

背向曝光表面等离子体激元干涉光刻系统中 银层超透镜的优化设计

肖 啸¹ 张志友² 何明阳² 肖志刚¹ 许德富¹

(¹ 乐山师范学院物理与电子工程学院, 四川 乐山 614004
² 四川大学物理科学与技术学院纳光子技术研究所, 四川 成都 610064)

摘要 利用表面等离子体激元(SPP)的局域能量增强效应可提高现有光学光刻的分辨率。背向曝光 SPP 干涉光刻技术可以大面积制备低成本的纳米周期性结构。理论分析了 SPP 在背向曝光系统中的共振透射特性,提出了背向曝光 SPP 干涉光刻系统核心元件——银层超透镜的优化设计方法,并利用时域有限差分法和理论解析式模拟计算了背向曝光 SPP 干涉光场分布,通过优化设计银层超透镜厚度和共振角,实验获得了较好的周期性光刻线条。

关键词 表面光学;表面等离激元干涉光刻;背向曝光;银层超透镜

中图分类号 O436.1 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.1222007

Optimized Design of Silver Superlens for the Surface Plasmon Polaritons Interference Lithography Based on Backside-Exposure Technique

Xiao Xiao¹ Zhang Zhiyou² He Mingyang² Xiao Zhigang¹ Xu Defu¹

(¹ College of Physics and Electronic Engineering, Leshan Normal University, Leshan, Sichuan 614004, China
² Institute of Nanophotonics Technology, School of Physical Science and Technology, Sichuan University, Chengdu, Sichuan 610064, China)

Abstract Photolithography resolution could be enhanced by the local enhancement effects of surface plasmon polaritons (SPP). Large-area periodic nanostructures could be fabricated by backside exposure SPP interference lithography. Resonance transmission of SPP in backside exposure system is analyzed, an optimum design method is proposed for silver superlens, and the intensity distribution of SPP interference lithography is simulated by finite difference time domain (FDTD) method and theoretic formulas. With optimum design of superlens thickness and resonance angle, a periodic silt array is obtained with better quality in laboratory.

Key words surface optics; surface plasmon polaritons interference lithography; backside exposure technique; silver superlens

OCIS codes 220.3620; 050.1970; 240.6680; 310.6845

1 引 言

发展一种灵活、快速、低成本和大面积的纳米光刻技术,已成为目前微细加工领域科研人员重点攻关的目标之一。在 21 世纪初,有人提出接触式隐失波干涉光刻(EIL)可获得纳米量级图形^[1~3],但由于传播距离短、曝光深度浅和干涉条纹对比度差等原因,导致在光刻过程中曝光效率低、工艺控制难度

大。表面等离子体激元(SPP)具有局域透射增强特性,为隐失波近场光刻曝光场较弱的问题提供了可能的解决方案,并能有效提高光刻图形的质量^[4~13]。不过这种方法需要先用其他纳米级光刻工具加工出周期性金属掩模,而掩模光刻的主要缺点是需要根据不同的应用需求加工不同的掩模图形,应用电子束直写不仅费时而且难以实现大面积

收稿日期: 2011-07-01; **收到修改稿日期**: 2011-08-11

基金项目: 乐山师范学院资助项目(Z1007)、四川省教育厅科研项目(11ZB133)和乐山市科技局重点项目(10GZD022)资助课题。

作者简介: 肖 啸(1975—),男,硕士,讲师,主要从事衍射光学和微细加工技术等方面的研究。

E-mail: xiao_scu@sohu.com

纳米图形掩模制作,同时设计和加工多种纳米级掩模会导致实验(或产品)的成本大幅上升。这些有着纳米结构的掩模在接触式曝光过程中容易被污染和损伤,会影响再次光刻图形的质量,造成新的问题。同时在紧密接触曝光时,也易破坏抗蚀剂表面,导致光刻质量极大下降。2006年,Shao等^[5]提出利用棱镜衰减全反射(ATR)耦合模式激发表面等离子体干涉光刻。这一方法无需制作作为掩模的精细光栅,降低了制作成本,并可用于大面积纳米光刻加工,从而受到光刻领域研究者的极大关注。在这种装置中,银层通常镀在高折射率棱镜表面,光刻胶涂覆在基片上,两者相互分离,但曝光时须将光刻胶与金属银层紧密接触。此方法的最大缺陷仍然是金属银层与光刻胶紧密接触问题,一方面可以采用紧密接触式需要真空吸附或者压紧曝光,但会损伤光刻胶和银层表面;另一方面可以在光刻胶和银层之间填充匹配液,但会污染光刻胶和银层,并且匹配液厚度难以控制,在显影时匹配液也极容易严重污染显影液,影响整个记录图形表面的质量。由于银层蒸镀在棱镜的表面,容易被氧化,而且曝光时难免会对银膜造成破坏,使得镀膜棱镜难以重复使用,因此会带来极大的不便。为使SPP干涉光刻易于实现和实用化,2010年,He等^[14]提出了一种背向曝光的SPP干涉光刻技术,并获得了SPP干涉光刻的实验结果,为纳米干涉光刻实用技术的发展提供了新途径。实际上,背向曝光系统中的银层超透镜厚度对光刻质量影响较大,只有优化设计合适的银层厚度,才能达到最佳的光刻效果,获得较好的光刻质量。

本文讨论背向曝光SPP干涉光刻系统中银层

超透镜对干涉光场的影响,获得银层超透镜对曝光光场的影响规律,优化设计出具有最佳曝光图形的银层超透镜,并论证利用低折射率的棱镜实现SPP共振和干涉光刻。

2 背向曝光SPP干涉光刻的原理

背向曝光SPP干涉光刻装置如图1所示^[14],最上面为棱镜,其介电常数为 ϵ_0 ;银层超透镜的介电系数为 $\epsilon_1 = \epsilon'_1 + j\epsilon''_1$, ϵ'_1 为三频率 ω 相关的实介电常数,表示金属是一种色散介质, ϵ''_1 为金属内的损耗,厚度为 d_1 ;光刻胶的介电常数为 ϵ_2 ,厚度为 d_2 ;最下是空气层,介电常数为 ϵ_3 。当 d_1 和 d_2 均为有限时,银层上、下两表面产生的SPP相互耦合效应增强,并由于薄层抗蚀剂的影响,使得光在传输层中本征色散方程较为复杂,根据麦克斯韦方程组和相应的边界连续性条件可得到色散方程^[15](由于一般采用TM波来激发SPP,因此均针对TM波讨论):

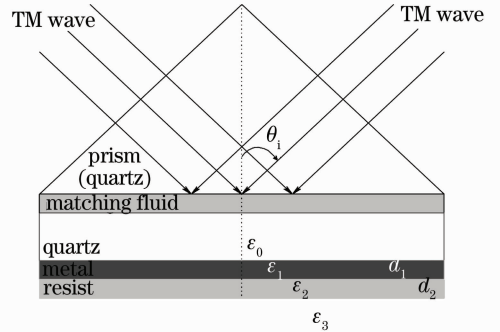


图1 背向曝光的SPP干涉光刻装置
Fig. 1 Schematic of SPP lithographic device based on interference backside exposure technique

$$D = \left(\frac{k_{3z}}{\epsilon_3} + \frac{k_{1z}}{\epsilon_1} \right) - j \tan(k_{2z}d_2) \left(\frac{k_{3z}k_{1z}}{k_{2z}} \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1\epsilon_3} + \frac{k_{2z}}{\epsilon_2} \right) + r_{01} \exp(2jk_{1z}d_1) \left[\left(\frac{k_{1z}}{\epsilon_1} - \frac{k_{3z}}{\epsilon_3} \right) - j \tan(k_{2z}d_2) \left(\frac{k_{3z}k_{1z}}{k_{2z}} \frac{\epsilon_2}{\epsilon_1\epsilon_3} - \frac{k_{2z}}{\epsilon_2} \right) \right], \quad (1)$$

式中 $k_{iz} = [\epsilon_i(\omega/c)^2 - k_x^2]^{1/2}$, ($i = 1, 2, 3$)为垂直表面波矢分量的模, ω 为入射光的频率, c 为光在真空中的速度; k_x 为平行于表面波矢分量的模; $r_{01} = \left(\frac{k_{1z}}{\epsilon_1} - \frac{k_{0z}}{\epsilon_0} \right) / \left(\frac{k_{1z}}{\epsilon_1} + \frac{k_{0z}}{\epsilon_0} \right)$ 。令 $D = 0$,可以得到 k_x 的本征值,此时 k_x 为复数,其实部表示传输波,虚部表示衰减。考虑有限厚度时,SPP在光刻胶下表面的透射增强因子为^[14]

$$T_{\text{SPP}} = \frac{(\epsilon_0/k_{0z} + \epsilon_1/k_{1z})}{2\epsilon_0/k_{0z}} \frac{[A + Br_{01} \exp(jk_{1z}d_1)]}{[r_{23} \exp(jk_{2z}d_2) + \exp(jk_{1z}d_1)]}, \quad (2)$$

$$A = \frac{(\epsilon_1/k_{1z} + \epsilon_2/k_{2z})}{2\epsilon_1/k_{1z}} \frac{[1 + r_{12}r_{23} \exp(2jk_{2z}d_2)]}{\exp(jk_{1z}d_1)}, \quad B = A \exp(jk_{1z}d_1) + r_{23} \exp(2jk_{2z}d_2) \exp(jk_{1z}d_1) - 1,$$

式中 r_{ij} 为 i, j 区域边界上的反射系数, $i, j = 0, 1, 2, 3$ 。由于银层与光刻胶都很薄,界面上SPP相互耦合作用,使得银层与光刻胶界面SPP波矢发生变化,SPP波矢的变化与银层、光刻胶之间的关系可以简单表示

为^[15]

$$k_{\text{spp}} = k_x^{\text{halfspace}} + k_x^{\text{resist}} + k_x^{\text{silver}}, \quad (3)$$

式中 $k_x^{\text{halfspace}}$ 是 SPP 在半无限大银层与空气的界面色散, k_x^{resist} 是有限厚度光刻胶薄层对 SPP 波矢的修正, k_x^{metal} 是有限厚银层的修正, 它们分别为

$$k_x^{\text{halfspace}} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_1 \epsilon_3}{\epsilon_1 + \epsilon_3} \right)^{1/2}, \quad (4)$$

$$k_x^{\text{resist}} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_2 - \epsilon_3}{\epsilon_2} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_3}{\epsilon'_1 + \epsilon_3} \right)^2 \left(\frac{\epsilon_2 - \epsilon'_1}{\epsilon_3 - \epsilon'_1} \right) (-\epsilon'_1 \epsilon_3)^{-1/2} \frac{2\pi d_2}{\lambda} + \frac{\omega}{c} r_{01} \left(\frac{2}{\epsilon_3 - \epsilon'_1} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_3}{\epsilon'_1 + \epsilon_3} \right)^{3/2} \times \exp \left[-2 \frac{2\pi d_1}{\lambda} \frac{-\epsilon'_1}{(-\epsilon'_1 - \epsilon_3)^{-1/2}} \right], \quad (5)$$

令

$$k_x^{\text{pC}} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_2 - \epsilon_3}{\epsilon_2} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_3}{\epsilon'_1 + \epsilon_3} \right)^2 \left(\frac{\epsilon_2 - \epsilon'_1}{\epsilon_3 - \epsilon'_1} \right) (-\epsilon'_1 \epsilon_3)^{-1/2} \left(\frac{2\pi d_2}{\lambda} \right), \quad (6)$$

$$k_x^{\text{pR}} = \frac{\omega}{c} r_{01} \left(\frac{2}{\epsilon_3 - \epsilon'_1} \right) \left(\frac{\epsilon'_1 \epsilon_3}{\epsilon'_1 + \epsilon_3} \right)^{3/2} \exp \left[-2 \frac{2\pi d_1}{\lambda} \frac{-\epsilon'_1}{(-\epsilon'_1 - \epsilon_3)^{-1/2}} \right], \quad (7)$$

则

$$k_x^{\text{silver}} = k_x^{\text{pC}} \left\{ \frac{1}{2} \frac{k_x^{\text{pC}}}{\text{Re } k_x^{\text{halfspace}}} \left[2 \frac{2\epsilon_3^2 - \epsilon_2^2}{\epsilon_3(\epsilon_3 - \epsilon_2)} + \frac{\epsilon'_1 + \epsilon_3}{-\epsilon_3} \right] - \frac{1}{2} j \frac{\epsilon''_1}{\epsilon'_1} \right\} + k_x^{\text{pR}} \left[\frac{1}{2} \frac{k_x^{\text{pR}}}{\text{Re } k_x^{\text{halfspace}}} \left(\frac{2\epsilon'_1 + \epsilon_3}{-\epsilon_3} \right) - j \frac{\epsilon''_1}{\epsilon'_1 - \epsilon_3} \right] + \frac{k_x^{\text{pC}} k_x^{\text{pR}}}{\text{Re } k_x^{\text{halfspace}}} \left(-\frac{\epsilon'_1}{\epsilon_3} + \frac{2\epsilon_3}{\epsilon_3 - \epsilon_2} + \frac{\epsilon_2}{2\epsilon_3} \right). \quad (8)$$

由(3)式可知,当棱镜的折射率、光刻胶的折射率和厚度给定时,银层两界面上的色散特性与金属银层的厚度有着密切的关系。SPP 共振时,需满足 $k_{\text{spp}} = k_x = nk_0 \sin \theta_i$, 其中 θ_i 为入射角, n 为棱镜的折射率。由于 SPP 干涉的图形分辨率 $\eta = \pi/k_{\text{spp}} = \pi/(nk_0 \sin \theta_i)$, 因此,研究银层与光刻图形分辨率之间的关系可以转化为研究银层厚度与入射角的关系。

3 银层超透镜的优化设计

根据背向曝光(1)~(3)式,利用 Matlab 软件进

行编程计算,可优化设计出最佳的银层厚度。实验中采用的入射光波长为 441.6 nm,在此条件下银层超透镜的介电常数为 $-8.9 + 0.23i$ 。分别选择具有高折射率的重火石玻璃棱镜(折射率 1.89),和普通 K9 玻璃棱镜(折射率 1.53)作为耦合棱镜,光刻胶为稀释 AR-P3170 正性光刻胶(折射率 1.59),转速为 4000 r/min 时,旋涂厚度约为 $d = 80$ nm,最外层为空气。图 2 是利用上述参数计算得到的 SPP 共振随银层超透镜的变化关系。

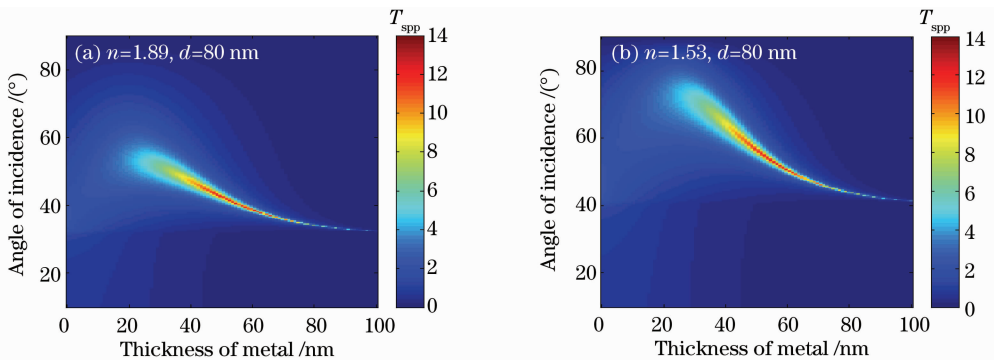


图 2 T_{spp} 随银层厚度和共振角的变化关系

Fig. 2 T_{spp} versus the thickness of silver superlens and incident angle

由图 2 可见,银层厚度极大地影响着 SPP 共振角和增强因子 T_{spp} ;当银层太薄时(小于 20 nm),超透镜对隐失波增强不够,没有明显的 SPP 共振增强

现象,此时光刻胶中的光强较弱,穿透深度较浅,难以获得较好的 SPP 干涉图形;若银层太厚(大于 80 nm),隐失波在银层中衰减较大,还没来得及到

达银层下表面就已经消耗殆尽,无法使光刻胶感光。因此需要优化银层厚度,在满足较大共振角(以获得较高的光刻分辨率)的同时具有较高的增强因子。图 2(a)所使用的耦合棱镜折射率为 $n=1.89$,当银层厚度为 25~70 nm 时,有较好的 SPP 共振效果,相应的共振角在 $55^\circ\sim 35^\circ$,最大透射增强因子可达 14。图 2(b)所使用的耦合棱镜的折射率为 $n=1.53$,当银层厚度为 30~70 nm 时,SPP 共振效应较明显,对应的共振角在 $75^\circ\sim 45^\circ$ 之间。根据图 2 可获得不同共振条件下银层的厚度,可为快速获得背向曝光 SPP 干涉光刻实验参数提供便捷的方法。

实验中如果采用的高折射率棱镜为等腰直角棱镜, 45° 入射角的光路调节最为方便,由图 2(a)可知,对应此入射角的银层最佳厚度约为 40 nm。通过增大入射角,并采用高折射率的匹配液还可实现更高的分辨率,但高折射率的匹配液不易获得,而且通常具有一定的毒性,较难广泛应用。如果利用较低折射率的棱镜可有效激发 SPP,加之相应的匹配液容易获得(如常用的松泊油、蓖麻油和去离子水等),将使 SPP 干涉光刻变得更为易于实现和推广。由图 2(b)可见,当光刻胶为有限厚度时,利用较低折射率棱镜也可以激发 SPP,若采用 $n=1.53$ 的低折射率棱镜,为

获得与上述高折射率棱镜相同的光刻分辨率,其共振角度为 60.4° ,对应的银层厚度约为 45 nm。

4 背向曝光 SPP 干涉光刻的模拟与实验

选择银层厚度为 45 nm,抗蚀剂厚度为 80 nm,耦合棱镜折射率为 1.53,对光刻胶中的光场分布进行计算模拟。由图 2(b)可知,当棱镜的折射率为 1.53 时,45 nm 厚银层对应的共振角为 60.4° 。图 3(a),(b)分别给出了利用时域有限差分法(FDTD)和基于(2)和(3)式计算得到的光强分布情况,对比两图可以发现,除增强因子和棱镜中光场分布稍有差别外,两种结果基本一致。上述计算结果存在差异的原因是由于 FDTD 是一种近似的数值解法,而(2)和(3)式是一种精确解,所得到的结果更为可靠一些。从图 3 也可明显看出,在共振条件下,绝大部分入射波能量都被耦合到光刻胶中,在光刻胶涂层中形成较为均匀的 SPP 干涉条纹,其周期约为 165 nm(分辨率为 82.5 nm),最大增强因子可达 14 以上,而且整个光刻胶可被完全曝透,有利于显影。

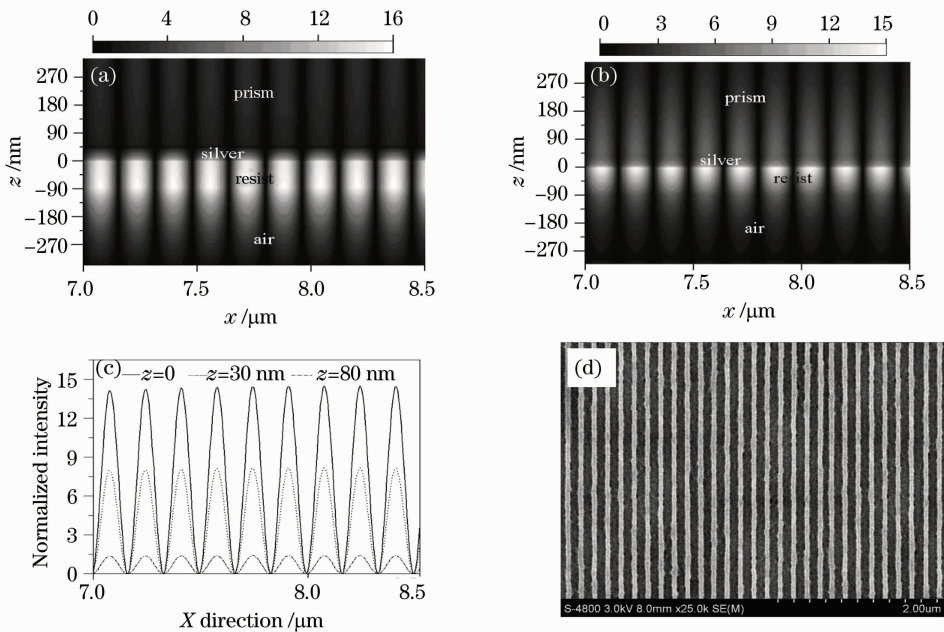


图 3 抗蚀剂中的光强分布

Fig. 3 Light-intensity distribution in the resist

图 3(c)是 SPP 干涉场在距离银层下表面不同位置处的强度分布(已利用入射光强度进行归一化处理)。 $z=0$ 表示抗蚀剂的上表面,该处透射增强因子达到 14,即使在抗蚀剂的下表面,透射增强因

子依然较大,完全能够满足光刻时的曝光强度。利用折射率为 1.53 的棱镜和基片,经清洁和烘干处理,在基片表面蒸镀一层厚度为 45 nm 的银膜,然后把 AR-P3170 光刻胶和配套稀释液,按体积比 1:1

稀释,用 4000 r/min 的转速在银层表面旋涂厚度为 80 nm 的光刻胶,利用加热铁板,在 90 °C 条件下前烘 1 min,用松泊油作为匹配液,采用前述参数的背向式曝光,再经后烘、流水方式显影和坚膜等过程获得如图 3(d)所示的光刻图形。从扫描电子显微镜照片可以看出,当光刻胶较薄时,利用低折射率棱镜可以较好地激发 SPP,实现较高分辨率的干涉光刻,为 SPP 干涉光刻的实用化提供了一条较好的途径。

5 结 论

针对背向曝光 SPP 干涉光刻技术,理论研究了 SPP 在光刻系统中的传播特性,并对背向曝光 SPP 干涉光刻系统的核心元件——银层超透镜进行了优化设计。讨论了背向曝光 SPP 干涉光刻系统中高折射率棱镜和低折射率棱镜激发 SPP 时共振角和银层厚度的对应关系,证明了利用较低折射率的棱镜也可有效激发 SPP,并利用 K9 玻璃棱镜和基底 ($n=1.53$),在银层厚度为 45 nm,共振角为 60.4° 条件下,采用背向曝光技术,实验制作了周期为 165 nm(分辨率为 82.5 nm)的光刻图形。背向曝光 SPP 干涉光刻系统中,光刻胶在最外层,无需光刻胶与棱镜的紧密接触,能有效地保护光刻胶涂层,基片与棱镜之间可用匹配液进行耦合,不必控制匹配液层的厚度。在显影时,采用流水式显影,能够很好地防止匹配液对光刻胶表面的污染。此装置可以灵活、快速、大面积地在光刻胶中制作周期性纳米线条和点阵,也可以方便地将其图形转移到金属当中。

参 考 文 献

- 1 L. P. Ghislain, V. B. Elings, K. B. Crozier *et al.*. Near-field photolithography with a solid immersion lens[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 1999, **74**(4): 501~503
- 2 T. D. Milster, J. S. Jo, K. Hirota. Roles of propagating and evanescent waves in solid immersion system[J]. *Appl. Opt.*, 1999, **38**(23): 5046~5057

- 3 R. J. Blaikie, S. J. McNab. Evanescent interferometric lithography[J]. *Appl. Opt.*, 2001, **40**(10): 1692~1698
- 4 W. Srituravanich, N. Fang, C. Sun *et al.*. Plasmonic nanolithography[J]. *Nano. Lett.*, 2004, **4**(6): 1085~1088
- 5 D. B. Shao, S. C. Chen. Numerical simulation of surface-plasmon assisted nanolithography [J]. *Opt. Express*, 2005, **13**(18): 6964~6973
- 6 X. W. Guo, J. L. Du, Y. K. Guo *et al.*. Large-area surface plasmon polariton interference lithography[J]. *Opt. Lett.*, 2006, **31**(17): 2613~2615
- 7 J. Q. Wang, H. M. Liang, X. Y. Niu *et al.*. Enhancing exposure depth for surface-plasmon polaritons interference nanolithography by waveguide modulation[J]. *J. Appl. Phys.*, 2010, **108**(1): 014308
- 8 X. Y. Niu, Y. M. Qi, J. Q. Wang *et al.*. Approach of enhancing exposure depth for evanescent wave interference lithography [J]. *Microelectron. Engng.*, 2010, **87** (5-8): 1168~1171
- 9 X. W. Guo, J. L. Du, X. G. Luo *et al.*. Surface-plasmon polariton interference nanolithography based on end-fire coupling [J]. *Microelectron. Engng.*, 2007, **84**(5-8): 1037~1040
- 10 F. Liang, J. L. Du, X. W. Guo *et al.*. The theoretic analysis of maskless surface plasmon resonant interference lithography by prism coupling[J]. *Chin. Phys. B*, 2008, **17**(7): 2499~2503
- 11 Jin Fengze, Fang Liang, Zhang Zhiyou *et al.*. Photonic crystal fabrication based on surface plasmon polaritons interference nanolithography [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29** (4): 1075~1078
金风泽, 方 亮, 张志友等. 表面等离激元干涉制备纳米光子晶体的模拟分析[J]. *光学学报*, 2009, **29**(4): 1075~1078
- 12 Zhao Chengqiang, Xu Wendong, Hong Xiaogang *et al.*. Probe inducing surface plasmon resonance nanolithographic system[J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(2): 473~477
赵成强, 徐文东, 洪小刚等. 探针诱导表面等离子体共振纳米光刻系统[J]. *光学学报*, 2009, **29**(2): 473~477
- 13 Hong Xiaogang, Xu Wengdong, Li Xiaogang *et al.*. Numerical simulation of probe induced surface plasmon resonance coupling nanolithography [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, **57** (10): 6643~6648
洪小刚, 徐文东, 李小刚等. 数值模拟探针诱导表面等离子体共振耦合纳米光刻[J]. *物理学报*, 2008, **57**(10): 6643~6648
- 14 M. Y. He, Z. Y. Zhang, S. Shi *et al.*. A practical nanofabrication method: surface plasmon polaritons interference lithography based on backside-exposure technique [J]. *Opt. Express*, 2010, **18**(15): 15975~15980
- 15 I. Pockrand. Surface plasma oscillations at silver surfaces with thin transparent and absorbing coatings[J]. *Surf. Sci.*, 1978, **72**(3): 577~588