unique effect onto optical scattering spectra. *Applied Physics B*, 122(8), 222.
- [84] Gan, Z., Cai, J., Liang, C., Chen, L., Min, S., Cheng, X., ... & Li, W. D. (2019). Patterning of high-aspect-ratio nanogratings using phase-locked two-beam fiber-optic interference lithography. *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, 37(6), 060601.

- [85] Burch, J. M. (1960). Photographic production of gratings for measurement. *Research*, 13(1), 2.
- [86] Ritchie, R. H., Arakawa, E. T., Cowan, J. J., & Hamm, R. N. (1968). Surface-plasmon resonance effect in grating diffraction. *Physical Review Letters*, 21(22), 1530.
- [87] Freschi, A. A., dos Santos, F. J., Rigon, E. L., & Cescato, L. (2002). Phase-locking of superimposed diffractive gratings in photoresists. *Optics communications*, 208(1-3), 41-49.
- [88] Petefish, J. W., & Hillier, A. C. (2015). Multipitched diffraction gratings for surface plasmon resonance-enhanced infrared reflection absorption spectroscopy. *Analytical chemistry*, 87(21), 10862-10870.
- [89] Li, C., Zhou, C., Lu, Y., Miao, C., Yu, J., Yin, Z., & Ye, J. (2020). Picometer-differential twice-exposed element for three-dimensional measurement with extremely long depth of field. *Applied Optics*, 59(17), 5234-5239.
- [90] Moharam, M. G., & Gaylord, T. K. (1982). Diffraction analysis of dielectric surface-relief gratings. *JOSA*, 72(10), 1385-1392.
- [91] Moharam, M. G., & Gaylord, T. K. (1981). Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction. *JOSA*, 71(7), 811-818.
- [92] Aspnes, D. E., & Theeten, J. B. (1980). Spectroscopic analysis of the interface between Si and its thermally grown oxide. *Journal of The Electrochemical Society*, 127(6), 1359.
- [93] Weber, J. W., Hansen, T. A. R., Van de Sanden, M. C. M., & Engeln, R. (2009). B-spline parametrization of the dielectric function applied to spectroscopic ellipsometry on amorphous carbon. *Journal of Applied Physics*, 106(12), 123503.
- [94] Masui, S., Torii, Y., Michihata, M., Takamasu, K., & Takahashi, S. (2019). Fabrication of nano/micro dual-periodic structures by multi-beam evanescent wave interference lithography using spatial beats. *Optics express*, 27(22), 31522-31531.
- [95] Mehrotra, P., Mack, C. A., & Blaikie, R. J. (2013). A detailed study of resonance-assisted evanescent interference lithography to create high aspect ratio, super-resolved structures. *Optics express*, 21(11), 13710-13725.
- [96] Niu, X., Qi, Y., Wang, J., Zhang, Z., Du, J., Guo, Y., ... & Gong, M. (2010). Approach of enhancing exposure depth for evanescent wave interference lithography. *Microelectronic engineering*, 87(5-8), 1168-1171.
- [97] Meyrowitz, R. (1955). A compilation and classification of immersion media of high index of refraction. *American Mineralogist: Journal of Earth and Planetary Materials*, 40(5-6), 398-409.
- [98] Harvey, J. E., & Pfisterer, R. N. (2019). Understanding diffraction grating behavior: including conical diffraction and Rayleigh anomalies from transmission gratings. *Optical Engineering*, 58(8), 087105.



# 業績

## 学術論文

- [A-1] Shuzo MASUI, Yuki TORII, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, and Satoru TAKAHASHI, “Fabrication of nano/micro dual-periodic structures by multi-beam evanescent wave interference lithography using spatial beats.” *Optics express*, 27(22), 31522-31531. (2019)
- [A-2] Satoru TAKAHASHI, Shuzo MASUI, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, “Advanced generation of functional dual-periodic microstructured surface based on optical in-process measurement.” *CIRP Annals*, 69(1),477-480. (2020)
- [A-3] Shuzo MASUI, Shotaro KADOYA, Masaki MICHIHATA, and Satoru TAKAHASHI, “Theoretical model of a subwavelength grating polarization beam splitter.” *Applied Optics*, 59(30), 9469-9475. (2020)

## 国際会議

### 口頭発表

- [B-1] Shuzo MASUI, Yuki SUZUKI, Yuki MATSUMOTO, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, and Satoru TAKAHASHI, “Multi-Beam Interference Lithography Based on Evanescent Wave for Functional Nano-Complex Surface”, 32st American Society of Precision Engineering Annual Meeting (32st ASPE Annual Meeting), pp.113-116, Charlotte (USA), October 2017
- [B-2] Shuzo MASUI, Yuki SUZUKI, Yuki MATSUMOTO, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, and Satoru TAKAHASHI, “Theoretical Analysis Multi-Beam Interference Lithography Combining Evanescent and Propagation Light”, The 7<sup>th</sup> International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN2017), MNF-O-09, Seoul (Korea), November 2017
- [B-3] Shuzo MASUI, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, Toshihiko SHIBANUMA, Hironao TANAKA and Satoru TAKAHASHI, “Fabrication of Functional Subwavelength Structured Surface Using Evanescent Wave Interference Lithography”, 17<sup>th</sup> International Conference on Precision Engineering (ICPE), F-2-7, Kamakura (Japan), November 2018
- [B-4] Shuzo MASUI, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, and Satoru TAKAHASHI, “Fabrication of Dual-Periodic nanostructures with Multi-Exposure Interference Lithography Using Lloyd’s Mirror”, The 8th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and nanotechnology (ASPEN2019), A14, Matue (Japan), November 2019
- [B-5] Shuzo MASUI, Masaki MICHIHATA, Kiyoshi TAKAMASU, and Satoru TAKAHASHI, “Measuring Optical Properties of Advanced Nano/Micro-Periodic Structures Fabricated by Multi-Exposure Interference Lithography”, The International Conference on Leading Edge Manufacturing/Material & Processing (LEM&P2020), Cincinnati(USA), June 2020

### ポスター発表

- [B-6] Shuzo MASUI, Masaki MICHINATA, Kiyoshi TAKAMASU, and Satoru TAKAHASHI, “Fabrication of Nano-and Micro-Structured Surface Using Spatial Beat of Evanescent Wave Interference Lithography”,

---

cuspen's International Conference & Exhibition , P1.15, Bilbao (Spain), June 2019

## 国内会議

- [C-1] 増井 周造, 鈴木 裕貴, 道畑 正岐, 高増 潔, 高橋 哲“エバネッセント光多方位干渉造形法による次世代表面機能構造の創製(第1報)-RCWA法を用いた光学特性解析-”, 2017年度精密工学会秋季大会学術講演会, 講演論文集 L23 pp.803-804, 大阪, 2017年9月
- [C-2] 増井 周造, 鈴木 裕貴, 道畑 正岐, 高増 潔, 高橋 哲, 柴沼 俊彦, 田中 大直“エバネッセント光多方位干渉造形法による次世代表面機能構造の創製(第2報)-サブ波長表面構造の造形と光学特性評価-”, 2018年度精密工学会春季大会学術講演会, 講演論文集 K08 pp.653-654, 東京, 2018年3月
- [C-3] 増井 周造, 道畑 正岐, 高増 潔, 高橋 哲 “エバネッセント光多方位干渉造形法による次世代表面機能構造の創製(第3報)-うなりによる干渉強度分布の変調特性検討 -”, 2018年度精密工学会秋季大会学術講演会, 講演論文集 H04-10 pp.863-864, 函館, 2018年9月
- [C-4] 増井 周造, 道畑正岐, 高増 潔, 高橋 哲 “エバネッセント光干渉リソグラフィを用いたナノ・マイクロ構造の一括造形” 光学シンポジウム, 東京, 2019年5月
- [C-5] 増井周造, 道畑正岐, 高増潔, 高橋哲 “階層型微細機能構造創製に関する研究(第2報)インプロセス干渉縞計測による多重干渉リソグラフィの露光制御” 2020年度精密工学会春季学術講演会, 東京, 2020年3月
- [C-6] 畚野剛流, 増井周造, 道畑正岐, 高増潔, 高橋哲 “階層型微細機能構造創製に関する研究(第1報)—多重定在波照明露光構造の光学特性の理論解析—” 2020年度精密工学会春季学術講演会, 東京, 2020年3月

## その他

- [D-1] 2017年, 2017年度精密工学会秋季大会学術講演会にて, 「ベストプレゼンテーション賞」を精密工学会から受賞.
- [D-2] 2017年, 2017年度精密工学会秋季大会学術講演会にて, 「ベストポスタープレゼンテーション賞」を精密工学会から受賞.
- [D-3] 2018年, 国際会議 17<sup>th</sup> International Conference on Precision Engineering (ICPE)にて, Young researcher Award」を精密工学会から受賞. (全発表の5%のみ受賞)
- [D-4] 2020年, 学術論文“Theoretical model of a subwavelength grating polarization beam splitter.”が Applied Optics 誌の Editor's Pick に選出. (各号10%程度が選出)

# 謝辞

本博士論文は、多くの方のご指導、ご援助がなければ完成に至りませんでした。ここに感謝を述べます。

指導教官である高橋哲教授には、学部4年時からの6年に渡りご指導頂き大変感謝致します。先生の研究に対する姿勢や哲学は勿論、自由で自主性が尊重される研究室づくり、様々な場面での立ち振舞いなどは私のこれらの人生において、大きな財産になると確信しております。博士課程では、研究方針を模索しつつも一つの論文としてまとめることの大切さ、喜びが、研究を進める上の大きなモチベーションとなりました。博士論文執筆時には、まとめ上げるところで苦勞する場面も多かったですが、最後まで根気強く、親身に指導して頂いたことで執筆を完了することが出来ました。

道畑正岐准教授には、研究室でご指導いただくとともに、博士論文の審査では副査として、ご指導頂き大変感謝致します。なぜか今になって思い出されるのは、学部4年で研究室に配属されたばかりの頃に、実験装置について一つ一つ丁寧にご教授頂いたことです。その時の経験が、先輩や後輩と一緒に研究を進め方に活かしていることを実感しています。また、博士論文の構成についても、ざっくばらんな話で、背中を押して頂いたことが非常に励みになりました。

本論文の審査で副査をして頂いた金範俊教授、杉田直彦教授、三村秀和准教授には、論文の内容は勿論、ストーリーや構成に至るまで大変重要なご指摘を頂き感謝しております。

金範俊教授には、博士論文全体のストーリーに関する指摘だけでなく、干渉リソグラフィを含む微細加工やデバイス開発の経験に基づいた実践的な助言を頂きました。大変感謝しております。

杉田直彦教授には、干渉露光装置に関する実践的なご指摘だけでなく、博士論文におけるストーリーや主張点の重要性をご教授頂きました。大変感謝しております。

三村先生、本論文だけでなく修士論文の副査をして頂いた時から、現実的で避けがたい重要な問題をいくつもお指摘頂きました。特に、スカラー回折理論、有効媒質理論など、近似に関わる部分や、造形形状のクオリティーなどより深く見直すことが出来ました。大変感謝しております。

研究室内外先輩、同期、後輩の皆様にも大変励まし、助けて頂きました。最後に、研究に没頭する私を、いつも優しく見守ってくれた家族に感謝します。

