

A Super-Resolution Fabrication Technique Based on Photochromic Material

Qinggele Li^{1*}, Su Lv¹, Xiao Wu²

¹Skyverse Technology, Shenzhen Guangdong

²College of Science and Technology, Zhejiang International Studies University, Hangzhou Zhejiang

Email: gele@skyverse.cn

Received: May 13th, 2018; accepted: May 31st, 2018; published: Jun. 7th, 2018

Abstract

In this work, we present a new technique for super-resolution nano-fabrication technique based on optical property of photochromic material. This work has been greatly simplified the traditional complex optical lithography process. The numerical calculation shows that the writing beam has only 87 nm size in photoresist (nano-pointer) after being modulated by 0.1 μm thickness with 60 nm diameter of photochromic thin layer.

Keywords

Super-Resolution, Nano-Fabrication, Optical Lithography

一种基于光致变色材料的超分辨加工技术

李青格乐^{1*}, 吕肃¹, 吴晓²

¹深圳中科飞测科技有限公司, 广东 深圳

²浙江外国语学院科学技术学院, 浙江 杭州

Email: gele@skyverse.cn

收稿日期: 2018年5月13日; 录用日期: 2018年5月31日; 发布日期: 2018年6月7日

摘要

本文提出了一种新的基于材料光致变色特性来制造超高分辨率纳米结构技术。这种方法可以大大简化目前复杂的超高分辨率加工配置。同时, 通过理论模拟圆环光束的大小对聚焦区域光强分布的影响, 发现当环状聚焦光大小为60 nm, 光致变色层厚度为0.1 μm 时可以实现87 nm的“纳米刻针”系统。

*通讯作者。

关键词

超分辨, 纳米加工, 光刻技术

Copyright © 2018 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 背景介绍

近些年来, 纳米级设备的应用被广泛的报道, 例如: 负性反射率的人造超材料[1], 光子结构控制光流[2] (即光子晶体, 波导), 以及大容量的光学数据存储设备[3]。微小的纳米结构可以通过电子束光刻来实现。然而, 其实验过程相当复杂, 而且实验设备非常昂贵。利用光学显微镜在光敏材料上进行加工相比较而言比较便宜而且方便。但是, 由于光的衍射特性, 能够被加工的最小尺寸, 通常限制在所用光的波长的一半。几种有效的方法被提了出来以提高光学光刻加工的分辨率。Min Gu 等利用径向偏振光束采用双光子吸收机制制作了一种高密度的磁盘(高达 3 TB) [4]。Scott 等人利用光敏材料的光引发以及光抑制特性制作了一种次衍射结构(100 nm) [5]。类似于 STED 显微镜, 在这种方法中, 写入光束被紧紧地聚焦在光敏材料上, 随后引入第二光束来抑制抗蚀剂的聚合, 这道光束在聚焦区域具有环状分布的。由于受到抑制, 位于环状中心的光敏材料得以聚合。Min Gu 等利用高感光性的树脂的快速固化特性进一步改进了这一方法[6]。

此外, 吸光度调制光学光刻(AMOL) [7] [8] [9]也是一个有效的光学制造方法。这种方法是基于光致变色材料的光学性能。本论文里面, 主要通过环形光调制光致变色材料的吸收光谱来实现间接调制激光直写光源来达到超分辨率纳米探针的效果。文章结构安排如下, 在第一段介绍激光制造领域的现状。第二段里面主要介绍光致变色材料光学特性以及获得超分辨激光纳米探针的方法。第三段主要介绍理论模拟方法以及实现 87 nm 光学探针的系统要求。我们的结果在最后段里面得到总结。

2. 光致变色材料光学属性及 ASML 光学系统

如图 1(a)所示, 光致变色材料有两种吸收状态 A 和 B。光 λ_2 在状态 A 被强烈地吸收, 然而在状态 B 几乎不被吸收。当光致变色材料被光 λ_1 照射时, 其对光致变色层的吸收状态从状态 A 转变到了状态 B, 当被光 λ_2 照射时, 其又将从状态 B 转换回它的初始状态 A。

AMOL 的示意图如图 1(b)所示, 它由两个光源组成。一个是写入光束, 写入光束在聚焦区域引起了 Airy 斑(图 2(a)中的蓝色曲线)。另一个是“擦除”光束 λ_2 , 擦除光束在聚焦区域呈现环形分布(图 2(a)中的绿色曲线)。我们在目标样品上涂了一层光致变色材料(即光致抗蚀剂)。

聚焦区域的细节如图 2(b)所示。由于呈现环状分布的光束 λ_2 的存在, 在聚焦区域的光致变色层的吸收特性呈现不均匀分布。被光束 λ_2 照射的区域, 有对写入光束 λ_1 有很强的吸收, 而位于环状中心的区域几乎不吸收写入光束 λ_1 。由于吸收层的缘故, 聚集区域的光场分布被有效地调制。有几个因素会影响到聚焦区域的特性: 环状区域的直径大小(ϕ), 光致变色层的厚度(t), 吸收系数 σ_A , 这里, 我们假设 $\sigma_B = 0$ 。

3. 理论模拟光在 ASML 系统中的强度分布

据我们所知, 关于材料吸收特性的矢量 Debye 理论尚有待研究。在这里, 我们利用矢量 Debye 理论

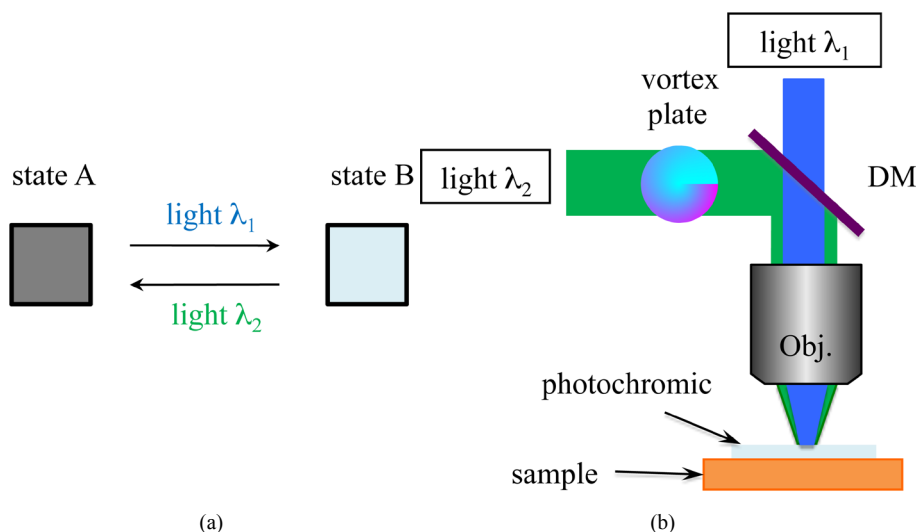


Figure 1. (a) Illustration of the transition of the absorption states of photochromic material. The photochromic material at state A, it possesses a strong absorption at λ_1 while at state B, it is transparent at λ_1 ; (b) Schematic drawing of the concept of AMOL for super-resolution fabrication. A thin photochromic layer is deposited on the target sample. Beam 1 (λ_1), which possesses an Airy spot shape in focal region, is the writing beam. Beam 2, which induces a doughnut spot in the focal region, is the “erasing” beam. DM: dichroic mirror

图 1. (a) 光致变色材料光学特性示意图。此材料在状态 A 情况下对于光 λ_1 有着很强的吸收，在状态 B 下对于光 λ_1 透明；(b) 超高分辨率 AMOL 加工技术示意图。很薄的光致变色材料镀在被加工的光敏材料上。激光直写光 λ_1 聚焦在物体上形成 Airy 斑。光 λ_2 ，也叫“擦除斑”，经过 vortex 盘照射在物体上，行程环形光斑。DM：分色镜

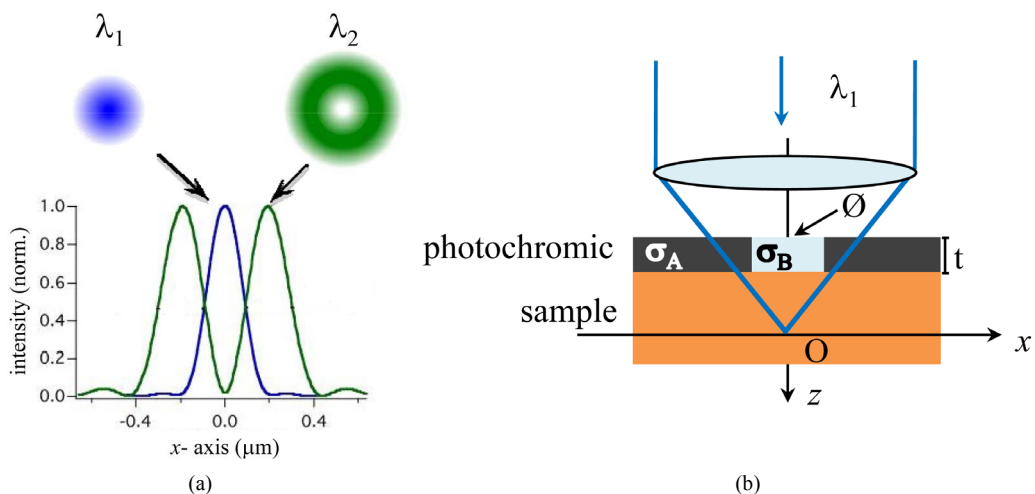


Figure 2. (a) Numerical calculation of intensity distributions along transversal direction in the focal region of light beam 1 (λ_1 , blue curve) and light beam 2 (λ_2 , green curve); (b) Propagation of light beam 1 (λ_1) through the photochromic layer. The absorbance of photochromic layer is modulated according to the doughnut focusing spot of light beam λ_2 . σ_A , σ_B represent the absorption coefficients of state A, B at wavelength λ_1 , respectively t : thickness of photochromic layer. ϕ : diameter of the area, where the photochromic layer is transparent ($\sigma_B \approx 0$) to the light beam 1 (λ_1)

Figure 2. (a) 两种激光在物镜交面上的电磁场强度分布。 λ_1 为蓝线， λ_2 为绿线；(b) λ_1 通过光致变色层的传播情况。由于环形光的原因，光致变色材料被 λ_2 照射过的地方对于 λ_1 光的吸收系数改变为 σ_A ，而中间部分 ϕ 对于 λ_1 光吸收系数 σ_B ，几乎为零。光致变色材料厚度为 t

首次提出数值计算结果。具体的数学公式的推导将已在论文[11]中讨论过。在这一部分，我们主要是关于这些因素的理论研究。我们的目标是生成小尺寸但是具有合适的强度的纳米级刻针来用于超高分辨率的光学制造。

在数值计算中，我们假设光致变色层与光致抗蚀剂交界处没有反射。在低吸收率的情况下， $\sigma_A = 1 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$ ，在聚焦区域的光强分布是关于光致变色层厚度(t)的函数，如图 3 所示。图中白线的内部区域表示光致变色材料处于状态 A。符号“Ref”表示在没有吸收层条件下的光强分布。数值参数：NA = 0.6, $n = 1$ ，圆环直径 $\phi = 200 \text{ nm}$ ， $\lambda_1 = 532 \text{ nm}$ 。显然，当光致变色层的厚度从 0 增加到 $1 \mu\text{m}$ 时，聚焦区域的场分布被有效调制。EM 场沿光轴方向衰减剧烈，径向方向衰减也很明显。然而，由于吸收系数 σ_A 不够高，圆环直径较大($\phi = 200 \text{ nm}$)，在径向方向的限制没有很好的增强。在理想情况下，目标位置上的聚焦光斑的尺寸应该是在 230 nm ($t = 0.9 \mu\text{m}$)。

图 4 显示了具有高吸收的($\sigma_A (6.8 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})])$)以及小的环状尺寸($\phi = 60 \text{ nm}$)的聚焦光斑的强度分布的计算。很明显，当光线到达底层目标材料时，聚焦光斑尺寸显著减小。然而与参考 PSF 相比，在吸收层的存在下，聚焦光斑的强度显著减小。当光致变色层厚度大于 $0.5 \mu\text{m}$ 时，强度降到了 0。在光学成像光学加工的情况，聚焦光斑的大小和强度都特别重要。如果光的强度比较小，例如在光致抗蚀剂

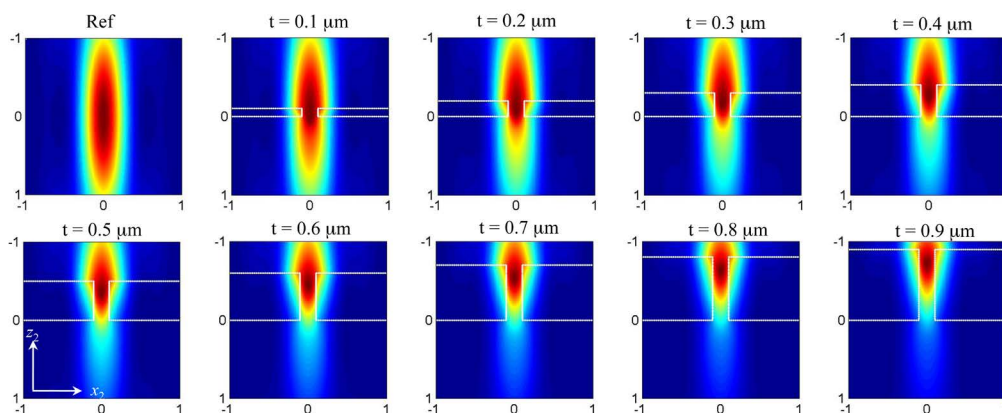


Figure 3. Calculated intensity distribution in the focal region as a function of the thickness (t) of photochromic layer. The simulation parameters are: NA = 0.6, $n = 1.0$, $\phi = 200 \text{ nm}$, $\sigma_A = 1 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$

Figure 3. 当光致变色材料厚度 t 变化是光在交面上分布情况。这里采用的相关参数是：NA = 0.6, $n = 1.0$, $\phi = 200 \text{ nm}$, $\sigma_A = 1 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$

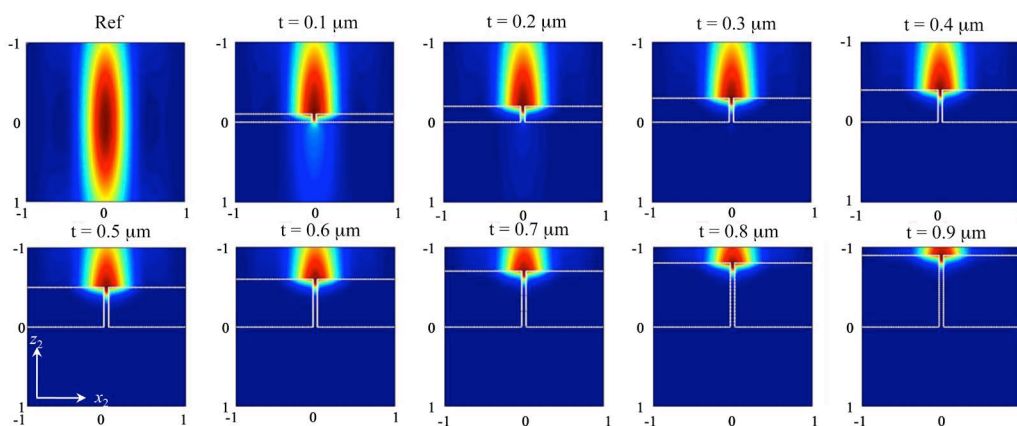


Figure 4. Calculated intensity distribution in the focal region as a function of the thickness (t) of photochromic layer. The simulation parameters are: NA = 0.6, $n = 1.0$, $\phi = 60 \text{ nm}$, $\sigma_A = 6.8 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$

Figure 4. 当光致变色材料厚度 t 变化是光在交面上分布情况。这里采用的相关参数是：NA = 0.6, $n = 1.0$, $\phi = 60 \text{ nm}$, $\sigma_A = 6.8 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$

的聚合作用下, 所期望的结构不能被实现。利用一个高强度的吸收层 ($\sigma_A (6.8 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})])$), 我们研究了圆环光束的大小(ϕ), 对聚焦区域光强分布的影响。计算结果如图 5 所示。红色条表示计算得到的聚焦光斑的 FWHM 的横向尺寸(在样品的表面)。蓝色条表示聚焦区域的峰值强度, 这依据参考情况(无光致变色层)(参考 PSF)进行了标准化。

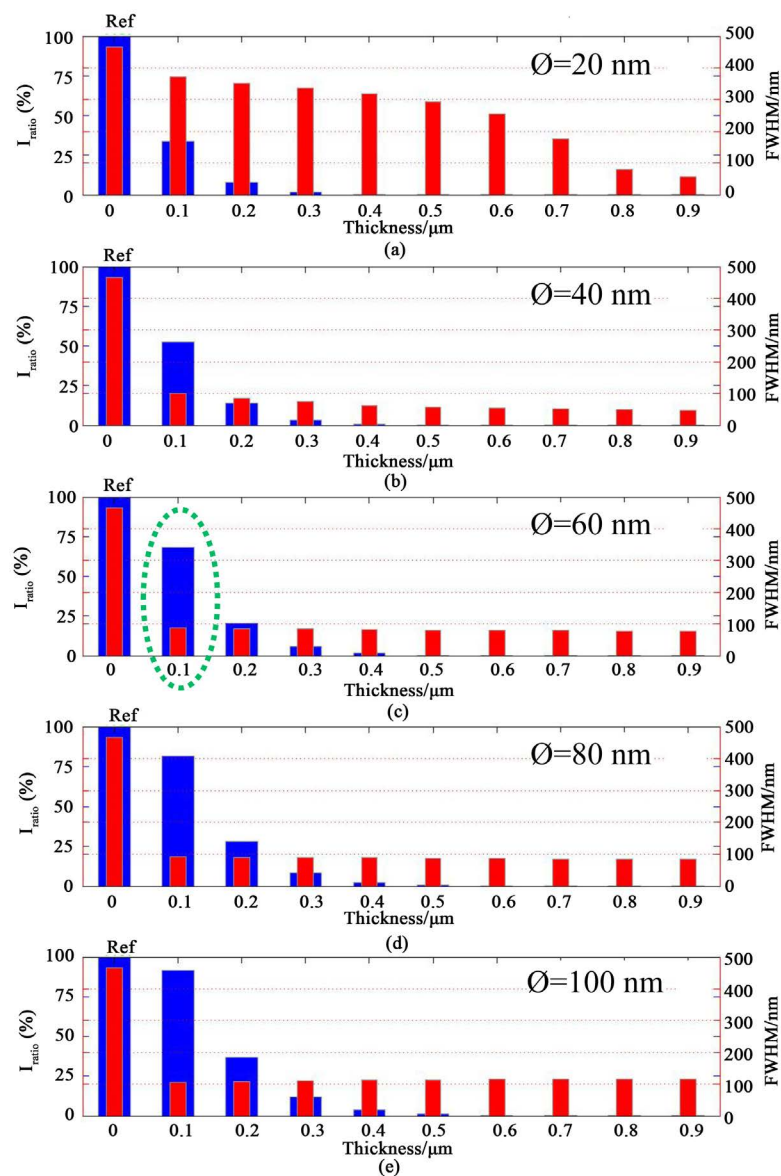


Figure 5. Calculated FWHM of transverse focusing spot size (blue bar) and the ratio (red bar) of peak intensity of nano-pointer and the peak intensity of reference beam as a function of film thickness and the size of STED beam (ϕ). The ϕ is changed from 20 nm to 100 nm from the top to the bottom. The blue dotted circled area is considered as an optimal result of nano-pointer, where the FWHM = 87 nm and it preserves 70% of total intensity of reference beam. The simulation parameters are: NA = 0.6, $n = 1.0$, $\sigma_A = 6.8 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$

Figure 5. 蓝色柱子所代表的是焦点处强度分布的半高宽。红色柱子所代表的是纳米探针最高值和参考光最高强度的比值。从上到下这五个图是当 ϕ 从 20 nm~100 nm 半高宽和强度比值的分布图。蓝色虚线圈出的地方是相对最好的几个参数的搭配结果。此时 FWHM = 87 nm 又拥有着 70% of 高强度光分布。这里所使用的参数是 NA = 0.6, $n = 1.0$, $\sigma_A = 6.8 \times 10^6 [1/(\text{mol} \cdot \text{cm})]$

我们研究了圆环大小, ϕ 从 20 nm 到 100 nm 的变化范围。很明显, 在厚的吸收层区域($t > 0.5 \mu\text{m}$), 当 ϕ 小于 50 nm 时(图 5(a), (图 5(b)), 聚焦光斑尺寸小于 $\lambda/10$ 。然而, 在这些范围内, 光的强度降低到仅 1% 的参考 PSF。这样高的能量损失不适用于类似双光子吸收聚合等应用。然而, 对于低单光子(LOPA)吸收显微镜[10] [11]可能是一个很好的工具。主要是由于这种方法不需要高强度的激励光束。当 ϕ 比较大的时候(图 5(e)), 聚焦区域的大小不再限于纳米级($>100 \text{ nm}$)。图 5(c)呈现了焦点大小和强度大小的较乐观情况。这表明, 当厚度 $t = 0.1 \mu\text{m}$ (绿色虚线环)时, 聚焦光斑的大小仅为 87 nm, 聚焦强度保留了总强度的 70% 以上。这个小尺寸高强度的“纳米刻针”, 可用于许多应用场景, 如超高分辨率光学结构的制作, 纳米器件等。

4. 结论

在本中, 提出了一种新的基于材料光致变色特性来制造超高分辨率纳米结构技术。这种方法可以大大简化目前复杂的三维超高分辨率显微镜配置。仅仅利用一个暗环振幅掩模调制的光源, 就能够生成三维圆环聚焦点。然后, 根据光致变色材料的光学特性, 我们理论上提出了一种能够产生 87 nm 聚焦光斑的“纳米刻针”系统。

参考文献

- [1] Liu, N., Guo, H.C., Fu, L.W., Kaiser, S., Schweizer, H. and Giessen, H. (2007) Three-Dimensional Photonic Metamaterials at Optical Frequencies. *Nature Materials*, **7**, 31-37. <https://doi.org/10.1038/nmat2072>
- [2] Belabas, N., Bouchoule, S., Sagnes, I., Levenson, J.A., Minot, C. and Moison, J.-M. (2009) Confining Light Flow in Weakly Coupled Waveguide Arrays by Structuring the Coupling Constant: Towards Discrete Diffractive Optics. *Optics Express*, **17**, 3148-3156. <https://doi.org/10.1364/OE.17.003148>
- [3] McPhail, D. and Gu, M. (2002) Use of Polarization Sensitivity for Three Dimensional Optical Data Storage in Polymer Dispersed Liquid Crystals under Two-Photon Illumination. *Applied Physics Letters*, **81**, 1160-1162. <https://doi.org/10.1063/1.1499988>
- [4] Li, X.P., Cao, Y.Y. and Gu, M. (2011) Superresolution-Focal-Volume Induced 3.0 Tbytes/Disk Capacity by Focusing a Radially Polarized Beam. *Optics Letters*, **36**, 2510-2512. <https://doi.org/10.1364/OL.36.002510>
- [5] Scott, T.F., Kowalski, B.A., Sullivan, A.C., Bowman, C.N. and McLeod, R.R. (2009) Two-Color Single-Photon Photoinitiation and Photoinhibition for Subdiffraction Photolithography. *Science*, **324**, 913-917. <https://doi.org/10.1126/science.1167610>
- [6] Cao, Y.Y., Gan, Z.S., Jia, B.H., Evans, R.A. and Gu, M. (2011) High Photosensitive Resin for Super-Resolution Direct-Laser-Writing Based on Photoinhibited Polymerization. *Optics Express*, **19**, 19486-19494. <https://doi.org/10.1364/OE.19.019486>
- [7] Menon, R. and Smith, H.I. (2006) Absorbance-Modulation Optical Lithography. *JOSAA*, **23**, 2290-2294. <https://doi.org/10.1364/JOSAA.23.002290>
- [8] Andrew, T.L., Tsai, H.-Y. and Menon, R. (2009) Confining Light to Deep Subwavelength Dimensions to Enable Optical Nanopatterning. *Science*, **324**, 917-921. <https://doi.org/10.1126/science.1167704>
- [9] Tsai, H.-Y.S. (2007) Absorbance Modulation Optical Lithography. Ph.D. Thesis, Massachusetts Institute of Technology.
- [10] Do, M.T., Nguyen, T.T.N., Li, Q., Benisty, H., Ledoux-Rak, I. and Lai, N.D. (2013) Submicrometer 3d Structures Fabrication Enabled by One-Photon Absorption Direct Laser Writing. *Optics Express*, **21**, 20964-20973. <https://doi.org/10.1364/OE.21.020964>
- [11] Li, Q., Do, M.T., Ledoux-Rak, I. and Lai, N.D. (2013) Concept for Three-Dimensional Optical Addressing by Ultralow One-Photon Absorption Method. *Optics Letters*, **38**, 4640-4643. <https://doi.org/10.1364/OL.38.004640>

知网检索的两种方式：

1. 打开知网页面 <http://kns.cnki.net/kns/brief/result.aspx?dbPrefix=WWJD>
下拉列表框选择：[ISSN]，输入期刊 ISSN：2160-7567，即可查询
2. 打开知网首页 <http://cnki.net/>
左侧“国际文献总库”进入，输入文章标题，即可查询

投稿请点击：<http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱：app@hanspub.org