

基于边缘光抑制技术的双光束激光直写纳米光刻系统

周国尊^{1†}, 何敏菲^{1†}, 杨臻垚², 曹春², 谢飞³, 曹耀宇³, 匡翠方^{1,2*}, 刘旭^{1,2**}

¹浙江大学光电科学与工程学院现代光学仪器国家重点实验室, 浙江 杭州 310027;

²之江实验室超级感知研究中心, 浙江 杭州 310023;

³暨南大学光子技术研究院广东省光纤传感与通信技术重点实验室, 广东 广州 510000

摘要 利用边缘光抑制技术,设计并研制了一套双光束激光三维直写光刻系统。该系统含有高速扫描振镜和三维纳米压电平台两轴扫描机构,可以根据不同加工需求完成多种扫描模式下的微纳结构制造。分析了光刻光束中激发光与抑制光的能量变化对加工精度的影响,通过对光刻光束能量的精确控制,实现了基板表面最小线宽为 64 nm 的均匀线条和线宽为 30 nm 的悬浮线的稳定加工,加工结构的线宽变化符合理论预期。该系统在进行实用器件加工时,最高加工产率可达到 0.6 mm²/min。使用该系统加工制造了多种微纳结构,证实了其具备加工大深宽比周期结构、复杂曲线结构和不规则三维结构的能力。

关键词 激光技术; 光学制造; 受激发射损耗; 激光直写; 微纳光学器件

中图分类号 O439

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202249.0202001

1 引言

基于边缘光抑制(peripheral photoinhibition, PPI)的激光直写技术是一种利用非线性光学效应提高加工精密度的三维直写光刻技术。相比双光子直写,PPI技术可以实现更高的分辨率,能进行超越光学衍射极限的亚百纳米三维加工^[1]。该技术还具有热效应小、阈值损伤低、工艺流程简单等优点。使用PPI技术加工制造的微纳功能结构已经被应用在诸多现代科研领域中,例如光学超表面加工^[2]、光子带隙器件制造^[3]、光存储技术应用^[4]、生物工程^[5]等。

PPI双光束激光直写光刻系统的构型概念来源于受激发射损耗(stimulated emission depletion, STED)荧光显微成像系统^[6-7]。STED荧光显微成像技术最早由Hell等^[8]发明。在STED荧光显微成像系统中有两束扫描光——激发光与损耗光。其中,损耗光聚焦后形成空心暗斑,激发光斑边缘位置

的受激发射分子发生损耗,从而实现超分辨荧光成像。基于类似原理,PPI激光直写光刻系统中也有两束激光:激发光与抑制光。其中,激发光使光刻胶发生聚合反应,产生具有一定机械强度的三维结构,抑制光使光刻胶发生去聚合反应,减小结构线宽,提升加工精度^[9]。可以实现聚合-去聚合机理的光刻胶有多种类型^[9-14]。2013年,基于PPI技术,Gan等^[1]使用光抑制剂去聚合方法制成的光刻胶,在加工中获得了最小9 nm的线宽。但是,利用光抑制剂去聚合方法制成的光刻胶被抑制光照射后,光致抑制剂会被消耗掉,难以进行二次加工与拼接对准。此外,抑制光斑的线度远大于百纳米,所以消耗光抑制剂的区域也会大于百纳米,这不利于高分辨率加工。另一方面,PPI激光直写光刻系统的设计、研发方面还存在着一些局限性。目前PPI激光直写光刻系统一般选用纳米压电平台作为单一的扫描机构^[15],这是因为纳米压电平台具有光路系统设计简单、稳定性高、可直接进行三维扫描等优点。但纳米

收稿日期: 2021-04-01; 修回日期: 2021-06-22; 录用日期: 2021-08-16

基金项目: 浙江省自然科学基金重大项目(LD21F050002)、之江实验室重大科研项目(2020MC0AE01)

通信作者: *cfkuang@zju.edu.cn; **liuxu@zju.edu.cn

† 共同第一作者

压电平台扫描速度较慢,且压电平台的惯性较大,会导致刻写过程中加速和减速所需要的时间较长,加工效率低,很难完成大尺寸器件的三维加工。扫描振镜的速度较高,扫描惯性较小,但只能进行二维扫描。

本文针对以上问题,设计了一套含有高速扫描振镜与三维纳米压电平台两种扫描机构的 PPI 双光束激光直写光刻系统。通过完善光刻工艺,使用基于 STED 去聚合机理的传统光刻胶,实现了附着于基板表面的线宽为 64 nm 的均匀线条加工和线宽为 30 nm 的悬浮线的稳定加工。同时,该系统具有多种工作模式,包括压电平台加工模式、振镜扫描加工模式以及双机构复合加工模式,这些模式分别适用于不同的加工需求。在使用扫描振镜加工时,实现了最高 50 mm/s 的加工速度。

2 PPI 技术的基本原理

在 PPI 技术中,激光引发的光刻胶中的光化学反应主要可分为聚合与去聚合两部分。聚合过程由激发光引发。光刻胶中的引发剂分子吸收激发光的

光子产生自由基,自由基与单体反应生成固体聚合物,形成光刻结构。根据吸收光子数量的不同,引发剂分子激发又可以分为单光子激发和双光子激发。其中,双光子激发过程受高阈值的限制,只发生在激发光聚焦焦点附近的较小区域内,有利于减小加工线宽。因此,在现代 PPI 直写系统中,普遍使用可引发双光子吸收的激光作为激发光。本文中研制的 PPI 激光直写光刻系统同样使用了可引发双光子吸收的 780 nm 波长的飞秒激光作为激发光。

在双光子激发产生自由基的过程中,产生的自由基的浓度随曝光时间 t 的变化^[16-17]可表示为

$$\frac{d\rho}{dt} = (\rho_0 - \rho)\eta\sigma_2 I_{\text{exc}0}^2 S_{\text{exc}}^2(r', \varphi', z'), \quad (1)$$

式中: ρ 为自由基的浓度; ρ_0 为光刻胶中引发剂的浓度; η 为产生自由基的量子效率; σ_2 为双光子吸收截面; $I_{\text{exc}0}$ 为几何焦点处的激发光光子通量,与光强成正比; $S_{\text{exc}}(r', \varphi', z')$ 为描述激发光能量分布的无单位函数,其中 r', φ', z' 分别表示柱坐标系下的三个空间自由度。通过对(1)式求解微分方程,可以得到自由基浓度的空间分布为

$$\rho(r', \varphi', z') = \rho_0 \{1 - \exp[-\eta\sigma_2 I_{\text{exc}0}^2 S_{\text{exc}}^2(r', \varphi', z')t]\}. \quad (2)$$

函数 $S_{\text{exc}}(r', \varphi', z')$ 是基于布鲁斯坦方法(Bluestein method)计算得到的^[18],如图 1(a)所示。在不考虑像差的情况下,横向焦平面($z'=0$)上的强度分布可以简单地近似为高斯函数[图 1(c)],即

$$S_{\text{exc}}(r', \varphi', 0) = \exp[-2r'^2/(\alpha_1\omega_0)^2], \quad (3)$$

式中: α_1 为系统点扩展函数确定的常数; ω_0 为艾里斑的半径,可以表示为 $\omega_0 = 0.61\lambda_{\text{exc}}/NA$,其中 λ_{exc} 为激发光波长, NA 为数值孔径。

通过计算可知,自由基浓度的最大值在函数 S_{exc} 的零点处取得,即激发光聚焦的几何焦点处,在外围区域,自由基浓度随激发光强度的降低而减小。在只有激发光引发双光子激发的情况下,假设可引发光刻胶中单体聚合的自由基最小浓度为 ρ_{edge} (该浓度亦为光刻产生的聚合线边缘处的自由基浓度),则光刻结构的横向线宽 L_{TPP} 可表示为

$$L_{\text{TPP}}(I_{\text{exc}0}, t) = 2r_0 = k_{\text{TPP}} \cdot \frac{\lambda_{\text{exc}}}{NA}, \quad (4)$$

式中: r_0 为自由基中心密度下降到 ρ_{edge} 的宽度; k_{TPP} 为双光子直写光刻的工艺参数,可表示为

$$k_{\text{TPP}} = 0.61\alpha_1 \sqrt{\ln(CI_{\text{exc}0}^2 t)}, \quad (5)$$

式中: C 为与光刻胶特性有关的常数,有

$$C = \eta\sigma_2 / \ln[\rho_0/(\rho_0 - \rho_{\text{edge}})]. \quad (6)$$

由此,通过(4)式可模拟得到双光子激光直写条件下结构线宽随激发光功率变化的曲线,如图 1(e)所示。

去聚合过程由抑制光引发。在光刻胶受到抑制光照射的位置,吸收激发光光子的引发剂分子被抑制光损耗,自由基产率下降,光刻胶无法发生聚合。抑制光为具有 $0 \sim 2\pi$ 涡旋相位延迟的高斯光束,聚焦后在几何焦点位置处形成空心暗斑,使去聚合反应发生在激发光聚焦光斑的边缘位置处,线宽减小。抑制光对自由基浓度的影响可以通过增加衰变因子来表示。设衰变因子为 κ ,修正后的自由基浓度变化率与自由基浓度分别为

$$\frac{d\rho}{dt} = (\rho_0 - \rho)\eta\sigma_2 I_{\text{exc}0}^2 S_{\text{exc}}^2(r', \varphi', z') \cdot \kappa(r', \varphi', z'), \quad (7)$$

$$\rho = \rho_0 \{1 - \exp[-\eta\sigma_2 I_{\text{exc}0}^2 S_{\text{exc}}^2(r', \varphi', z') \cdot \kappa(r', \varphi', z')t]\}, \quad (8)$$

式中： $\kappa^{[19]}$ 可表示为

$$\kappa(r', \varphi', z') = \exp[-\gamma I_{\text{inh}0} S_{\text{inh}}(r', \varphi', z')], \quad (9)$$

式中： γ 为常数； $I_{\text{inh}0}$ 为焦平面上抑制光光子通量的最大值； $S_{\text{inh}}(r', \varphi', z')$ 是描述抑制光强度空间分布的无单位函数，如图 1(b)所示。

在焦平面上，暗斑中心的抑制光强度的空间分布可近似为旋转抛物面函数，即

$$S_{\text{inh}}(r', \varphi', 0) = \alpha_2 (2r')^2, \quad (10)$$

式中：常数 α_2 为旋转抛物面系数，取决于空心暗斑的大小。综上，在激发光与抑制光共同存在的条件下，横向加工线宽 L_{PPIL} 可修正为

$$L_{\text{PPIL}}(I_{\text{exc}0}, I_{\text{inh}0}, t) = \frac{k_{\text{TPP}}}{\sqrt{1 + \gamma' I_{\text{inh}0}}} \cdot \frac{\lambda_{\text{exc}}}{\text{NA}}, \quad (11)$$

式中： γ' 的表达式为

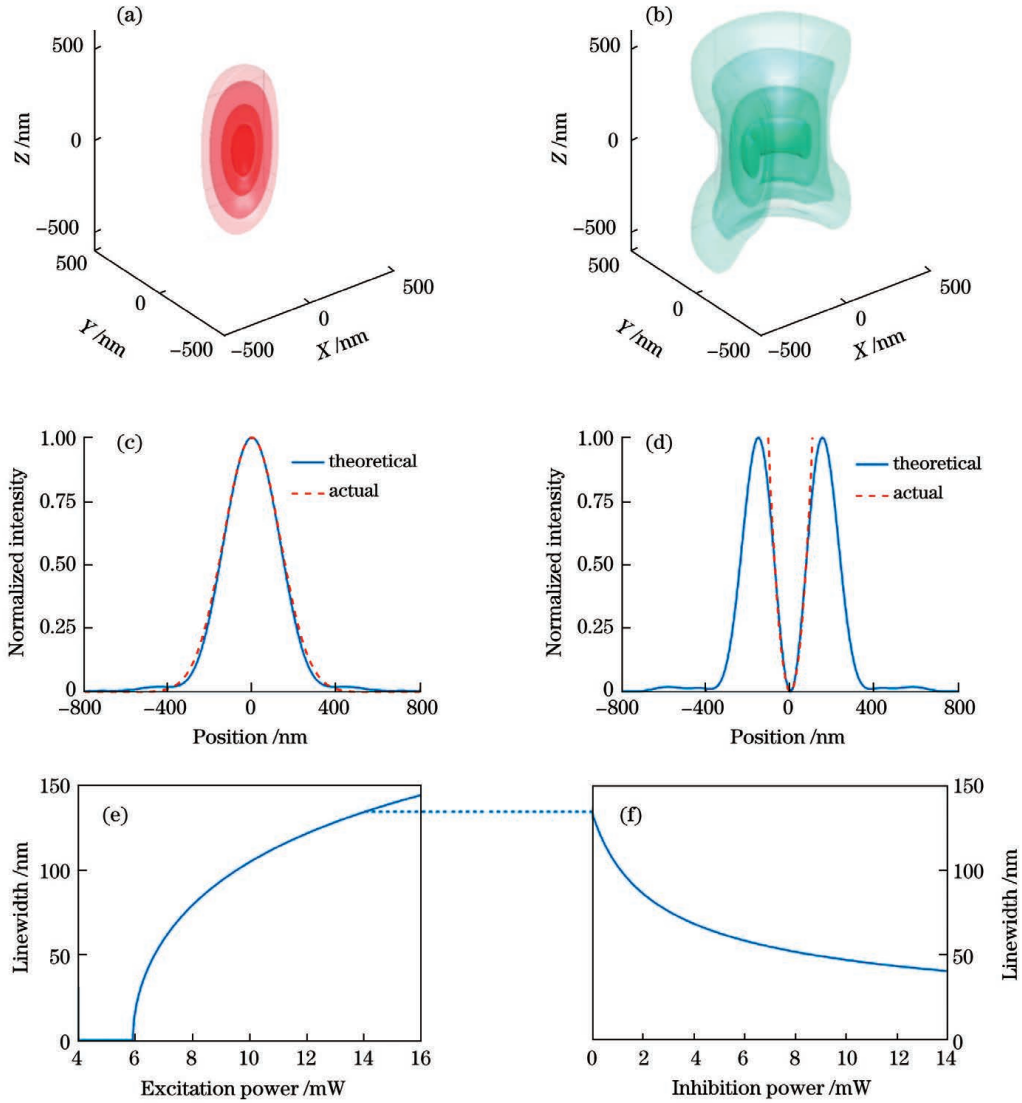


图 1 线宽模型的理论分析。(a)双光子激发光斑的分布；(b)空心抑制光斑的分布；(c)焦平面处的激发光能量分布及其高斯拟合函数；(d)焦平面处空心暗斑的横向轮廓及其抛物线拟合函数；(e)横向线宽随激发光功率的模拟变化曲线；(f)在固定的激发功率下，横向线宽随抑制光功率的模拟变化曲线

Fig. 1 Theoretical analysis based on linewidth model. (a) Distribution of two-photon excited spot; (b) distribution of doughnut inhibition spot; (c) distribution of excitation light energy at focal plane and its Gaussian fitting function; (d) lateral profile of doughnut dark spot at focal plane and its parabolic fitting function; (e) simulated curve of lateral linewidth versus excitation power; (f) simulated curve of lateral linewidth versus inhibition power at fixed excitation power

$$\gamma' = \alpha_2 \alpha_1^2 \omega_0^2 \gamma. \quad (12)$$

因此,通过(11)式,固定激发光光强,模拟得到 PPI 直写光刻中结构线宽随抑制光功率变化的曲线 [图 1(f)].

3 PPI 激光直写光刻系统的关键技术与系统设计

3.1 系统硬件设计

基于 PPI 技术的基本原理,实验中选用了 7-二

乙氨基-3-噻吩甲酰基香豆素 (DETC) 为引发剂的光刻胶。作为 PPI 直写光刻中使用的一种典型光刻胶引发剂^[9],该引发剂可以通过 STED 效应,引发光刻胶的去聚合反应,满足高精度直写的加工要求。针对该引发剂的光化学特性,选用了波长为 780 nm 的飞秒激光和波长为 532 nm 的连续激光分别作为系统的激发光与抑制光,完成了系统的整体设计。PPI 激光直写光刻系统的整体构架如图 2(a)所示,其中 CMOS 表示互补金属氧化物半导体。

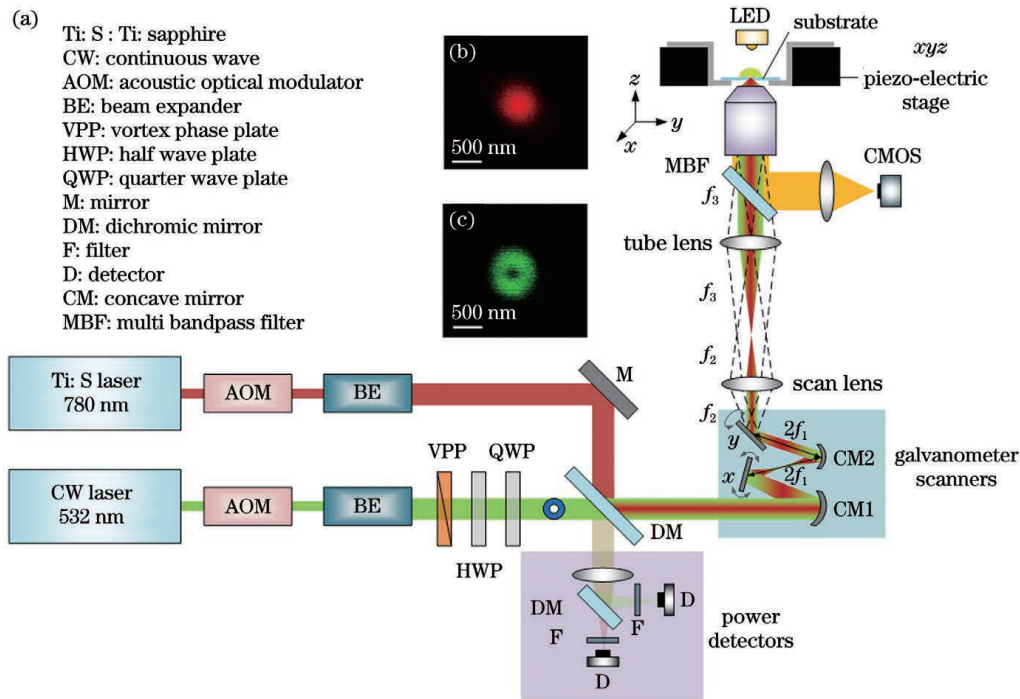


图 2 PPI 激光直写光刻系统的原理图。(a)光路图;(b)激发光和(c)抑制光点扩展函数在焦平面上的测量结果

Fig. 2 Schematic of PPI laser direct writing lithography system. (a) Optical path; measurement results of (b) excitation light and (c) inhibition light point spread functions at focal plane

该系统使用锁模钛蓝宝石飞秒激光器 (Ti: Sapphire) 作为激发光源。该激光器可以产生波长为 780 nm、脉宽为 140 fs、重复频率为 80 MHz 的激发光,满足双光子激发的要求。抑制光源采用半导体激光器。该激光器可产生波长为 532 nm 的连续激光。相比于脉冲激光,使用连续激光作为抑制光可以不用考虑脉冲同步问题,简化了系统设计。声光调制器 (acoustic optical modulator, AOM) 用于控制光路的通断并调制激光功率。通过控制 AOM 的输入电压,改变衍射效率,实现光功率调制。光束经过扩束装置后充满物镜。涡旋相位板为抑制光附加了 $0 \sim 2\pi$ 涡旋相位,使抑制光聚焦后形成空心暗斑 [如图 2(c)]。半波片和四分之一波片将抑制光调制成圆偏光。调制后的激发光与抑制光

合束于二向色镜,形成光刻光束。

对于激光直写光刻,功率是关键加工参数之一,因此对激发光和抑制光的光功率进行监测是十分重要的。利用二向色镜不能完全截止的特性,用另一片二向色镜配合滤光片将合束后未进入振镜的光刻光束进行分离,再分别使用两个光电探测器进行功率探测,可以得到与入瞳位置光束功率成正比的探测数值。将此处探测的功率值与物镜入瞳处探测的功率值进行比例换算,可实现对激光功率 (入瞳位置) 的实时监测。

合束后的光刻光束进入后续的扫描机构。为了提升系统的加工能力,在系统中设置了两组扫描机构——4f 扫描振镜 (galvanometer scanners, GS) 与三维纳米压电平台。扫描振镜的加工速度快,可达

到最高 50 mm/s 的加工速度,适合高速二维加工。压电平台的移动精度高,可以实现小于 5 nm 的高精度三维定位,适合高精度三维加工。对扫描振镜与压电平台进行联合控制,可以实现高速三维加工。

光刻光束首先进入 4f 扫描振镜模块,该振镜模块主要由两面曲面镜(CM1 和 CM2)以及两面扫描镜(x 振镜和 y 振镜)组成。 x 振镜和 y 振镜分别负责 x 方向与 y 方向的扫描。如图 2(a)所示, x 振镜位于 CM2 的前二倍焦距处, y 振镜位于 CM2 的后二倍焦距处, x 振镜与 y 振镜互为共轭成像关系。这种结构的优点是 x 振镜扫描的不动点也通过曲面镜成像在了 y 振镜上,并在 y 振镜扫描过程中不发生移动,确保了振镜扫描角度与最终扫描位置的线性关系。之后 4f 系统的扫描透镜(焦距为 f_2)和管镜(焦距为 f_3)将 y 振镜成像到物镜入瞳处,因此光束在入瞳处是围绕一个固定点进行一定角度的扫描,光束在入瞳处不会被切割。但振镜扫描只能在二维平面进行扫描,结合压电三维平台就可以实现 z 轴的扫描。压电平台与放置光刻胶的样品架相连,压电平台带动样品移动实现三维扫描。

光刻光束被 100 倍复消色差物镜聚焦于光刻胶。物镜为油浸物镜,数值孔径为 1.45,大数值孔径同样有利于提升光刻分辨率。由于光刻胶与物镜油折射率相近,光刻方式可采用光胶浸没式或有透明基板间隔的油浸式。系统具备对光刻过程实时成像的能力。为了保证照明光源不影响光刻胶,采用波长为 600 nm 左右的发光二极管(light emitting diode, LED)进行照明,并使用 CMOS 图像传感器进行图像采集。相比没有刻写结构的区域,黄光在样品聚合区域的透过率通常较小,样品刻写面与 CMOS 探测面共轭,因此通过 CMOS 相机可以观察到刻写结构。这样的成像系统设计便于光刻直写曝光之后直接成像观察刻写结构,而不需要经过显影,实现在位实时成像,可监控光刻的进度和结构情况。

3.2 系统控制方案设计

为了实现任意三维图形的直写光刻,将目标三维图形转换为控制光刻光束的扫描轨迹、能量大小及通断与否的指令,并以此指令控制硬件进行相应动作。其中,对光刻光束扫描轨迹的控制是通过对扫描振镜和压电平台进行软件控制来实现的,对光刻光束的能量大小及通断与否的控制是通过对 AOM 进行软件控制来实现的。为了满足不同加工需求并实现对上述三者的联合同步控制,在本文研

制的光刻系统中,使用了一种三层数据转化方案,以实现任意图形的三维激光直写光刻。

第一层数据转化是将三维图形数据转化为描述加工机构运动的一系列基本指令。这一过程由三维图形切割算法实现。算法的基本流程是:1)读取描述三维图形的数据文件;2)以固定高度层切三维图形,按从下到上的顺序依次获得每一层的二维剖面图形;3)识别首层二维剖面图形的边缘,生成边缘扫描指令;4)生成逐行扫描的填充指令,填充该层图形;5)对下一层重复步骤 3)与步骤 4)直至完成所有切割层的指令转化。该切割算法产生的指令集,参考了 G-code 命令指令集,并根据系统的硬件特点进行了改进与简化,如增加了描述加工机构的指令段和描述光刻光束功率数值的指令段,删减了部分指令等,使系统指令集更符合光刻要求。

第二层数据转化是将基本指令转化为描述点对点运动的数据矩阵。任何曲线,如圆弧、椭圆、抛物线等,甚至不规则曲线都可以通过插值的方法得到一系列插值点,再通过将插值点连接成连续的折线来近似。因此,任何运动指令都可以转化为连续的点对点直线运动。为了使系统能精确完成这类点对点直线运动,一种数据矩阵形式的指令格式被设计应用于直写光刻系统(图 3)。指令数据的每一行代表扫描路径中的每一点。一行中的前三个数据(D0~D2)表示加工空间中该点的三维坐标。D3 和 D4 分别表示在光刻光束焦点移动到该点的过程中两个 AOM 控制的激发光功率与抑制光功率。D5 代表移动过程中光路的通断。D6 代表由上一点移动到该点的矢量速度。D7 代表移动到该点需要动作的扫描机构(振镜或压电平台)。在加工中,光刻光束的焦点按照相应参数沿这些点依次移动,即可驱动相应的扫描机构,完成变速灰度直写光刻。第三层数据转化是将控制数据矩阵转化为硬件控制信号。系统在读取数据控制矩阵时,每个命令周期读入两行控制指令。第一行参数为系统的当前状态,第二行参数为需要将系统设置的目标状态。通过比较两种状态并进行相应的计算,得到更多的系统设置参数(如压电平台各轴的投影分解速度、振镜移动路径的控制点参数等),将生成的多路控制信号输入系统硬件中。当系统检测到各执行机构已经到达新的设置状态时,说明一个指令周期已经执行完成。进入下一指令周期后,原指令周期中的目标状态成为系统的当前状态。重复上述过程,直至所有指令执行完成。

L_0	D0-x	D0-y	D0-z	D3-P1	D4-P2	D5-O/I	D6-V	Dt-G/P
L_1	D0-x	D0-y	D0-z	D3-P1	D4-P2	D5-O/I	D6-V	Dt-G/P
				⋮				
L_i	D0-x	D0-y	D0-z	D3-P1	D4-P2	D5-O/I	D6-V	Dt-G/P
$L_{(i+1)}$	D0-x	D0-y	D0-z	D3-P1	D4-P2	D5-O/I	D6-V	Dt-G/P
				⋮				
	D0-x	D0-y	D0-z	D3-P1	D4-P2	D5-O/I	D6-V	Dt-G/P
L_n	D0-x	D0-y	D0-z	D3-P1	D4-P2	D5-O/I	D6-V	Dt-G/P

图 3 系统控制数据的格式

Fig. 3 Format of control data used in system

结合上述三层数据转化,直写光刻系统的总体控制流程如图 4 所示。需要说明的是,图 4 中的控制流程为一般三维图形的标准加工流程。当需要进行高精度加工时,可以跳过第一层、第二层数据转

化,直接编写图 3 中的控制数据文件,以精确控制系统的加工路径与加工参数。

4 加工能力分析与光刻结构展示

4.1 系统的极限加工能力

为了测试系统的极限加工能力,首先进行了附着于基板表面的最小线宽结构的光刻测试。基板为 170 μm 厚的高精度 K9 玻璃基板,光刻方式为油浸式光刻。在基板上滴入光刻胶开始加工。曝光完成后,先将基板连同光刻胶一同放入丙二醇甲醚醋酸酯(PGMEA)液体中静置浸泡 10 min 显影,再使用异丙醇(IPA)静置浸泡 2 min,然后自然风干,即获得附着于基板表面的光刻结构。最后,在结构表面沉积金属层,置于扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)中进行观察和测量。

通过多次测试、优化加工参数,使用压电平台,在 7.7 mW 激发光功率、6.9 mW 抑制光功率(以上两功率均为物镜入瞳处的等效平均功率,后文出现的功率亦为物镜入瞳处的等效平均功率)和 10 μm/s 加工速度下,获得了最小平均线宽为 64 nm 的均匀直线结构。图 5(a)所示为该结构的 SEM 图。为了对比有无抑制光对光刻性能的影响,在关断抑制光、只使用激发光且其他加工参数、工艺条件相同的情况下,重复了以上光刻过程,获得了平均线宽为 93 nm 的均匀直线结构,如图 5(b)所示。加工线宽平均减小了 29 nm,证实了 PPI 技术对减小加工线宽的有效性。但图 5(a)中的线边缘粗糙度没有图 5(b)中的低,这主要与抑制光的功率稳定性以及抑制光与激发光的空间对准稳定性有关。目前我们的抑制光功率稳定性大约为 5%,抑制光功率若发生抖动,加工的线宽会受到影响。此外,若加

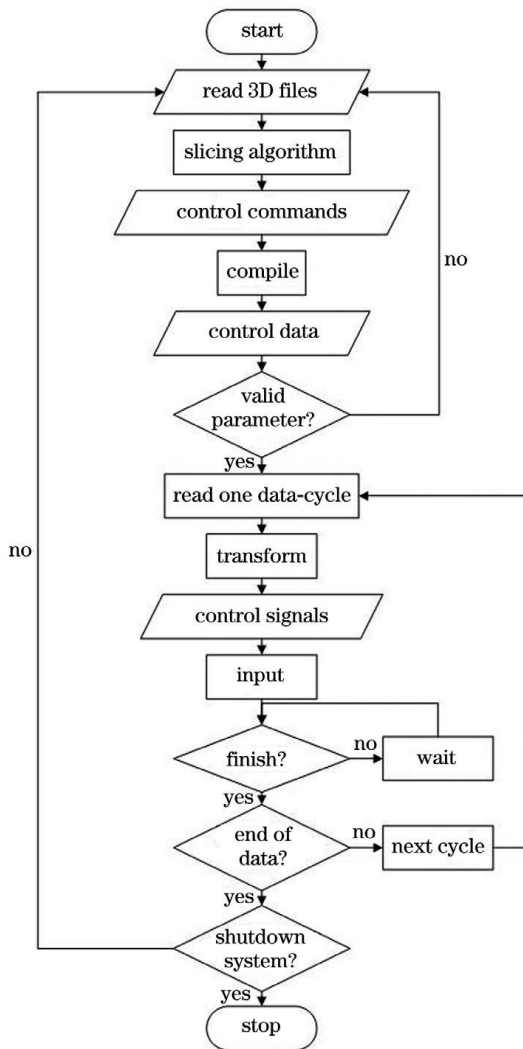


图 4 系统控制流程图

Fig. 4 Flow chart of system control

工时抑制光与激发光的聚焦位置发生相对抖动,线边缘粗糙度也会受到影响。

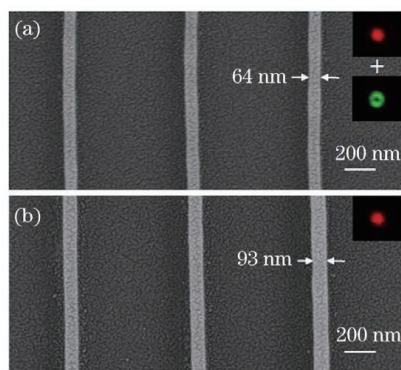


图 5 加工获得的附着于基板上的聚合线列。(a)使用抑制光;(b)不使用抑制光
Fig. 5 Polymerized line-arrays obtained by processing and attached on substrate. (a) With inhibition light; (b) without inhibition light

为了进一步研究抑制光与结构特征尺寸之间的关系,后续又进行了悬浮线加工。悬浮线结构如

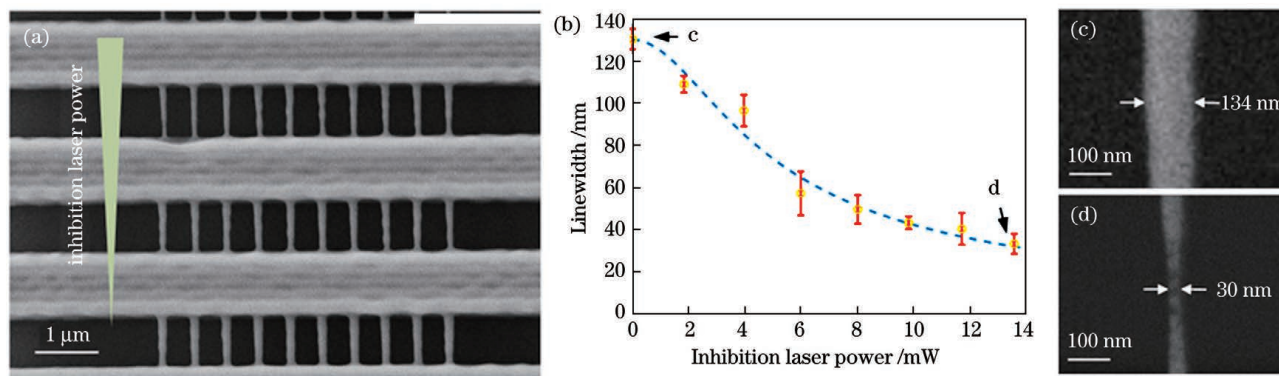


图 6 悬浮线加工结果。(a)悬浮线结构;(b)在固定激发光功率下,悬浮线特征尺寸随抑制光功率的变化(误差线表示 1 倍标准差,测量次数为 5);(c)134 nm 特征尺寸,不使用抑制光(与图(b)中 c 点对应);(d)30 nm 特征尺寸,使用功率为 13.6 mW 的抑制光(与图(b)中 d 点对应)

Fig. 6 Fabrication results of suspended lines. (a)Structure of suspended lines; (b) feature size of suspended lines versus inhibition laser power under same excitation power where error bars represent standard deviation, and number of measurements is 5; (c) feature size of 134 nm without inhibition light [corresponding to point c in Fig. (b)]; (d) feature size of 30 nm with 13.6 mW inhibition light [corresponding to point d in Fig. (b)]

在实际加工中发现,当进一步提高加工速度、减小激发光、增大抑制光强时,仍有可能得到更小特征线宽的悬浮线结构,但结构的成品率会大幅降低,大部分悬浮线发生断裂。因此,30 nm 线宽是实验中使用光刻胶聚合后的机械强度极限,线宽 30 nm 以下的悬浮线多数无法承受显影过程中的应力改变,因此发生断裂。

4.2 复杂图形结构加工

系统的极限加工能力是体现系统性能的核心指标,而使用系统加工贴近实际科研需求的各种微纳

图 6(a)所示,即在两个相邻平行基座间悬空连接且不附着于基板的聚合物连接线。两边支柱在显影之后发生收缩,使得悬浮线被拉伸,从而能够获得特征尺寸小于 50 nm 的线条^[20]。同样使用压电平台进行加工,加工速度为 10 $\mu\text{m/s}$ 。激发光功率为 14.4 mW,抑制光功率可变。

在实际加工中,选取了 0~14 mW 区间的一组数值作为抑制光的能量参数进行结构试制。使用 SEM 测量得到的结构,拟合出了特征线宽与抑制光功率的关系曲线,如图 6(b)所示。可以看到,拟合曲线与图 1(f)中的理论曲线近似,随着抑制光功率的逐渐增大,悬浮线的特征线宽减小。当抑制光功率为 0 时,双光子直写光刻得到的悬浮线特征线宽为 134 nm,如图 6(c)所示;当功率增大到 13.6 mW 时,得到了特征线宽为 30 nm 的悬浮线。进一步验证了 PPI 技术可以极大地压缩光刻结构的特征尺寸,最高可达到加工波长的 1/26。

结构则能更全面地验证系统的加工能力。图 7 为一组使用本系统加工获得的复杂图形结构的 SEM 照片,体现了系统在阵列结构加工、大面积曲线加工、三维图形高速加工等方面的加工能力。其中,图 7(a)所示为高深宽比的立方体二维阵列(激发光功率为 12.8 mW,抑制光功率为 4.7 mW)。阵列单元的尺寸为 $0.6 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m} \times 3 \mu\text{m}$,结构周期为 2 μm 。图 7(b)为图 7(a)中结构的局部放大。图 7(c)为分散在基板上的正五棱柱(激发光功率为 12.8 mW,抑制光功率为 4.7 mW),高度为 5 μm ,

柱面外接圆半径为 $1\ \mu\text{m}$ 。通过图 7(c)可以清楚地观察到加工柱体的整体形貌。图 7(d)为空间螺旋线二维阵列(激发光功率为 $10.6\ \text{mW}$,抑制光功率为 $8.9\ \text{mW}$)。阵列单元高为 $2.5\ \mu\text{m}$,螺距为 $1\ \mu\text{m}$,半径为 $500\ \text{nm}$,线宽为 $400\ \text{nm}$ 。图 7(d)中该类阵列结构是超表面光学器件中的典型结构。利用本文研制的光刻设备,可根据实际需要将阵列单元更换为各种柱体、椎体或其他三维结构,以满足不同的光学调制要求。图 7(e)为图 7(d)中结

构的局部放大。图 7(f)为双光子加工,展示了系统的二维浮雕的加工能力(激发光功率为 $20.4\ \text{mW}$)。图 7(g)为直径为 $60\ \mu\text{m}$ 的阿基米德螺旋线(激发光功率为 $12.8\ \text{mW}$,抑制光功率为 $5.3\ \text{mW}$),线距为 $1\ \mu\text{m}$,线宽为 $200\ \text{nm}$,该结构体现了系统的大面积曲线加工能力。图 7(h)为图 7(g)中结构的局部放大。图 7(i)为双光子加工(激发光功率为 $20.4\ \text{mW}$),展示了系统的复杂三维结构的加工能力。

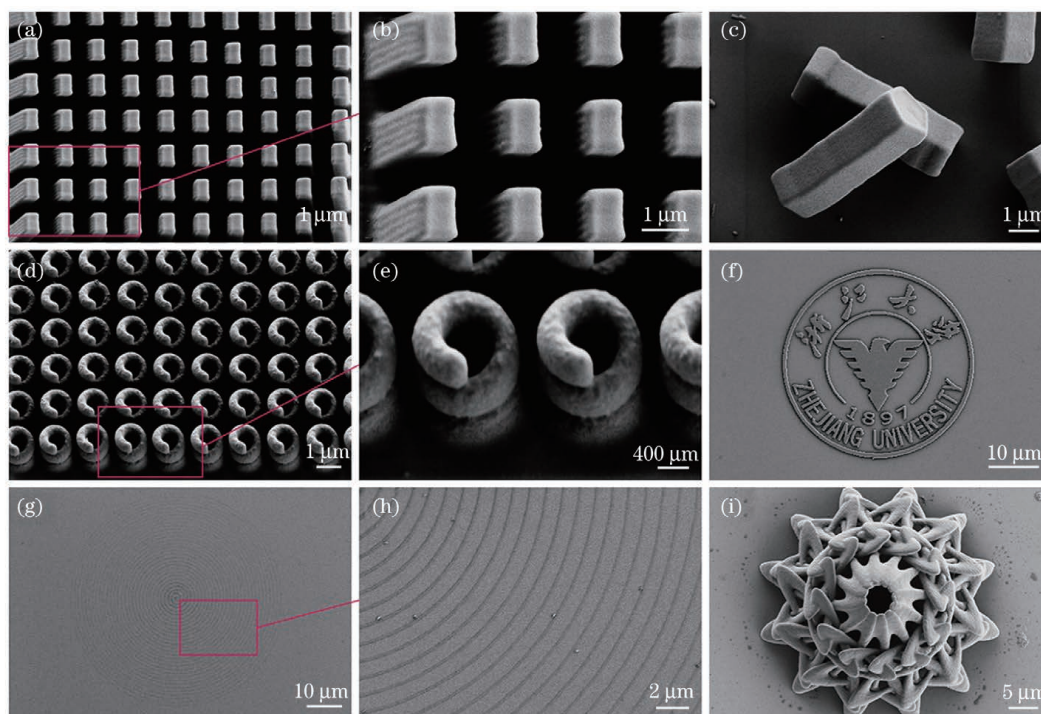


图 7 复杂图形结构的加工。(a)长方体二维阵列;(b)图(a)的局部放大;(c)五棱柱;(d)二维空间的螺旋线阵列;(e)图(d)的局部放大;(f)浙江大学校徽;(g)大尺寸等距阿基米德螺旋线;(h)图(g)的局部放大;(i)花状三维图形

Fig. 7 Fabrication of complex graphic structures. (a) Two-dimensional array of cuboid units; (b) partial enlargement of Fig. (a); (c) pentagonal prisms; (d) two-dimensional array of spatial helix units; (e) partial enlargement of Fig. (d); (f) emblem of Zhejiang University; (g) line of large-sized equidistant Archimedes helix; (h) partial enlargement of Fig. (g); (i) three-dimensional flower-shaped structure

除图 7(g)与图 7(h)所示结构为扫描振镜独立加工结果外,其他所有结构均为扫描振镜与压电平台的复合加工结果。扫描振镜负责局部高速扫描,压电平台负责空间三维定位。两种扫描机构协调工作,共同完成直写光刻。系统的平均加工速度为 $1\ \text{mm/s}$ 。需要说明的是,在高速加工时,限制系统加工速度的主要因素是光刻胶的光化学特性。在加工精度要求较低的情况下,只使用激发光进行双光子光刻,本系统的加工速度可以达到最高 $50\ \text{mm/s}$,此时的系统加工产率可以达到 $0.6\ \text{mm}^2/\text{min}$ 。

5 结 论

针对复杂三维微纳结构高速、高精度加工的需求,利用边缘光抑制技术,设计了一套双光束激光三维直写光刻系统。该系统具有三维压电平台扫描加工、高速振镜扫描加工以及双机构复合加工多种加工模式,适应不同加工要求。该系统在实际加工中,实现了基板表面最小线宽为 $64\ \text{nm}$ 的均匀线条直写和最小线宽为 $30\ \text{nm}$ 的悬浮线直写。同时,该系统的加工速度可以达到每秒毫米量级,简单灵活,适合于多种平面、三维微纳结构的高效加工,为生物、

机械、光学、微电子等学科的多个研究方向提供了一种有力的科研工具。

参 考 文 献

- [1] Gan Z S, Cao Y Y, Evans R A, et al. Three-dimensional deep sub-diffraction optical beam lithography with 9 nm feature size [J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2061.
- [2] Kaschke J, Wegener M. Gold triple-helix mid-infrared metamaterial by STED-inspired laser lithography[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(17): 3986-3989.
- [3] Frölich A, Fischer J, Zebrowski T, et al. Titania woodpiles with complete three-dimensional photonic bandgaps in the visible [J]. *Advanced Materials*, 2013, 25(26): 3588-3592.
- [4] Li X P, Cao Y Y, Tian N, et al. Multifocal optical nanoscopy for big data recording at 30 TB capacity and gigabits/second data rate[J]. *Optica*, 2015, 2(6): 567-570.
- [5] Wolfesberger C, Wollhofen R, Buchegger B, et al. Streptavidin functionalized polymer nanodots fabricated by visible light lithography[J]. *Journal of Nanobiotechnology*, 2015, 13: 27.
- [6] Klar T A, Wollhofen R, Jacak J. Sub-Abbe resolution: from STED microscopy to STED lithography[J]. *Physica Scripta*, 2014, T162: 014049.
- [7] Cao Y Y, Xie F, Zhang P D, et al. Dual-beam super-resolution direct laser writing nanofabrication technology[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2017, 44(12): 1133-1145, 1254.
曹耀宇, 谢飞, 张鹏达, 等. 双光束超分辨激光直写纳米加工技术[J]. *光电工程*, 2017, 44(12): 1133-1145, 1254.
- [8] Hell S W, Wichmann J. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy[J]. *Optics Letters*, 1994, 19(11): 780-782.
- [9] Fischer J, Wegener M. Three-dimensional optical laser lithography beyond the diffraction limit [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2013, 7(1): 22-44.
- [10] Fischer J, Wegener M. Three-dimensional direct laser writing inspired by stimulated-emission-depletion microscopy [Invited] [J]. *Optical Materials Express*, 2011, 1(4): 614-624.
- [11] Li L J, Gattass R R, Gershgoren E, et al. Achieving $\lambda/20$ resolution by one-color initiation and deactivation of polymerization [J]. *Science*, 2009, 324(5929): 910-913.
- [12] Harke B, Dallari W, Grancini G, et al. Polymerization inhibition by triplet state absorption for nanoscale lithography [J]. *Advanced Materials*, 2013, 25(6): 904-909.
- [13] Scott T F, Kowalski B A, Sullivan A C, et al. Two-color single-photon photoinitiation and photoinhibition for subdiffraction photolithography[J]. *Science*, 2009, 324(5929): 913-917.
- [14] Andrew T L, Tsai H Y, Menon R. Confining light to deep subwavelength dimensions to enable optical nanopatterning[J]. *Science*, 2009, 324(5929): 917-921.
- [15] Wollhofen R, Katzmman J, Hrelescu C, et al. 120 nm resolution and 55 nm structure size in STED-lithography [J]. *Optics Express*, 2013, 21(9): 10831-10840.
- [16] Sun H B, Kawata S. Two-photon photopolymerization and 3D lithographic microfabrication [M] // Fatkullin N, Ikehara T, Jinnai H, et al. *NMR · 3D analysis · photopolymerization*. *Advances in polymer science*. Heidelberg: Springer, 2004, 170: 169-273.
- [17] Zhou X Q, Hou Y H, Lin J Q. A review on the processing accuracy of two-photon polymerization [J]. *AIP Advances*, 2015, 5(3): 030701.
- [18] Hu Y L, Wang Z Y, Wang X W, et al. Efficient full-path optical calculation of scalar and vector diffraction using the Bluestein method [J]. *Light: Science & Applications*, 2020, 9: 119.
- [19] Westphal V, Hell S W. Nanoscale resolution in the focal plane of an optical microscope [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(14): 143903.
- [20] Li Y, Qi F J, Yang H, et al. Nonuniform shrinkage and stretching of polymerized nanostructures fabricated by two-photon photopolymerization [J]. *Nanotechnology*, 2008, 19(5): 055303.

Dual-Beam Laser Direct Writing Nano-Lithography System Based on Peripheral Photoinhibition Technology

Zhou Guozun^{1†}, He Minfei^{1†}, Yang Zhenyao², Cao Chun², Xie Fei³, Cao Yaoyu³,
Kuang Cuifang^{1,2*}, Liu Xu^{1,2**}

¹State Key Laboratory of Modern Optical Instrumentation, College of Optical Science and Engineering, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China;

²Research Center for Smart Sensing, Zhejiang Laboratory, Hangzhou, Zhejiang 310023, China;

³Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Fiber Sensing and Communications, Institute of Photonics Technology, Jinan University, Guangzhou, Guangdong 510000, China

Abstract

Objective Laser direct writing technology based on peripheral photoinhibition (PPI) is a three-dimensional direct writing lithography technology that utilizes nonlinear optical effects to reduce the lithographic linewidth. Compared with two-photon laser direct writing, the PPI technology can achieve high resolution and three-dimensional laser fabrication beyond the optical diffraction limit. However, there are still some limitations in the design and development of the PPI laser direct writing lithography system. At present, the PPI laser direct writing lithography system generally selects a high precision piezoelectric platform as a single scanning device, because the piezoelectric platform has the advantages of high stability, direct three-dimensional scanning, and simplified optical design. However, the scanning speed of the piezoelectric platform is unacceptable in nanofabrication, and the large inertia of the piezoelectric platform makes the acceleration and deceleration time too long in the scanning process. It is difficult to complete the fabrication of large-size three-dimensional nanodevices. The scanning speed of a galvanometer scanner is much higher than that of the piezoelectric platform, but it can only implement two-dimensional scanning. Aiming at the above problems, a PPI laser direct writing lithography system with two scanning devices of a high-speed galvanometer scanner and a three-dimensional translational piezoelectric platform is designed in this paper. Our system has three operation modes, including piezoelectric platform scanning mode, galvanometer scanning mode, and composite processing mode, which are suitable for different nanodevice fabrication requirements.

Methods In the experiments, a photoresist with 7-diethylamino-3-thenoylcoumarin (DETC) as an initiator is selected in fabrication. As a typical photoresist initiator used in PPI laser direct writing lithography, DETC induces the depolymerization reaction in the photoresist through the stimulated emission depletion effect to achieve small-linewidth direct writing. According to the photochemical characteristics of DETC, a femtosecond laser with wavelength of 780 nm and a continuous laser with wavelength of 532 nm are selected as excitation light and inhibition light, respectively. In our system, two acoustic optical modulators are used to control the laser powers of the excitation light and the inhibition light. A vortex phase plate adds a $0-2\pi$ vortex phase to the inhibition light, so that the inhibition light is focused in a doughnut-shape spot. There are two types of scanning devices in the system: a high-speed galvanometer scanner and a three-dimensional translational piezoelectric platform. Through a three-level control data conversion scheme, the structural information of the nanodevice is transformed into the control signals of the galvanometers, piezoelectric platform, and AOMs to realize the three-dimensional laser direct writing fabrication. The system also has power monitors, which measure the power of the excitation light and the inhibition light in real time.

Results and Discussions By the experimental tests and the exposure parameter optimization, the polymerized line-arrays attached on substrate surfaces with a 64 nm linewidth are obtained under the excitation light power of 7.7 mW, the inhibition light power of 6.9 mW, and the scanning speed of $10 \mu\text{m/s}$ [Fig. 5(a)]. To compare the effect of inhibition light on the exposure results, the same structure is fabricated using the same exposure parameters except without inhibition light. When only excitation light is involved in the direct writing process, the linewidth is expanded to 93 nm [Fig. 5(b)]. Using the PPI technology, the average width of polymerized lines on substrates is reduced by 29 nm, which proves the effectiveness of PPI in reducing linewidth. To further study the relationship between the inhibition light and the structural feature size, a group of suspended lines are fabricated in the

experiment [Fig. 6 (a)]. A set of values in the range of 0–14 mW are selected as the power parameters of inhibition light for suspended line fabrication. The variation of the suspended line widths [Fig. 6 (b)] is in accordance with the theoretical expectation [Fig. 1(f)]. It can be seen that with the increase of inhibition light power, the width of the suspended line decreases. When the inhibition light power is 0, the width of the suspended line obtained by two-photon direct writing is 134 nm [Fig. 6(c)]. When the power is increased to 13.6 mW, a suspended line with a linewidth of 30 nm is fabricated. It is further verified that the PPI technology can greatly compress the feature size of the nanostructure up to 1/26 of the processing wavelength. Figure 7 is a set of scanning electron microscope images of complex micro-nano structures manufactured by our system. Figure 7 confirms the capability of our system in nano-array structure fabrication, large-area curve structure fabrication, high-speed three-dimensional structure fabrication, etc.

Conclusions For the high-speed and high-precision fabrication of complex three-dimensional micro-nano structures, a dual-beam laser direct writing lithography system based on the PPI technology is designed and developed. To meet different requirements, the system may operate in different modes at user options, including piezoelectric platform scanning mode, galvanometer scanning mode, and composite processing mode. By the accurate control of laser power and scanning speed, polymerized line-arrays attached on substrate surfaces with 64 nm linewidth and a group of suspended lines with 30 nm linewidth are obtained in the experiments. The maximum fabricating speed of our system reaches 50 mm/s. It is suitable for the efficient manufacturing of a variety of planar and three-dimensional micro-nano structures, and it provides a powerful scientific research tool for many research fields of micro-nano optics, micro-nano electronics, biology, and other disciplines.

Key words laser technique; optical fabrication; stimulated emission depletion; laser direct writing; micro-nano optical devices