

Наноразмерный рельеф: от фазовых масок до антиотражающих структур на кварце и кремнии

Ю.К.Верёвкин, А.Ю.Климов, Б.А.Грибков, В.Н.Петряков, Е.В.Копосова, С.М.Олайзола

С использованием интерференции импульсного излучения и полного цикла литографии созданы фазовые маски на кварце и антиотражающие структуры на кварце и кремнии. При помощи компьютерной программы на основе строгого решения интегрального уравнения рассчитано пропускание гофрированной границы вакуум–твёрдое тело для параметров, близких к параметрам экспериментальных структур. Результаты измерений достаточно хорошо согласуются с расчётами. Разработанные методы могут быть полезны для создания оптических и полупроводниковых устройств.

Ключевые слова: интерференция импульсного излучения, фазовые маски, антиотражающие структуры, компьютерные программы.

1. Введение

Наноразмерные периодический и квазипериодический рельефы на плавленом кварце представляют интерес для создания различных оптических и электронных устройств. Это прежде всего фазовые маски, используемые при копировании резонансных брэгговских отражателей для волоконно-оптических и планарных устройств [1–3], одномерные и двумерные штампы для нанопечати [4–6], широкополосные антиотражающие структуры [7, 8] и другие возможные устройства [9, 10].

При создании периодических фазовых масок наиболее часто используются методы электронно-лучевой литографии. В настоящей работе развивается более простой и адекватный для этих целей метод интерференционной литографии с использованием мощного импульсного ХеСI-лазера с высоким качеством выходного излучения. Одно из преимуществ такого метода заключается в значительно меньшем влиянии механических колебаний в оптической установке на результаты наноразмерной модификации. Кроме того, при использовании импульсных лазеров возможно увеличение энергии импульсного излучения до нескольких десятков джоулей. Это позволит создавать наноразмерные структуры на площади до 1000 см².

2. Оценки характеристик поверхностного рельефа для создания фазовых масок и антиотражающих структур

При создании фазовых масок необходимо выполнить условие минимального пропускания излучения в нуле-

вом порядке (ПИНП) дифракции. Удовлетворительное качество фазовой маски получается при ПИНП менее 10 %. Из элементарных физических представлений минимум ПИНП можно получить при глубине рельефа $h \approx \lambda \times [2(n-1)]^{-1}$, где λ – длина волны излучения, используемого для копирования, а n – показатель преломления материала фазовой маски. (Это условие обеспечивает минимум интенсивности в нулевом порядке дифракции при нормальном падении волны на прямоугольный рельеф.) Такая оценка является весьма приближённой, и нужны как более точная теория, так и экспериментальные измерения.

Для создания антиотражающих структур необходимо выполнить два условия: период рельефа d должен удовлетворять соотношению $d < \lambda_a/n$ и высота рельефа h должна быть примерно равна $\lambda_a/4$, где λ_a – длина волны излучения, для которого нужно реализовать антиотражающую структуру. (Первое из этих условий требуется для подавления возбуждения дифракционных порядков внутри среды, а второе обеспечивает минимум интенсивности отраженного излучения в нулевом порядке дифракции.)

3. Описание экспериментальной установки и результаты измерений

В экспериментах, результаты которых представлены ниже, использовался ХеСI-лазер со следующими параметрами: длиной волны излучения ~ 308 нм, длиной когерентности ~ 30 см, длительностью импульсов 10–15 нс, энергией импульса до 100 мДж и расходимостью, близкой к дифракционной.

Формирование рельефа на кварце проводилось с использованием полного цикла литографии. Маской служила двухслойная структура, состоящая из плёнки меди толщиной 50 нм и фоторезиста толщиной 400 нм. Рисунок маски формировался при облучении фоторезиста двумя пучками излучения ХеСI-лазера с плотностью энергии ~ 30 мДж/см². Для деления лазерного излучения на два пучка использовалось диэлектрическое зеркало с коэффициентом отражения $R \sim 50$ %, а для совмещения

Ю.К.Верёвкин, А.Ю.Климов, Б.А.Грибков, В.Н.Петряков, Е.В.Копосова. Институт прикладной физики РАН, Россия, 603950 Н.Новгород, ул. Ульянова, 46; e-mail: verevkin@appl.sci-nnov.ru
S.M.Olaizola. CEIT Centro de Estudios e Investigaciones Technical de Guipuzcoa, P^o. Manuel Lardizábal, 15, 20.018 Donostia-San Sebastian, Spain

Поступила в редакцию 21 августа 2007 г., после доработки – 1 апреля 2008 г.

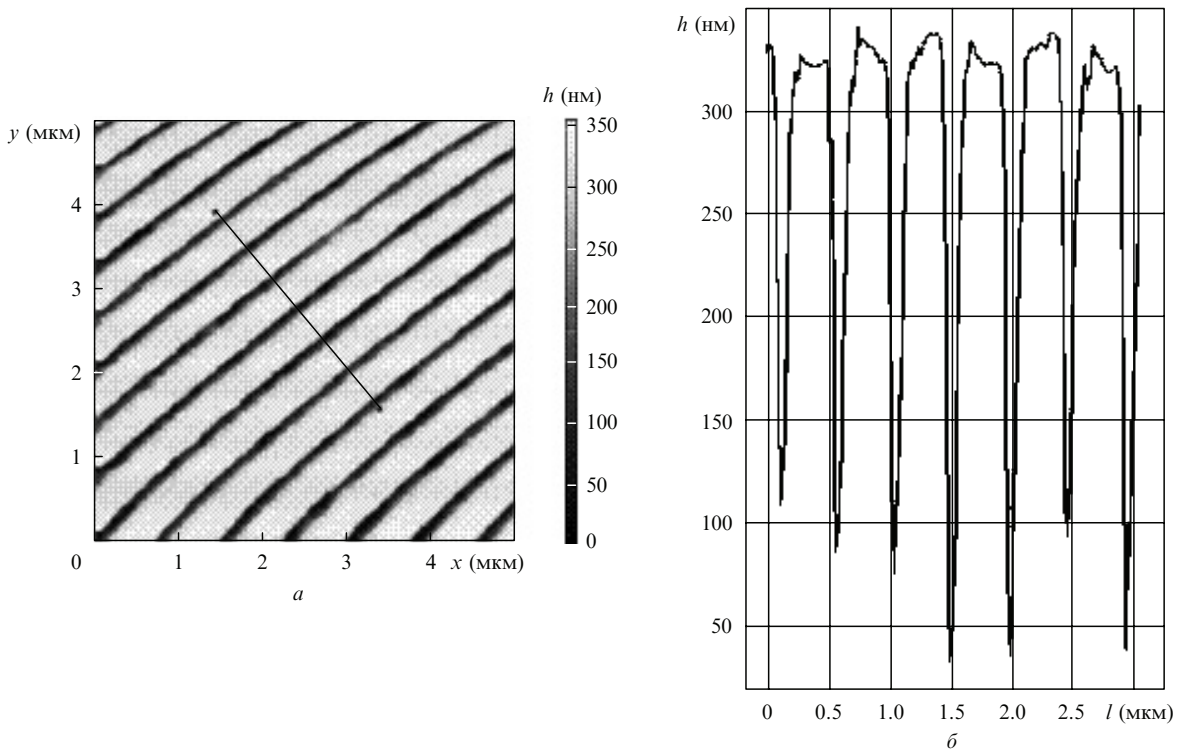


Рис.1. АСМ-изображение участка плавленого кварца (а) и его сечение (отмеченное линией на рис.1,а) (б) после окончания полного цикла литографического процесса; l – координата вдоль линии сечения.

этих пучков в плоскости фоторезиста применялась оптическая схема с тремя диэлектрическими зеркалами с $R \sim 99\%$. Проявление рисунка на фоторезисте проводилось водно-щелочным раствором, а травление меди – ионно-лучевым методом. Травление кварца осуществлялось методом ионно-лучевого реактивного травления в потоке газовой смеси CF_4-O_2 при скоростях травления 30 нм/мин. Скорости травления материалов маски в условиях травления кварца составили 30 нм/мин для фоторезиста и 3 нм/мин для меди. В результате были получены различные рельефы на кварце глубиной до 500 нм.

На рис.1 показаны полученные с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) изображение участка плавленого кварца и его сечение (отмеченное линией на рис.1,а) после окончания полного цикла литографического процесса. Из рис.1 можно оценить период рельефа d (460 нм) и его среднюю высоту h (280 нм). Здесь обращает на себя внимание тот факт, что минимумы и максимумы в рельефе имеют разные ширины. Эти параметры зависят от режимов проявления фоторезиста и травления металлической маски и кварца. Для того же образца были проведены измерения коэффициента пропускания в нулевом порядке дифракции с использованием спектрофотометра Spexord M40 (Carl Zeiss, Jena) и ХеСl-лазера. В обоих случаях диаметр пучка излучения составлял ~ 5 мм и применялась двухлучевая схема.

Результаты измерений показаны на рис.2. Кривая 2 соответствует коэффициенту пропускания пластины плавленого кварца, на одной стороне которой создан периодический рельеф (для образца, АСМ-изображение которого показано на рис.1). Крестиком отмечено значение коэффициента пропускания, измеренное с использованием излучения ХеСl-лазера. Минимальный коэффициент пропускания в нулевом порядке дифракции имеет место для $\lambda \sim 250$ нм, а антиотражающие свойства на-

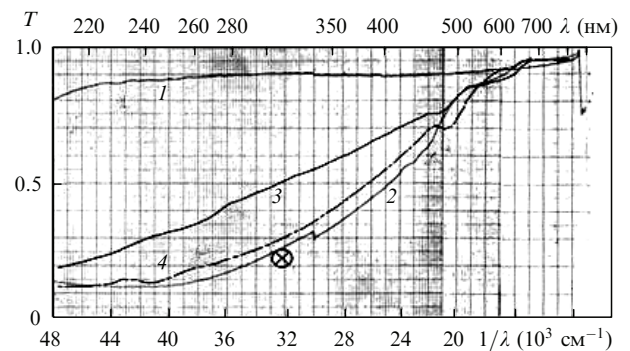


Рис.2. Измеренные спектры пропускания кварцевых пластин без периодического рельефа (1) и с периодическим рельефом на одной стороне пластин (2), а также теоретические спектры пропускания пластин плавленого кварца с одной гофрированной границей при $h = 280$ (3) и 390 нм (4). Крестиком отмечено значение коэффициента пропускания, измеренное с использованием излучения ХеСl-лазера.

блюдаются для излучения с $\lambda_a > 630$ нм. Отметим интересную особенность полученной структуры: одна и та же структура может использоваться как фазовая маска для $\lambda \sim 250$ нм и как антиотражающая структура для $\lambda_a > 630$ нм.

4. Расчёт характеристик дифрагировавших волн и сравнение их с результатами измерений

Зависимость пропускания гофрированной границы вакуум-плавленый кварц была рассчитана с помощью программы численного решения интегрального уравнения для дифракции плоской волны на гофрированной границе [11]. Расчёты выполнены для двух профилей рельефа – синусоидального и близкого к полученному

экспериментально, который аппроксимировался синусоидой с плоским максимумом. Для этих двух профилей на рис.3 представлены полутоновые диаграммы пропускания. Для большей наглядности диаграмм и удобства поиска на них экстремальных значений области вблизи максимального и минимального коэффициентов пропускания отмечены на диаграмме «обратным» цветом, т. е. вместо самого чёрного цвета – хорошо заметное на чёрном белое пятно (это максимум), а вместо самого белого – чёрное пятно (это минимум). Диаграммы построены для среднего коэффициента пропускания, полученного для излучения с *E*- и *H*-поляризациями (*E*-поляризация – электрическое поле *E* световой волны направлено вдоль штрихов рельефа, *H*-поляризация – магнитное поле *H* световой волны направлено вдоль штрихов рельефа). Показатель преломления плавленного кварца для расчётов брался равным 1.46 согласно справочным данным для используемого диапазона длин волн. Поглощение в среде в расчётах не учитывалось.

И в случае синусоидального рельефа, и в случае рельефа, близкого к полученному экспериментально, теоретический максимум коэффициента пропускания близок к единице для достаточно протяжённой области длинных волн (превышающих период *d*) волн и больших высот рельефа *h* (больше длины волны и половины периода). При этом существенной зависимости коэффициента пропускания от формы профиля нет. Минимум коэффициента пропускания для синусоидального рельефа снижается практически до нуля при $d/\lambda \sim 2.25$ и $\pi h/d \sim 2.21$, а для экспериментально полученного рельефа он смещён в сторону меньших d/λ , и его величина составляет не менее 13 %.

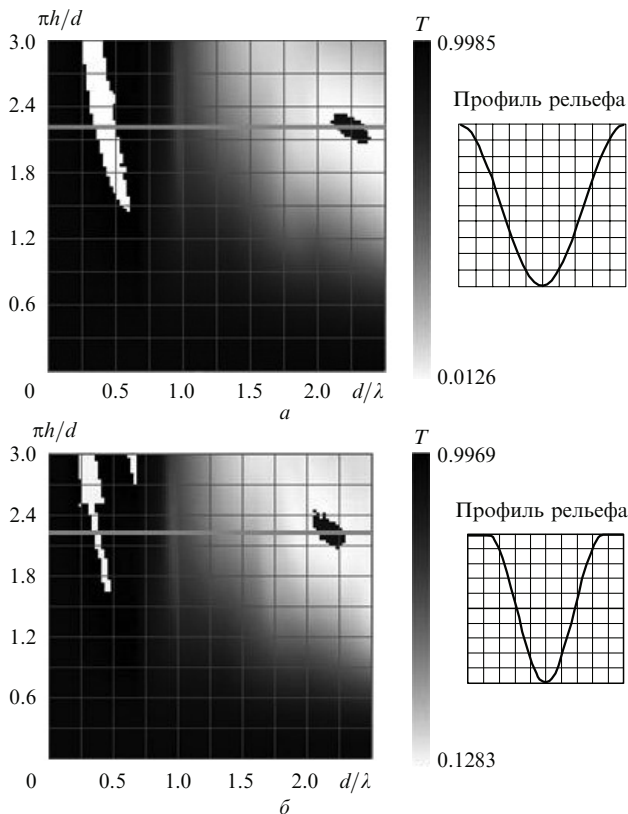


Рис.3. Теоретические полутоновые диаграммы коэффициента пропускания гофрированной поверхности вакуум – плавленный кварц для синусоидального (а) и близкого к полученному экспериментально (б) профилей поверхности. «Обратным» цветом указаны области, близкие к максимуму и минимуму коэффициента пропускания.

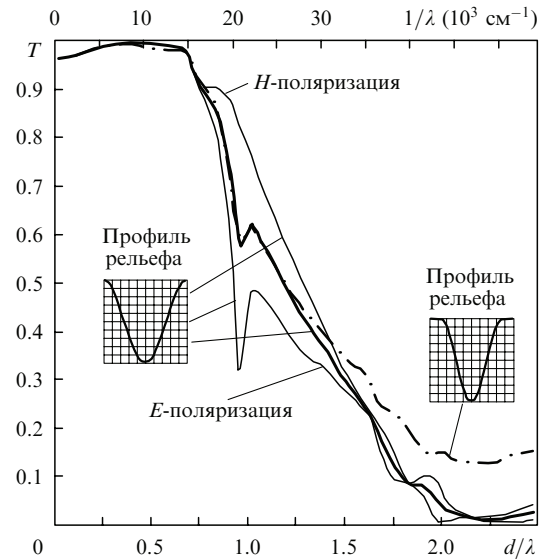


Рис.4. Расчётные зависимости коэффициента пропускания гофрированной границы вакуум – плавленный кварц от отношения периода к длине волны для высот рельефа, соответствующих минимуму коэффициента пропускания (в местах сечений диаграмм на рис.3, отмеченных серыми линиями), при синусоидальном и близком к полученному экспериментально профилях и разных поляризациях зондирующего излучения.

Для высот рельефа, соответствующих минимуму коэффициента пропускания (в местах сечений диаграмм на рис.3, отмеченных серыми линиями), на рис.4 приведены кривые, демонстрирующие зависимости коэффициента пропускания от параметра d/λ . Для реальной физической структуры, имеющей определённый период рельефа ($d = 460$ нм) и определённую высоту (отношение $\pi h/d \sim 2.21$ для указанного периода соответствует высоте $h \sim 323$ нм), эти кривые представляют собой зависимости коэффициента пропускания от обратной длины волны (или от волнового числа).

Сплошная жирная кривая построена для синусоидального рельефа, штрих-пунктирная жирная кривая – для рельефа, близкого к полученному экспериментально. Эти кривые представляют собой зависимости коэффициента пропускания, среднего из коэффициентов пропускания для *E*- и *H*-поляризаций, т. е. для неполяризованного излучения (которое обычно используется в спектрофотометрах). Тонкие кривые – зависимости для *E*- и *H*-поляризаций, построенные для синусоидального рельефа. Различие в поведении этих кривых существенно вблизи длины волны λ_1^* , равной периоду *d*. Эта длина волны является граничной (максимальной) длиной волны области существования первого дифракционного пучка в вакууме (в теории полагалось, что внешняя среда имеет показатель преломления $n = 1$). Для *E*-поляризации вблизи λ_1^* имеется характерный узкий провал, для *H*-поляризации – пологий выступ. Следует отметить, что усреднённая (сплошная жирная) кривая также обладает характерным (хотя и более сглаженным) провалом вблизи λ_1^* .

Существует ещё одна важная для анализа экспериментальных данных точка. Это точка резкого излома кривых в длинноволновой области при $\lambda_2^* = dn$. Длина волны λ_2^* является граничной (максимальной) длиной волны области существования первого дифракционного порядка в среде. Вблизи λ_2^* поведение всех кривых на

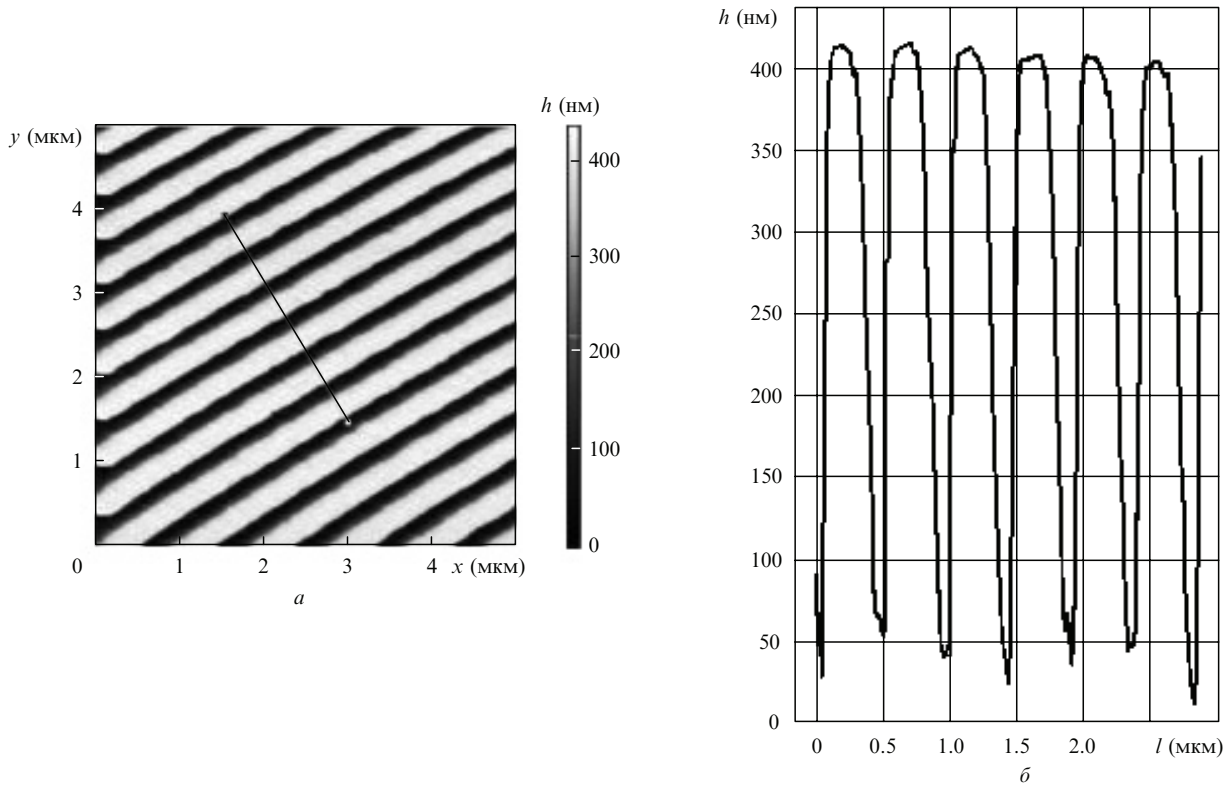


Рис.5. АСМ-изображение участка поверхности монокристалла кремния (а) и его сечение (отмеченное линией на рис.5,а) после окончания полного цикла литографического процесса; l – координата вдоль линии сечения.

рис.4 идентично и не зависит от формы рельефа и поляризации. При переходе из длинноволновой области, где коэффициент пропускания близок к единице, в более коротковолновую наблюдается резкое уменьшение коэффициента пропускания. По положению этой точки можно определить реальный показатель преломления используемого в эксперименте образца, если период структуры известен достаточно точно.

На рис.2 показаны результаты расчётов (кривые 3 и 4) спектров пропускания пластины плавленого кварца с одной гофрированной границей. Они получены путём решения интегрального уравнения для одной гофрированной границы с учётом дополнительного отражения от плоской границы. В расчёте использовался профиль, близкий к экспериментально измеренному (рис.1). Показатель преломления $n = 1.46$ был определён из анализа соответствующей экспериментальной кривой, приведённой на рис.2, с учётом условий $\lambda_2^* = dn \sim 650$ нм и $d = 460$ нм. Поведение этой кривой свидетельствует о преобладании излучения с H -поляризацией ввиду невыраженности узкого провала в точке $\lambda = d$, характерного для спектров пропускания для E -поляризованного и неполяризованного излучений. Более тщательные оценки дали предполагаемое соотношение долей E - и H -поляризаций в излучении 1 : 4. Кривые построены для двух высот рельефа – $h = 280$ и 390 нм. Кривая 3 совпадает с экспериментальной кривой 2 только в длинноволновой и переходной областях, а для более коротких волн идёт выше её. Кривая 4 лучше совпадает с экспериментальной в коротковолновой области и хуже – на переходе от длинноволновой области к коротковолновой. Такое частичное совпадение говорит о грубости модели профиля рельефа, взятого для расчётов, а также о влиянии разброса высот и форм реально изготовленной структуры.

5. Периодические структуры на кремнии и результаты измерения их характеристик

При реализации оптических устройств для ИК диапазона перспективно использование кремния. Достаточно широкие возможности связаны с применением периодического наноразмерного рельефа на его поверхности [12 – 14], который используется для создания фотонных кристаллов, мультиплексеров и антиотражающих структур. Вариант реализации антиотражающей структуры описан ниже.

На рис.5 приведено АСМ-изображение участков поверхности монокристаллов кремния с периодическим рельефом. Эта структура с характерным диаметром свыше 6 мкм была создана с использованием методов, описанных выше для кварца. Из рис.5,б видно, что период рельефа составляет 460–480 нм, а глубина изменяется в пределах 350–370 нм. Исходя из оценок, сделанных выше, можно ожидать, что такая структура будет проявлять антиотражающие свойства для излучения с $\lambda > 1.5$ мкм.

На рис.6 показаны результаты измерения коэффициента пропускания пластины кремния в ИК диапазоне на спектрофотометре СФ-20 (ЛОМО), а также теоретические кривые, полученные путём решения интегрального уравнения с последующим учётом пропускания на плоской границе. Пластины различались толщиной и высотой рельефа. На кривую 1 нанесены метки длин волн с интервалом 10 нм. Кривые 2–4 демонстрируют существенное увеличение коэффициента пропускания пластины с рельефом для $\lambda > 1.5$ мкм, что хорошо согласуется с простыми оценками. Более детальный анализ экспериментальных кривых позволяет определить длину волны $\lambda_2^* = dn (\sim 1.530$ мкм), что с учётом оценок периода из

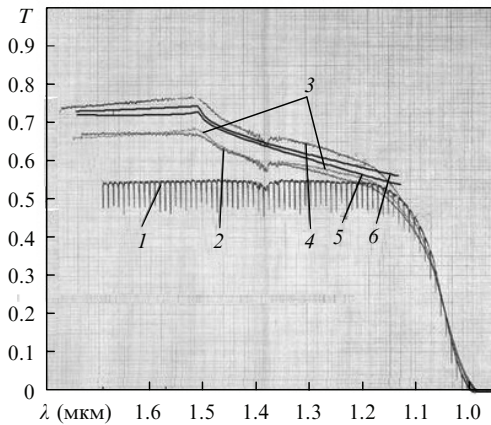


Рис.6. Спектры пропускания пластин кремния, измеренные для плоскопараллельной пластины (1) и пластин с периодическим рельефом на одной поверхности (2–4), а также рассчитанные для синусоидального рельефа с $h = 350$ (5) и 400 нм (6).

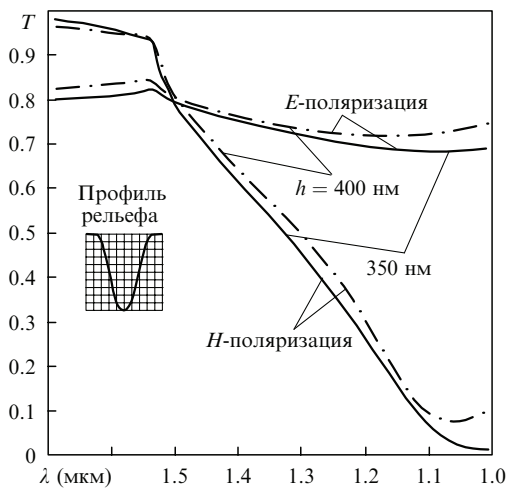


Рис.7. Рассчитанные спектры пропускания гофрированной поверхности на кремнии с профилем рельефа, близким к представленному на рис.5, для разных высот рельефа и поляризаций излучения.

рис.5 ($d = 466$ нм) даёт возможность судить о показателе преломления используемого образца: $n \approx 3.28$. Кривые 5 и 6 теоретически рассчитаны для этого показателя преломления и рельефа, близкого к представленному на рис.5. Период этого рельефа описывался синусоидой с плоским максимумом шириной в $1/5$ периода. Расчёт проводился для двух глубин – 350 и 400 нм. Поляризация зондирующего излучения в эксперименте не была известна и подбиралась для теоретических расчётов по достижению максимального совпадения углов наклона теоретических и экспериментальных кривых.

Из проведённого исследования можно сделать вывод о существенном преобладании E -поляризации в зондирующем излучении (соотношение долей E - и H -поляризаций 5 : 1). Возможность и разумность такого подбора следует из качественно различного поведения кривых, рассчитанных отдельно для каждой поляризации, что

продемонстрировано на рис.7. Различие между кривыми для разных поляризаций существенно больше, чем между кривыми для разных высот рельефа в исследуемом диапазоне высот. Отличие экспериментального коэффициента пропускания от теоретического (в идеальном случае 100 %) связано с тем, что вторая поверхность кремния не имела рельефа. В расчётах не учитывалось поглощение в кремнии, поскольку антиотражающие структуры в основном представляют интерес в диапазоне его прозрачности.

Теоретические кривые на рис.6 построены только для длин волн $\lambda > 1.15$ мкм, для которых экспериментально измеренный коэффициент пропускания плоскопараллельной пластины постояен. Отметим, что подобные антиотражающие структуры могут найти применение в солнечных элементах [15] и при создании периодически расположенных островков германия на кремнии [16, 17].

6. Заключение

Таким образом, используя импульсную интерференционную литографию, мы разработали технологию создания субмикронных рельефов для реализации фазовых масок и антиотражающих структур. Сравнение результатов измерений и расчётов однозначно показало возможное направление оптимизации таких структур.

Настоящая работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта Комиссии европейского сообщества «Development of Lithography Technology for Nanoscale Structuring of Materials Using Laser Beam Interference» ЕС FP-6 IST-4 No.027976 и программы «Нелинейная оптика уникальных лазерных систем» Отделения физических наук РАН.

1. Dragomir N.M., Rollinson C., Wade S.A. *Opt. Lett.*, **28** (10), 789 (2003).
2. Park D., Kim M. *Opt. Lett.*, **29** (16), 1849 (2004).
3. Haro-Poniatowski E., Fort E., Lacharme J.P., Ricolleau C. *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 143103 (2005).
4. Guo L.J. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37**, R123 (2004).
5. Pisignano D., Maruccio G., Mele E. *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 123109 (2005).
6. Heon Lee, Hong S., Yang K. *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 143112 (2006).
7. Kanamori Y., Sasaki M., Hane K. *Opt. Lett.*, **24** (20), 1422 (1999).
8. Kintaka K., Nishii J., Mazutani A., Kikuta H., Nakano H. *Opt. Lett.*, **26** (21), 1642 (2001).
9. Rastei M.V., Meckenstock R., Bucher J.P., Devaux E., Ebbesen Th. *Appl. Phys. Lett.*, **85** (11), 2050 (2004).
10. Kim D. *Appl. Opt.*, **44** (16), 3213 (2005).
11. Власов С.Н., Копосова Е.В. *Изв. вузов. Сер. Радиофизика*, **46** (5-6), 482 (2003).
12. Brundrett D., Gaylord T., Glytsis E. *Appl. Opt.*, **37** (13), 2534 (1998).
13. Xu Y., Sun H., Ye J., Matssuo S., Misawa H. *J. Opt. Soc. Am. B*, **18** (8), 1084 (2001).
14. Wang S., Zhou C., Zhang Y., Ru H. *Appl. Opt.*, **45** (12), 2567 (2006).
15. Zeng L., Hong Y., Liu J., Feng N., Duan X., Kimerling L., Alamaru B. *Appl. Phys. Lett.*, **89**, 111111 (2006).
16. Guise P., Yates J., Levy J., Ahner J., Vaithynathan V., Schlom D. *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 171902 (2005).
17. Zhong Z., Katsaros G., Stoffel M., Costantini G., Kern K., Schidt G., Jin-Phillipp N., Bauer G. *Appl. Phys. Lett.*, **87**, 263102 (2005).