

フォーカス 26 <第3 2回> :成果事例クローズアップ(北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク)
ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術による 3 次元光重合体の作製に関する研究

株式会社オプトメイト 堀田祐治
 北海道大学電子科学研究所 上野貢生, 三澤弘明



(左から) 株式会社オプトメイト 堀田祐治, 北海道大学電子科学研究所 上野貢生, 三澤弘明

1. 概要

有機 LED (OLED) デバイスは、発光した光がガラス/空気界面において全反射するなどの理由により、光の取り出し効率が低下してしまう欠点を有する。通常の OLED デバイスにおいては、発光した光の 30% 程度の光しか外部に取り出せていないことがシミュレーションによる数値解析から示されてきた [1]。したがって、現在はデバイス表面にマイクロレンズアレイを有するアウトカップリングフィルムを密着させ、光取り出し効率を向上させる方法論が重要視されている。そのような背景の中、株式会社オプトメイトでは、有機 EL 照明アウトカップリングフィルムの開発・生産を手掛けている。一方、北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワークでは、マスクレスリソグラフィ技術による 3 次元マイクロパターンや 2 次元ナノパターンの加工支援を行っており、マイクロレンズアレイやプラズモン共鳴を示す金属ナノパターンなどを作製してきた [2][3]。レンズ表面にナノ構造を有する場合、レンズ/空気界面における屈折率変化の勾配が小さくなるために、光取り出し効率が向上することが知られている。そこで、株式会社オプトメイトと北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワー

クでは共同でマスクレスリソグラフィ技術により、表面にナノ構造を有するマイクロレンズアレイを試作し、高い光取り出し効率を有するアウトカップリングフィルムを作製するための金型 (テンプレート) を作製する方法論を確立することを目的として研究を推進した。

2. はじめに

半導体リソグラフィにおけるコア技術は、マスクパターンを通して半導体基板上に塗布されたフォトリソ材料に光化学反応を誘起し、レジストの微細パターンを形成することであり、光化学が創出した重要な応用技術の一つである。近年、加工技術の向上や、構造の多様化により、光リソグラフィにおける階調露光の重要性は増している。しかし、階調露光に用いるグレースケールマスクは量産段階での利用を目的として製造されており、高額であるためデバイスの開発段階におけるテストには利用しづらい。そこで近年、次世代のマスクレスリソグラフィ技術開発における研究が注目されている。

北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワークでは、反射型ディスプレイ素子であるデジタルミラーデバイス (DMD, テキサスインスツルメンツ (株)) を用いてマスクレスリソグラフィ技術による 3 次元光重合反応を目的とした研究を行っている。DMD とは一辺 13.68 μm の微小鏡面を 1024 \times 768 個格子状に配列したもので、個々のミラーをデジタル制御することにより、単位ミラーごとに照射された光エネルギーの蓄積に差を生じさせることのできる光学素子である。これは、グレースケールマスクが機能するための条件を成しており、応

* 問い合わせ：
 北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク
 北海道大学
 〒 001-0021 札幌市北区北 21 条西 10 丁目
 北海道大学 創成科学研究棟内 ナノテク支援室 (03-305)
 電話：011-706-9340
 E-mail：hints@es.hokudai.ac.jp

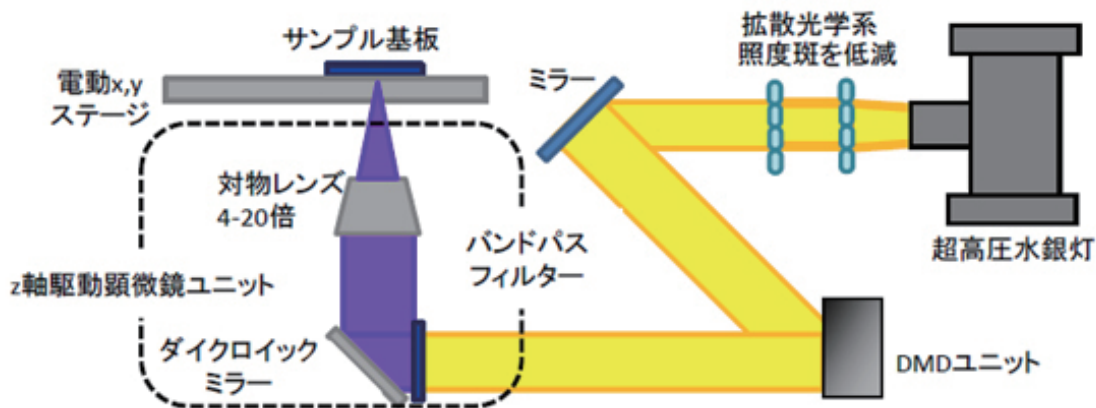


図1 ダイナミックマスクレスリソグラフィシステムの略図

用が期待されている。一方、デジタルミラーデバイスを用いたマスクレスリソグラフィ技術により形成したマイクロレンズアレイ上に、2次元ナノパターンを形成するために、He-Cd レーザー（波長：325nm）を励起光源としたレーザー干渉露光法を用いた。

3. ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術の構築

構築したダイナミックマスクレスリソグラフィシステムの略図を図1に示す。水銀ランプからの光を擬似平行光としてDMDへ入射し、DMDからの反射光を、対物レンズ（ $\times 20$, $NA=0.40$ ）を通してフォトリソ基板に照射した。DMDで形成した任意の光パターンをシリコン基板、またはガラス基板上に成膜した厚さ7～18 μm のポジ型フォトリソ（AZ P4620, AZ Electronic Materials）へ転写露光し、基板を任意の時間専用現像液に浸漬させることによりレジストの微細パターンを形成した。一度の露光で得られるパターンの面積は限られており、電動ステージ・シャッター、オートフォーカスを組み込み、それらを同時に制御することで大面積（約 2cm^2 ）にパターン形成を出来るようにした。なお、サンプルの移動は10nmの分解能で制御可能なx, y電動ステージを用い、z軸駆動顕微鏡ユニットを用いてオートフォーカスを実行した。DMDミラー、ステージおよびオートフォーカスの制御は、コンピューターによりプログラム制御を行った。

形成したフォトリソのマイクロパターンは、走査型電子顕微鏡（SEM）、または光学顕微鏡により観察を行った。DMDパターンを16階調で動的に変化させ、露光を1秒間行った。専用の現像液により現像プロセスを行い、形成されたパターンを走査型電子顕微鏡により観察した（図2（a）参照）。作製したレジストパターンを鋳型にし、PDMS（ポリジメチルシロキサン）を用いて反転構造を形成し、ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術により形成されたフォトリソパターンの形状を確認した（図

2（b）の電子顕微鏡写真参照）。本結果から、DMDのパターンを動的に変化させ、光照射量を制御することにより、3次元パターンであるレンズ形状を形成することが可能であることが明らかになった。また、図2（c）に、電動ステージ、シャッター、オートフォーカスを組み合わせてつなぎ合わせ露光を行った結果を示す。つなぎ精度は高く、 2cm^2 にマイクロレンズアレイ構造を隙間なく高密度に形成することが可能であることを明らかにした。

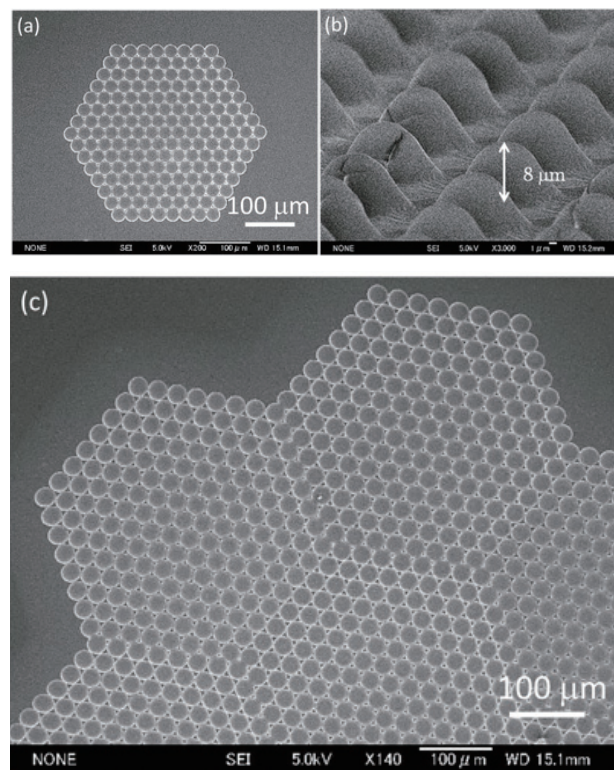


図2 (a) ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術により形成されたフォトリソパターンの電子顕微鏡写真、(b) 作製したフォトリソパターンを鋳型にして形成したPDMS反転構造の電子顕微鏡写真、(c) つなぎ合わせ露光により形成したフォトリソパターンの電子顕微鏡写真

4. レーザー干渉露光法による2次元周期構造の作製

マイクロレンズアレイ構造の表面に2次元ナノ周期パターンを形成するために、波長325nmのHe-Cdレーザーを用いたレーザー干渉露光システムを構築した。図3(a)に露光システムの略図を示す。2光束レーザー干渉露光法は、2本のレーザービームの位相条件・光路長をマッチングさせ、重ね合わせた際に発生する周期的光強度分布(干渉パターン)を、フォトレジスト基板に転写する光リソグラフィ技術の1つである[4]。本研究では、1回目の露光の後に基板を回転させ2回目の露光を行い、基板上に2次元のフォトレジストパターンを露光した。この時の回転角度・露光時間によって、異なるパターンの露光が可能である。2光束レーザー干渉露光法によって形成される干渉パターンの周期は、計算により見積もることが可能である。干渉パターンの周期は2光束の干渉角度とレーザー波長に依存し、本研究で使用したレーザーの波長が325nmであるため、理論上の最小周期が約160nmとなる。実際の加工分解能はフォトレジストの分解能や露光後の工程によって変わる。電子線リソグラフィと大きく違う点の一つに、フォトレジスト基板に成膜する反射防止膜の存在が挙げられる。レーザー干渉露光法では、基板表面にコートし基板表面からの反射を防ぐBottom Anti Reflection Coat (BARC)と、フォトレジスト表面にコートしフォトレジスト表面からの反射を防ぐTop Anti Reflection Coat (TARC)の2層の反射防止膜を使用する。これにより、反射光による干渉パターンの乱れを軽減することが可能となる。

均一なフォトレジストパターンの作製には、均一なビームプロファイルとノイズの除去が必要となる。本研究で使用した波長325nmのHe-Cdレーザー(金門光波IK3501R-G)のビームプロファイルは、ガウシアンビームであるため、レーザー光強度の勾配が生じ、中心部と端部でレジストパターンの形状が異なってしまう。この問題を解決するため、出力時1.12mmΦのレーザー径を33.6mmΦに拡大し、スペシャルフィルターによってビームのフラットトップのみを抽出することにより、ビームプロファイルを改善した。これによってレーザー中心部と端部での強度分布が均一になり、フォトレジストパターンの形状の差異を最小限に抑えることが可能になった。露光時間・干渉角度・基板回転角度を変えることで、周期の異なる円形・楕円形のホールパターン・ピラーパターンの作製が可能である。1回目の露光で基板表面に露光が達する条件で露光を行うとピラーパターンとなり、2回目の露光で基板表面に露光が達する条件で露光を行うとホールパターンとなる。基板回転角度を90°ではなく60°や40°にした場合、楕円形のパターンの露光が可能となる。図3(b)に2光束レーザー干渉露光法により形成したフォトレジストのラインアンドスペースパターンの電子顕微鏡写真、図3(c)に2光束干渉露光後にフォトレジスト基板を90°回転させて再度露光を行い、現像したフォトレジストパターンの電子顕微鏡写真を示す。いずれの条件においても、170~200nm程度の構造周期を有する1次元、または2次元ナノパターンが形成されることが分かった。しかも、構造の均一性は高く、1cmΦに周期構造を作製し、構造サイズのばらつきを求めたところ、標準偏差で約7nmであった。超高精度電子ビーム

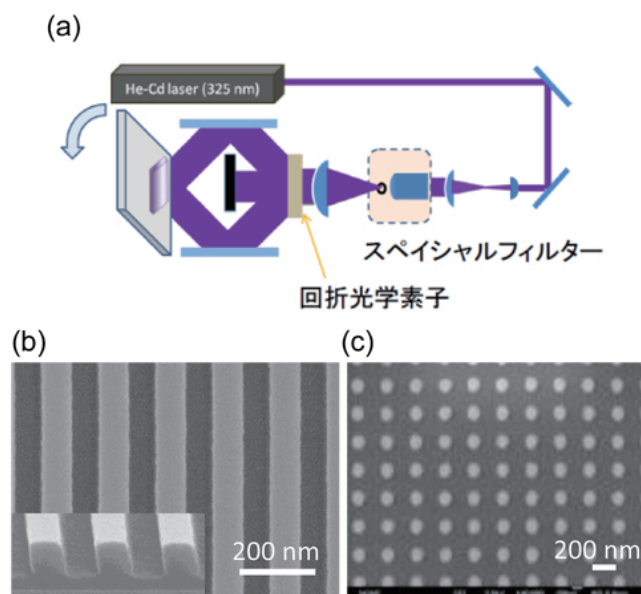


図3 (a) 構築した2光束レーザー干渉露光システムの略図,
(b) 2光束レーザー干渉露光法により形成したフォトレジストのラインアンドスペースパターンの電子顕微鏡写真,
(c) 2光束干渉露光後にフォトレジスト基板を90°回転させて再度露光を行い、現像したフォトレジストパターンの電子顕微鏡写真

露光装置によって形成されるパターンのサイズのばらつきは約 3nm であることから、電子ビーム露光に比べると若干の分解能の低下はあるものの、わずか数分の露光時間で最大で 2cm Φ の領域にナノパターンを形成することが可能であることを明らかにした。

図 4 (a) にダイナミックマスクレスリソグラフィ技術のみにより作製したマイクロレンズアレイの電子顕微鏡写真、図 4 (b) にレーザー干渉露光法と併用することにより表面にナノパターンを形成したマイクロレンズアレイの電子顕微鏡写真、および図 4 (c) に形成されたポジ型フォトレジストパターンのレーザー顕微鏡写真とそのプロファイル解析結果を示す。図 4 (b) から、ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術により形成された 3 次元周期構造体表面に 170nm の構造周期を有する 2 次元ナノパターンが規則正しく配列していることがわかる。また、レーザー顕微鏡による解析から、図 4 (c) に示すように高い密度でマイクロレンズアレイが形成されていること、そしてその表面にナノパターンが形成されている（プロファイル観察による凹凸構造の確認）ことが確認された。

5. おわりに

本稿では、デジタルミラーデバイスによるダイナミックマスクレスリソグラフィ技術とレーザー干渉露光法を組み合わせる方法を用いたナノ複合マイクロレンズアレイ構造体の作製について述べた。光リソグラフィ技術を用いて複雑な構造体を作製するためには、フォトリソグラフィ技術を用いないマスクレスリソグラフィ技術が有用であることが示された。ナノ構造複合マイクロレンズアレイフィルムの簡便な作製方法の確立は、OLED 用のアウトカップリングフィルムにも応用が期待される。

謝辞

本稿で紹介した研究成果は、北海道大学電子科学研究所 村澤尚樹助教、西島喜明博士、高畠聡章氏、荒木剛氏、椎谷由紀子氏等の協力のもとに得られたものであり、ここに感謝の意を表す。また、ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術は日東電工株式会社 日野敦司氏、レー

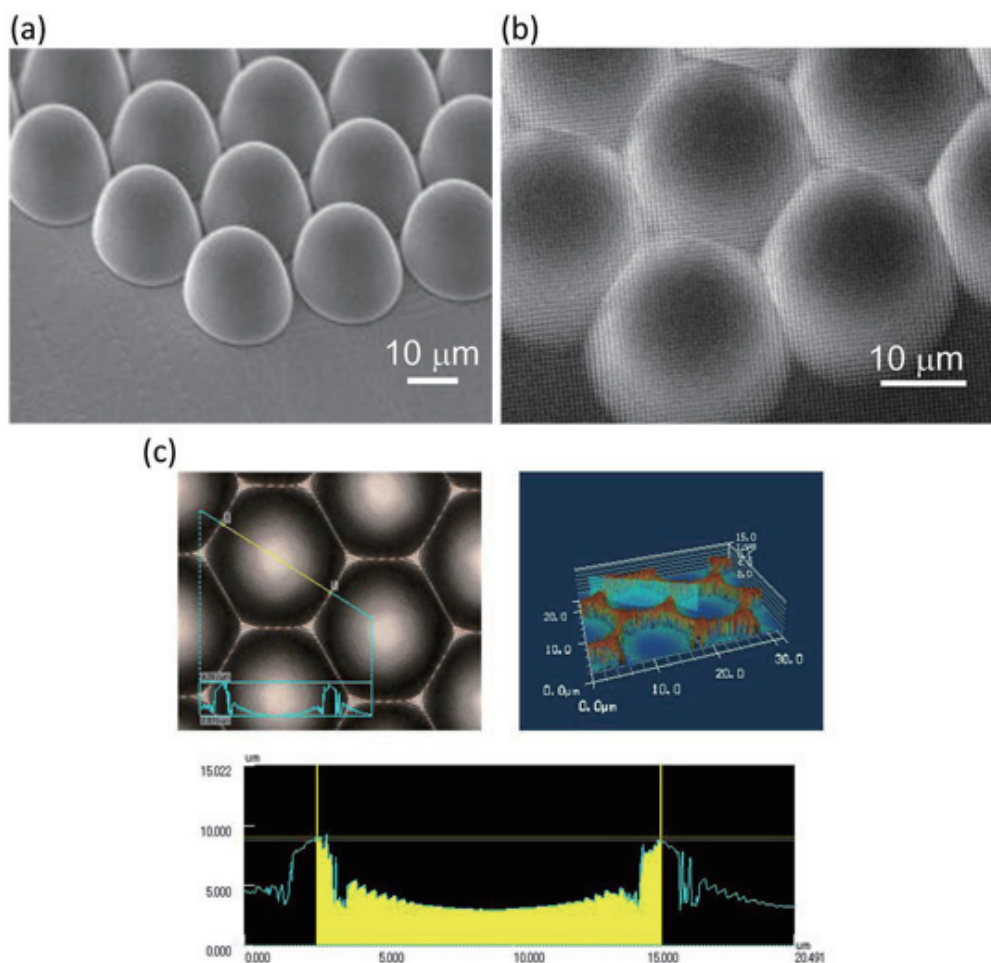


図 4 (a) ダイナミックマスクレスリソグラフィ技術のみにより作製したマイクロレンズアレイの電子顕微鏡写真、
 (b) レーザー干渉露光法と併用したリソグラフィ技術により形成したマイクロレンズアレイの電子顕微鏡写真、
 (c) 形成されたポジ型フォトレジストパターンのレーザー顕微鏡写真とそのプロファイル解析結果

ザー干渉露光システムは北海道大学電子科学研究所 西井準治教授，笠晴也氏のアドバイス・指導のもと構築したものであり，感謝の意を表す．本研究は，文部科学省先端研究施設共用イノベーション創出事業による委託業務として，国立大学法人北海道大学が実施した平成 20 年度「北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク」，および平成 21 年度省エネルギー革新技術開発事業「有機 EL 照明用高効率アウトカップリングフィルムの研究開発」(NEDO) によって得られた研究成果である．また，本研究の一部は，文部科学省科学研究費補助金・特定領域研究「光一分子強結合反応場の創成 (領域番号 470)」No.19049001 の助成を受け，推進されたものである．

参考文献

- [1] B. C. Krummacher, S. Nowy, J. Frischeisen, M. Klein, W. Brütting, *Organic Electronics* 10, 478-485 (2009).
- [2] K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, K. Sasaki, H. Misawa, *J. Am. Chem. Soc.* 128, 14226 (2006).
- [3] K. Ueno, S. Juodkazis, T. Shibuya, Y. Yokota, V. Mizeikis, K. Sasaki, H. Misawa, *J. Am. Chem. Soc.* 130, 6928 (2008).
- [4] Y. Yokota, K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, N. Murazawa, H. Misawa, H. Kasa, K. Kintaka, J. Nishii, *J. Photochem. Photobio. A; Chem* 207, 126-134 (2009).

(北海道大学電子科学研究所 上野貢生)