タルボット効果による多重露光リソグラフィを用いた 3次元ナノ周期構造の作製*

中西 弘樹** 篠崎 充** 水谷 康弘† 高谷 裕浩†

Fabrication of 3D Nano-Periodic Structure Using Multiple Exposure Lithography by Talbot Effect

Hiroki NAKANISHI, Mitsuru SHINOZAKI, Yasuhiro MIZUTANI and Yasuhiro TAKAYA

Recently, structures having periods of nanometer scale, such as photonic crystals and biomimetic structures, have been developed. And, it is known that the optical function becomes diversified as the period of the structure becomes multidimensional. So, a highly efficient fabrication method of three dimensional nano periodic structure is required. The Talbot effect is a phenomenon in which a periodic light intensity distribution is generated by a diffraction grating and has high processing efficiency by applying it to lithography. However, there is a problem that flexibility of processing is low. To solve this problem, we propose to use multiple exposure for lithography using Talbot effect. In this paper, the structure is three - dimensionalized by rotating the diffraction grating and performing multiple exposure, and the flexibility of lithography processing using the Talbot effect is improved.

Key words: Talbot effect, three dimensional periodic structure, multiple exposure, lithography, FDTD

1. 緒 言

近年、ナノメートルオーダの周期を有する様々な3次元構造が発見または開発されている。例えば、光の波長オーダの構造によって光の進行方向や透過スペクトルなどを特異的に制御することが可能なフォトニック結晶¹⁾、生物が有する機能性微細構造を模倣したバイオミメティクス構造²⁾などがある。これらの構造は、周期が多次元化するにつれて得られる機能が多様化することが知られており、3次元の微細構造への注目が高まっている。しかし、構造の多次元化に伴い、加工に要する時間が長くなるという問題が顕在化し、加工効率を向上させることが求められている。また、複雑な構造の作製も要求されており、周期性を任意に制御可能な高い加工自由度への要求もある。これまでに報告されている3次元ナノ周期構造を作製する手法としては、リソグラフィ³⁾、ナノインプリント⁴⁾、レーザ微細加工⁵⁾、AFMによる原子操作⁶⁾および自己組織化⁷⁾などがある。しかし、いずれの手法においても加工効率と加工自由度はトレードオフの関係にある。したがって、ナノメートルオーダの任意の周期性を有する3次元構造をミリメートルオーダ以上の範囲に一括で加工することは困難である。これらの問題を踏まえ、我々は、簡易的な装置で高い加工効率を有するタルボット効果を用いた3次元リソグラフィに着目した。

タルボット効果によるリソグラフィは、2004年にS. Jeonらによって最初に報告され、簡易的で高効率なリソグラフィ手法として注目されている⁸⁾。タルボット効果は、1836年にHenry Fox Talbotによって発見された⁹⁾。これは、平面波が回折格子に入射した際に、フレネル領域の回折光同士が干渉することで周期的な光強度分布が3次元的に繰り返される現象である。この

周期的な光強度分布を回折格子で発生させ、リソグラフィの露光に用いることで、大面積に周期的な微細構造を一括で3次元的に加工することが可能である

これまでに様々なタルボット効果を用いたリソグラフィの応用研究が報告されている。例えば、自己組織化により整列させたコロイド粒子を回折格子として用いてタルボット効果を生じさせた研究¹⁰⁾やタルボット効果によるコロイドパターン複製¹¹⁾などがある。タルボット効果によるリソグラフィは大面積を一括で加工できるため加工効率は高い。しかし、周期を制御するためのパラメータが波長と格子ピッチの2つと少なく、周期の制御が2次元に限定されるため、加工自由度が低いという問題点がある。

ここで、加工自由度を、作製構造の周期を任意に制御できる次元の数と定義する。現状のタルボットリソグラフィでは2次元の周期しか制御できず、任意の周期を有する3次元ナノ周期構造の加工を実現することは困難である。そこで、フォトレジストの露光特性と1次元回折格子の設置自由度に着目した。フォトレジストは、一定のしきい値以上の露光量が得られた領域のみ硬化する。したがって、異なる波面を複数組み合わせる強度加算の考えが適用できる。また、1次元回折格子は、面に垂直な軸を中心とした回転角および入射光に対する面のおり角の2つの設置自由度を有する。そこで、1次元回折格子を同一平面上で回転させて多重露光を行うことによる構造の3次元化を考える。具体的には、まずフォトレジストが硬化する半分の露光量で一度露光する。その後、格子を同一平面上で回転させて同じ露光量で再度露光を行うことで、3次元に周期的な光強度分布をフォトレジストに転写し、3次元ナノ周期構造を作製する。さらに、この手法は、2回の露光で異なるピッチの格子を用いることで、3次元の周期を任意に制御でき、タルボット効果によるリソグラフィの加工自由度を向上させることが可能であると考えられる。本研究では、ナノメートルオーダの任意の3次元周期構造をミリメートルオーダ以上の範囲に一括で加工することを目指す。本論文では、まずフォトニック結晶やバイオミメティクス構造

* 原稿受付 平成30年10月30日

掲載決定 平成31年3月29日

** 学生会員 大阪大学大学院工学研究科
(大阪府吹田市山田丘2-1)

† 正会員 大阪大学大学院工学研究科

の実現に向けた、加工領域はミリメートルオーダーで、光の波長オーダーの周期を有する構造を作製する。まず、3次元ナノ周期構造を提案手法により3次元の周期を有するナノ構造が作製できることをFDTD法を用いて解析的に確認した。次に、単一露光プロセスにより2次元ナノ周期構造を作製して、レジストの加工しきい値を算出した。その後、多重露光プロセスで3次元ナノ周期構造が大面積に一括で作製されることを実験的に確認した。

2. タルボット効果を用いた3次元ナノ周期構造の作製法

図1に、タルボット効果による3次元ナノ周期構造の作製法の概要を示す。図1(a)に示すとおり、波長 λ の平面波が回折格子に入射すると、フォトリソ中ではフレネル回折が生じる¹²⁾。ここで、回折格子の周期方向を x 軸に、光の伝搬方向を z 軸方向とし、回折格子の振幅透過率を $T(x)$ とすると、回折格子を原点とした観測面 z での複素振幅分布 $E(x, z)$ は、フレネル回折積分¹³⁾の解より、

$$E(x, z) = \frac{1}{\sqrt{i\lambda z}} \int T(x') \exp \left[\frac{i\pi n}{\lambda z} (x - x')^2 \right] dx', \quad (1)$$

と表される。ここで、 x' は観測面 z における x 座標であり、 n はフォトリソの屈折率である。なお、回折格子の振幅透過率 $T(x)$ は、

$$T(x) = \sum_j a_k \exp \left(i2\pi \frac{j}{d} x \right), \quad (2)$$

となり、フーリエ級数展開で表せる。ここで、 d は回折格子の周期ピッチ、 a_k は回折格子の透過関数による k 次のフーリエ係数である。式(2)を(1)に代入して積分すると、

$$E(x, z) = \sum_j a_k \exp \left(-i\pi \lambda \frac{j^2}{nd^2} z \right) \exp \left(i2\pi \frac{j}{d} x \right), \quad (3)$$

となり、複素振幅分布 $E(x, z)$ を求めることができる。この複素振幅分布は x 軸および z 軸方向に周期を有することが分かり、 x 軸方向の周期は d である。一方、 z 軸方向の周期について考えると、観測面 z が

$$z = p \frac{nd^2}{\lambda} \quad (p = 0, 1, 2, \dots), \quad (4)$$

の条件を満たすとき、式(3)は、

$$E \left(x, p \frac{nd^2}{\lambda} \right) = \sum_j a_k \exp(-\pi j^2 p) \exp \left(i2\pi \frac{j}{d} x \right), \quad (5)$$

となる。ここで、 p はタルボット次数と呼ばれる無次元数である。 p の偶奇により光強度分布の発生位置が変化する。まず、 p が偶数のとき、式(5)は

$$\begin{aligned} E \left(x, p \frac{nd^2}{\lambda} \right) &= \sum_j a_k \exp \left(i2\pi \frac{j}{d} x \right) \\ &= T(x), \end{aligned} \quad (6)$$

となり、光強度分布は、回折格子の透過率分布と等しくなる。この光強度は、 p が偶数となる観測面 z で繰り返し現れることから式(3)の複素振幅分布は z 軸方向にも周期を有する。このとき、光強度分布の z 軸方向の周期をタルボット距離 z_T と呼び、式(4)

Fig. 1 Fabricating method of three dimensional nano periodic structure.(a) Schematic diagram of Talbot effect and (b) three dimensionalization of structure using multiple exposure

のタルボット次数 p を偶数で考えることにより、

$$z_T = \frac{2nd^2}{\lambda}, \quad (7)$$

と求まる。次に、 p が奇数のとき、式(5)は

$$\begin{aligned} E \left(x, p \frac{nd^2}{\lambda} \right) &= \sum_j a_k \exp(-\pi j^2) \exp \left(i2\pi \frac{j}{d} x \right) \\ &= \sum_j a_k \exp(i\pi j) \exp \left(i2\pi \frac{j}{d} x \right) \\ &= \sum_j a_k \exp \left[i2\pi \frac{j}{d} \left(x + \frac{d}{2} \right) \right] \\ &= T \left(x + \frac{d}{2} \right), \end{aligned} \quad (8)$$

となり、式(2)で示される回折格子の透過率分布と比較して x 方向に半周期ずれた像が得られる。以上のように、回折格子によって発生した干渉パターンが周期的に繰り返される現象をタルボット効果と呼ぶ。

この光強度分布をリソグラフィの露光に応用する。タルボット距離は、式(7)で示したように格子ピッチ d および波長 λ に依存する。したがって、これらのパラメータを制御することで、タルボット効果の周期を変調させ、リソグラフィによって作製される構造を制御することが可能である。タルボット効果による3次元ナノ周期構造の作製法の概略図を図1(b)に示す。本研究で用いる感光性材料であるネガ型フォトリソは、光源からの露光量がしきい値を超えた領域のみ、硬化するという性質を有する。なお、硬化する際にフォトリソによって光が吸収されるが、式(7)から分かるように構造の周期には影響を与えない。ここで、フォトリソに n 回の露光を行うと仮定すると、 n 回

の露光が終了した後のフォトリソの任意の点における合計露光量 $H_{sum}(x, y, z)$ は,

$$H_{sum}(x, y, z) = \sum_{k=1}^n H_k(x, y, z), \quad (9)$$

となる。ここで、 $H_k(x, y, z)$ は k 回目の露光の任意の点における露光量である。式(9)より、それぞれの領域において、露光量の合計値のみが感光反応に影響するという強度加算の考え方を適用することができる。すなわち、単一の露光では実現不可能な構造を多重露光によって作製することも可能となる。最適な露光量を任意の割合で分割して、それぞれの露光量で異なる波面を用いた多重露光を行うことで、任意の構造作製が実現できる。

本研究では、タルボット効果による多重露光リソグラフィにおいて、回折格子の設置自由度に着目した 2 回露光を行った。ここでは、回折格子を面に垂直な軸を中心に回転させることを考える。まず、図 1(b)に示すように、製膜したフォトリソ上に 1 次元の周期を有する回折格子を設置する。次に、しきい値の露光量に対して半分の露光量を上方から照射する。その後、回折格子を面に垂直な軸に対して任意の角度 θ だけ回転させ、残り半分の露光を行う。最後に、現像を行うと 2 回の露光の合計露光量がレジストの加工しきい値を超えた領域のみが硬化する。この手法によって、2 次元の周期を有する回折格子を用いずとも、3 次元の構造を作製できる。作製される 3 次元構造は回折格子の回転角によって制御できる。また、2 回の露光において異なるピッチを有する回折格子を用いることによって、より複雑な 3 次元構造を作製することも可能である。すなわち、格子形状や格子の回転角などを変数として、単一露光のタルボット効果を用いたリソグラフィでは実現不可能な 3 次元構造を作製することができる。

3. 数値解析による周期構造の 3 次元化の検証

数値解析により、提案手法による構造の 3 次元化の検証を行った。ここでは、タルボット効果による光強度分布を解析するために、時間領域差分(Finite Difference Times Domain: FDTD)法¹⁴⁾を用いた。FDTD 法は、マクスウェル方程式を時間及び空間領域で差分化し、解析空間の電磁界を逐次的に求める手法である。周波数領域の解析手法である有限要素法¹⁵⁾などと比較すると、時間的に差分化していることから電磁場の過渡現象を解析できるという利点がある。

図 2 に、解析領域の 3 次元の光学モデルを示す。ここでは、解析領域を $10 \times 10 \times 10 \mu\text{m}$ の立方体として、ポリカーボネイト製格子マスク(屈折率 $n = 1.59$ 、格子高さ 150 nm)、フォトリソ SU-8¹⁶⁾ ($N = 1.67 - 0.001i$) および格子の上方と隙間に存在する空気($n = 1.00$)を設定した。SU-8 は、露光時の屈折率変化が少ないため、屈折率の時間的変化は導入しなかった¹⁷⁾。また、SU-8 が高い吸収効率を有する波長 360 nm の光が、格子マスク上方から垂直に照射されるように設定した。入射光の偏光は、回折効率を高めるため、電場の振動方向が回折格子の溝方向と垂直となる TM 偏光を設定した¹⁸⁾。メッシュサイズは 10 nm 、解析領域の境界条件は完全吸収境界(Perfectly Matched Layer: PML)を設定した。さらに、格子ピッチ d を格子形状の変数として、フォトリソ内部の光強度分布の周期が制御できることを確認した。

本解析では、 x, y, z の 3 方向の周期を任意に制御するための基本となる解析として、周期を回折格子の面に垂直な軸を中心と

Fig. 2 Three-dimensional optical model for analysis of multiple exposure

した 90° 回転と 2 回露光を併用した際の光強度分布を求めた。

ここでは、回折格子の溝方向が y 軸方向に一致している際の xz 平面における光強度分布と、 90° 回転させて回折格子の溝方向が x 軸方向に一致している際の xz 平面における光強度分布を合成することにより、多重露光を表現した。 xz 平面の光強度分布については、 $y = 5 \mu\text{m}$ から 50 nm ごとに取得した。

図 3 に、格子ピッチ d が 600 nm の時の xz 平面の光強度分布の解析結果を示す。 x 軸方向に、格子のピッチである 600 nm の周期を有する光強度分布が発生していることが分かる。また、 $y = 5.10 \mu\text{m}$ と $y = 5.70 \mu\text{m}$ において同様の光強度分布が得られていることから、 y 軸方向にも 600 nm の周期を有する光強度分布が発生していることが分かる。また、 z 軸方向には式(7)で表されるタルボット距離分の周期が得られていることが分かる。

図 4 に、格子ピッチ d を変化させた際の、周期の解析値と理論値を x, y, z 軸それぞれの方向において比較した結果を示す。格子ピッチ d は 400 nm から 1000 nm まで 100 nm ずつ変化させた。理論値は式(7)および $x_T, y_T = d$ から求められる。図 4 より、 x, y, z 軸のいずれの方向においても、格子ピッチ d が増加するにつれて理論値と解析値が増加していることが分かる。また、解析値と理論値がよい一致を示している。タルボット効果による光強度分布において、 x 軸および y 軸方向の周期は回折格子のピッチ d によって制御でき、 z 軸方向の周期は回折格子のピッチ d および波長 λ によって制御できる。以上より、回折格子を 90° 回転させて多重露光を行うことで、 x 軸方向および y 軸方向には格子のピッチ d と同様の周期を有し、 z 軸方向にはタルボット距離 z_T の周期を有する 3 次元構造が作製可能であることが示された。さらに、この手法を応用して、2 回の露光において異なるピッチの回折格子を使用すると、これら 3 方向の周期はそれぞれ独立な値として制御でき、より高い自由度を有した加工を行うことが可能となると推測される。

4. 3 次元ナノ周期構造の作製プロセス

タルボット効果によるナノ周期構造の作製プロセスを図 5 に示す。タルボット効果によるリソグラフィでは、6 つの加工プロセスによって構造を作製する。まず、図 5(a)に示すように、ネガ型フォトリソをカバーガラス上に均一にスピンコートする。ここで、カバーガラスとフォトリソの接着力が弱く、現像時に剥離が生じることを防ぐ必要がある。そこで、カバーガラスとフォトリソの間にバッファ層を設けた。バッファ層には事前に硬化させたフォトリソの層を用いた。次に、図 5(b)に示すように、ホットプレートを用いてサンプルのプリバークを行

Fig. 3 Three-dimensional light intensity distribution by Talbot effect and multiple exposure

Fig. 4 Numerical result of the cycle of the light intensity distribution under the condition of changing the grating pitch. (a) x axis direction, (b) y axis direction and (c) z axis direction

う。この過程では、フォトレジストの溶媒を揮発させ、カバーガラスとの密着性を向上させる。続いて、図 5(c)に示すように、タルボット効果を生じさせるための格子マスクをフォトレジストの上に被せ、UV 光によって露光を行う。入射光の偏光は、解析と同様に TM 偏光とした。このとき、格子によって UV 光は回折され、タルボット効果による周期的な光強度分布が生じる。この光強度分布により、露光量が加工しきい値を超えた領域のフォトレジストが感光反応を起こし、パターンが転写される。また、多重露光時には回折格子を 90° 回転させ、その前後で 2 回の露光を行う。さらに、図 5(d)に示すようにポストベークを行い、感光反応を完結させる。その後、図 5(e)に示すように、現像液に浸漬することで未感光領域のフォトレジストを融解

Fig. 5 Procedure for fabricating a structure using Talbot lithography. (a) Spincoat, (b) pre-baking, (c) exposure, (d) post exposure bake, (e) development and (f) rinsing

させる。最後に、図 5(f)に示すように、リンス液を用いて現像液を洗浄することで、露光量が加工しきい値を超えた領域のみフォトレジストが残存し、ナノ周期構造が作製される。

本研究では、構造作製のための材料として、MicroChem 社製のネガ型フォトレジストである SU-8 3010 を用いた。現像液には同社の SU-8 専用の現像液である SU-8 developer を、リンス液には 2-プロパノールを用いた。また、ガラス基板としては 18 mm 角のカバーガラスを用いた。露光の工程において光源には、CNI laser 社製の波長 360 nm の半導体励起全固体レーザー UV-FN-360 を使用した。レーザー射出後に、6 倍の倍率を有するビームエキスパンダによってビーム径を 9 mm に拡大した後、回折格子が被せられたフォトレジストに照射した。回折格子としてはポリカーボネイト製で格子ピッチ 750 nm、格子高さ 150 nm のものを用いた。なお、本露光装置での露光量の設定は露光時間によって制御した。具体的には、露光を行う直前のビームパワーを測定し、所望の露光量をビームパワーで除算することにより露光時間を算出した。

5. 周期構造の作製結果

5.1 単一露光による 2 次元ナノ周期構造の作製

単一露光により 2 次元のナノ周期構造を作製することで、タルボット効果による周期的な光強度分布がレジストに転写されることを確認した。その後、FDTD 法により求めた光強度プロファイルと加工結果における構造の線幅を比較することにより、フォトレジスト SU-8 の加工しきい値を求めた。リソグラフィプロセスの各パラメータの値を表 1 に示す。タルボット効果による鉛直方向の周期が確認できるよう、スピコートによりフォトレジストの膜厚を $9\mu\text{m}$ 程度に設定した。また、高アスペクト比の構造を作製するために、プリベークの時間はカタログ推奨値より長めに設定した。露光量とポストベークの温度および時間は、構造が均一に硬化してしまうことや残留応力の影響を防ぐため、フォトレジストが安定的に硬化する下限の値を使用した。また、作製サンプルは構造の断面を観察するために、回折格子の溝方向と並行および垂直の 90° 異なる断面で 2 回切断してから現像を行った。

単一露光により作製された 2 次元ナノ周期構造を図 6 に示す。図 6(a)に示すように、ミリメートルオーダの範囲内に構造が作製されていることが確認できた。また、図 6(b)に示すように、構造の表面を走査型電子顕微鏡で観察すると、回折格子の周期構造が転写された構造がミリメートルオーダの広範囲に作製され

Table 1 Conditions of lithography process for fabricating a two-dimensional periodic structure

	parameter	value
spincoat	rotational speed	5000 rpm
	thickness	9 μm
prebake	temperature	95 $^{\circ}\text{C}$
	time	10 min
exposure	exposure dose	50 mJ/cm^2
postbake	temperature	40 $^{\circ}\text{C}$
	time	30 min
development	time	3 min
rinse	time	5 min

(a)

(b)

(c)

(d)

Fig. 6 Fabrication of two dimensional nano periodic structure by single exposure. (a) Appearance, (b) surface structure, (c) cross section from A and (d) cross section from B

ていることが確認できた。図 6(c)に示すように、作製構造を回折格子の溝方向と垂直に切断した断面を観察すると、タルボット効果による周期的な光強度分布が転写された構造が作製されていることが確認できた。また、図 6(d)に示すように回折格子の溝方向と平行に切断した断面から構造を観察すると、(c)で示した穴が水平方向に進展している構造が確認できた。図 6(b)および(c)において、3 段の階層を有する多孔質構造が作製されており、タルボット効果の周期性が明瞭に転写されていることが分かる。水平方向の周期は 760 nm であり、これは回折格子の格子ピッチ

(a)

(b)

(c)

(d)

Fig. 7 Calculation of machining threshold. (a) Relationship between distance from center and structure, (b) relationship between exposure dose and width of structure, (c) analysis result by FDTD method and (d) light intensity profile in x axis direction

である 750 nm とほぼ一致した。鉛直方向の周期であるタルボット距離は式(7)で求められる理論値が 5.18 μm であるのに対し、実験値は 3.57 μm とわずかなずれが見られた。この差は、リンス液が乾燥する際の表面張力により、構造が収縮することが原因であると考えられる。以上より、単一露光においては、タルボット効果の光強度分布が転写された 2 次元の周期構造が作製されていることが分かった。

次に、フォトリソの加工しきい値を算出した。ここでは、構造の硬化領域を構造の穴と穴の間の幅 t で評価した。露光に使用したレーザーはガウシアンビームであることから、レーザーの中心から点対称に加工されることが予想される。そこで、レーザーの中心を原点とし、0–3 mm の範囲内で、0.5 mm ごとに構造の断面を観察した結果を図 7(a)に示す。構造の硬化領域はビーム中心から離れるにつれて小さくなり、しだいに構造が壊れていることがわかる。また、図 7(b)に露光量と幅 t の関係を示す。露光量の増加に伴い、構造の幅 t が増加していることがわかる。したがって、露光量によって構造の硬化領域を制御することが可能である。ここで、構造の幅 t を FDTD 法による解析結果の光強度プロファイルと比較することによって、フォトリソ SU-8 の加工しきい値を求める。図 7(c)に 2 次元 FDTD 解析において、格子ピッチ $d = 750 \text{ nm}$ とした場合の解析結果を示す。次に、この解析結果から x 軸方向の光強度プロフ

Fig. 8 The surface of the fabricated structure by multiple exposure with an exposure dose of $50 \text{ [mJ/cm}^2\text{]} \times 2$

ファイルを取得し、図 7(b)の結果を利用することで加工しきい値を算出する。ここでは、例として図 7(b)において露光量が 50 mJ/cm^2 のときに、幅 t が 303 nm であることより加工しきい値を算出する。図 7(c)において、線分 AA'で示した x 軸方向光強度プロファイルを図 7(d)に示す。プロファイルを取得したフォトレジストの位置 $z = 6.38 \text{ μm}$ の位置において、フレネル反射およびレジストの吸収を考慮した露光量は 33.3 mJ/cm^2 となる。フレネル反射は、空気 - 格子間を 2 回と空気 - レジスト間を 1 回考慮している。図 7(d)において、縦軸はプロファイルの平均値が 33.3 mJ/cm^2 となるように変換している。図 7(d)で、幅 t が 303 nm となる場合の縦軸の値から加工しきい値を算出すると 23.3 mJ/cm^2 となった。レジスト入射前の露光量が、 35 mJ/cm^2 から 80 mJ/cm^2 までの場合においても、同様の手順で加工しきい値を求めて平均をとると、フォトレジスト SU-8 の加工しきい値は $22.0 \pm 6.4 \text{ mJ/cm}^2$ となった。

5.2 多重露光による 3 次元ナノ周期構造の作製

多重露光により 3 次元のナノ周期構造を作製できることを確認した。露光時間以外のリソグラフィプロセスの各パラメータは、表 1 と同様の値を用いた。まず、回折格子を 90° 回転させて 5.1 節で最適化を行った露光量である 50 mJ/cm^2 で 2 回露光を行った。このとき作製された構造の表面観察結果を図 8 に示す。 50 mJ/cm^2 で 2 回露光を行ったときは、フォトレジストが一様に固まってしまい、内部に周期的な構造は作製されなかった。そこで、先ほど最適化された露光量である 50 mJ/cm^2 を 2 分割して 25 mJ/cm^2 の 2 回露光を行った。作製された 3 次元ナノ周期構造を図 9 に示す。図 9(a)に示すように、ミリメートルオーダーの範囲内に構造が作製されていることが確認できる。また、図 9(b)に示すように構造の表面を走査型電子顕微鏡で観察すると、網目状の構造および直径 360 nm の穴が広範囲に分布していることが確認された。次に、図 9(c)に示すように、作製構造を 1 回目の露光における回折格子の溝方向と垂直に切断した断面から観察すると、鉛直および水平 2 方向に周期を有する構造が作製されていることが確認できた。また、図 9(d)に示すように、2 回目の露光における回折格子の溝方向と垂直に裁断した断面から構造を観察すると、(c)と同様に鉛直および水平の 2 方向に周期を有する構造が確認できた。2 方向からの断面観察結果より、多重露光においてタルボット効果の光強度分布が 2 回転写された 3 次元の周期構造が作製されていることが確認できた。今回、多重露光時において断面に明瞭な穴構造が作製されなかった原因としては、レジスト内部に現像液が入り込むことができなかったことや、2 回の露光における回折格子の位置合わせの問題が考えられる。以上のことから、今後は回折格子の正確な位置合わせおよび露光量等の更なる最適化が必要だと考えられる。

(a)

(b)

(c)

(d)

Fig. 9 Fabrication of three dimensional nano periodic structure by multiple exposure. (a) Appearance, (b) surface structure, (c) cross section from A and (d) cross section from B

6. 結 言

本研究では、タルボット効果を用いたリソグラフィにおいて多重露光を併用することで、ナノ周期構造を 3 次元化し、構造作製の自由度を向上させる手法を提案した。まず、数値解析を行うことで提案手法により 3 次元に周期を有する構造が作製されることを確認した。その後、単一露光によりタルボット効果の光強度分布が転写された 2 次元ナノ周期構造が作製されることを確認した。最後に、多重露光を用いることにより 3 次元ナノ周期構造が作製され、タルボット効果によるリソグラフィの加工自由度の向上が期待できることが示された。また、構造はミリメートルオーダーの範囲に作製され、波長オーダーの周期を有することが確認された。したがって、バイオメテックス構造などの作製手法として利用可能であると考えられる。今後は、露光量など各種条件の更なる最適化を行うことで明瞭な 3 次元構造の作製を行う予定である。

参 考 文 献

- 1) T. Xu, *et al.* : Three-dimensional nonlinear photonic crystal in ferroelectric barium calcium titanate, *Nature Photonics*, **12**, (2018) 591.
- 2) M. Vasileiou, *et al.* : Biomimetic microstructures for photonic and fluidic synergies, *Optofluidics, Microfluidics and Nanofluidics*, **4**, 1, (2017) 1.
- 3) Khanh T. M. Tran, *et al.* : Lithography-based methods to manufacture biomaterials at small scales, *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*, **2**, 1, (2017) 1.
- 4) Traub, Matthew C., *et al.* : Advances in Nanoimprint Lithography, *Annual Review of Chemical and Biomolecular Engineering*, **7**, (2016) 583.
- 5) N. Ahmed, *et al.* : Laser Ablation and Laser-Hybrid Ablation Processes: A Review, *Materials and Manufacturing Processes*, **31**, 9, (2016) 1121.
- 6) Yoshiaki Sugimoto, *et al.* : Mechanical gate control for atom-by-atom cluster assembly with scanning probe microscopy, *Nature Communications* **5**, (2014) 4360.
- 7) Lei QL., *et al.* : Self-Assembled Chiral Photonic Crystals from a Colloidal Helix Racemate, *ACS Nano*, **12**, 7, (2018) 6860.
- 8) S. Jeon, *et al.* : Fabricating complex three-dimensional nanostructures with high-resolution conformable phase masks, *PNAS*, **101**, 34, (2004) 12428.
- 9) H. F. Talbot: Facts relating to optical science, *Phil. Mag.* No.IV, 9, (1836) 401.
- 10) C. H. Chang, *et al.* : From Two-Dimensional Colloidal Self-Assembly to Three-Dimension Nanolithography, *Nano letters*, **11**, 6, (2011) 2533.
- 11) Aline Emplit, *et al.*: Colloidal pattern replication through contact photolithography operated in a 'Talbot-Fabry-Perot' regime, *Nanotechnology*, **25**, 14, (2014).
- 12) J. M. Cowley: Diffraction Physics, (1995).
- 13) 大津元一: 光学入門(先端光技術シリーズ), 朝倉書店, (2008) 154.
- 14) 宇野亨: 数値電磁界解析のための FDTD 法 -基礎と実践-, コロナ社 (2016).
- 15) 大地羊三: 有限要素法とその応用, 森北出版 (1975).
- 16) A del Campo, *et al.* : SU-8: a photoresist for high-aspect-ratio and 3D submicron lithography, *J. Micromech. Microeng.*, **17**, 6, (2007) 81.
- 17) Avila, L.F., *et al.* : Self diffraction holographic techniques for investigation of photosensitive materials. *Proc. SPIE*, (2013) 8776.
- 18) J. Zheng, *et al.* : Phase interpretation for polarization-dependent near-field images of high-density gratings, *Optics Comm.*, **281**, 12, (2008) 3254.