

# 数值模拟探针诱导表面等离子体共振耦合纳米光刻<sup>\*</sup>

洪小刚<sup>1)</sup> 徐文东<sup>1)†</sup> 李小刚<sup>1)</sup> 赵成强<sup>1)</sup> 唐晓东<sup>2)</sup>

1) 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)

2) 华东师范大学信息科学技术学院, 上海 200241)

(2007 年 12 月 28 日收到, 2008 年 3 月 26 日收到修改稿)

采用有损耗介质和色散介质的二维时域有限差分方法, 数值模拟了以光波长 514.5 nm 的 p 偏振基模高斯光束为入射光源, 激发 Kretschmann 型表面等离子体共振, 并通过探针的局域场增强效应实现纳米光刻的新方法——探针诱导表面等离子体共振耦合纳米光刻. 分别就探针与记录层的间距以及探针针尖大小, 模拟分析了不同情况下探针的局域场增强效应和记录层表面的相对电场强度振幅分布. 结果表明, 探针工作在接触模式时, 探针的局域场增强效应最明显, 记录层表面的相对电场强度振幅的对比度最大; 当探针针尖距记录层 5 nm 时, 针尖下方记录层表面的相对电场强度振幅大于光刻临界值的分布宽度与针尖尺寸相近.

关键词: 纳米光刻, 表面等离子体共振, 时域有限差分方法

PACC: 8116N, 7320M

## 1. 引 言

纳米科技是 20 世纪 80 年代逐步发展起来的前沿交叉学科, 已成为 21 世纪信息时代的核心. 纳米量级结构作为研究微观量子世界的重要基础之一, 其制作技术已成为当前世界科学研究急需解决的问题. 纳米结构制作的主要途径是采用光刻方法在物体上制作纳米量级图形. 传统的光刻技术由于光的波动性, 受到了衍射极限的限制, 因此要获得高的空间分辨率一般是采用高数值孔径的物镜, 短波长光源或非光学方法. 目前这类光刻技术如 193 nm 浸没式技术, 157 nm 极短紫外光 (EUV), 电子束投影光刻 (EPL) 和纳米压印光刻等, 可制作 45 nm 的节点, 并朝着 32 nm 发展. 但这类光刻技术本身还具有一定不足之处, 如短波长光源的光学系统复杂、成本高; 以电子束为光源的光刻技术受前散射效应、背散射效应、临近效应和电荷空间效应等影响容易造成光致抗蚀剂图形失真、基底材料受损, 纳米压印光刻的印章制作困难, 压印条件苛刻等. 这些不足之处限制了它们在实际生产中的应用, 因此有必要发展新的光刻技术.

近场光学为光刻技术的发展提供了一条新的途径. Betzig 等人<sup>[1]</sup>采用锥形光纤探针的近场光学显微镜 (NSOM) 在传统的光刻胶上很容易地实现了约为 100 nm 的光刻线. 但是这一光刻方法采用的光纤探针容易损坏, 并且光学近场内能量的耦合、传递效率低, NSOM 光刻速度慢, 一般为几个  $\mu\text{m}/\text{s}$ , 而且光刻范围很小, 只有  $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ , 使得实际应用受到很大限制. Kuwahara<sup>[2]</sup>将超分辨近场结构用于光刻, 并在可见光照射下刻出了线宽小于 100 nm 的沟槽, 至今超分辨近场结构光刻技术已经实现了 31 nm 的记录点<sup>[3]</sup>, 是目前最具应用前景的光刻技术之一. 近年来对该技术的进一步研究过程中也发现了不少问题, 一是在多次光刻后容易出现热疲劳现象而导致超分辨性能下降; 二是采用贵金属 (如铂、金和钼等) 和多层结构 (目前有的达到 9 层), 制作工艺复杂、成本昂贵等.

本文提出了一种基于表面等离子体共振效应<sup>[4]</sup>的近场光刻技术——探针诱导表面等离子体共振耦合纳米光刻 (PSPRN). 它采用 Kretschmann<sup>[5]</sup>型激发 SPR 膜系结构, 通过金属探针的局域场增强效应<sup>[6]</sup>在记录层上实现纳米量级的近场光刻. 根据近场光学理论, 这种技术能够突破衍射极限, 获得高记录光

<sup>\*</sup> 上海市科委科技基金 (批准号 06DJ14007), 国家自然科学基金重大项目 (批准号 60490294), 国家自然科学基金 (批准号 50502036) 和上海市“曙光”计划 (批准号 06SG30) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: xuwendong@mail.siom.ac.cn

功率和超小记录位,在实际应用中就可以采用小功率或大光斑直径的入射激光实现高速率和大范围的光刻.目前该技术采用的探针针尖可以做到原子级,所以理论上能实现十几纳米的光刻记录点.

本文采用时域有限差分方法(FDTD)对 PSPRN 进行了理论分析,通过分析探针针尖及记录层表面处的相对电场强度振幅分布,得出探针到记录层的距离以及探针针尖大小是影响光刻的两个重要因素.理论分析表明,该纳米光刻方法具有较高的可行性,所得模拟结果对于今后的研究开发工作具有重要的指导意义.

## 2. 数值模拟模型

计算采用模型如图 1 所示,建立二维直角坐标系.  $p$  偏振基模高斯光束以共振角度从棱镜入射到 Kretschmann 型激发 SPR 膜系结构,发生全内反射产生倏逝波,并激发表面等离子体波(SPW). SPW 也是倏逝波,且沿膜层界面传播.全内反射产生的倏逝波与 SPW 发生共振,入射光能量被耦合到膜系结构内,SPW 能量增强,反射光强度急剧下降,在反射光谱上出现共振峰(即反射光强最低).当探针进入倏逝场,倏逝波能量沿针尖泄漏,针尖处产生局域场增强,即在针尖处获得高记录功率,可用于对超小记录位进行辅助加热,实现纳米光刻.

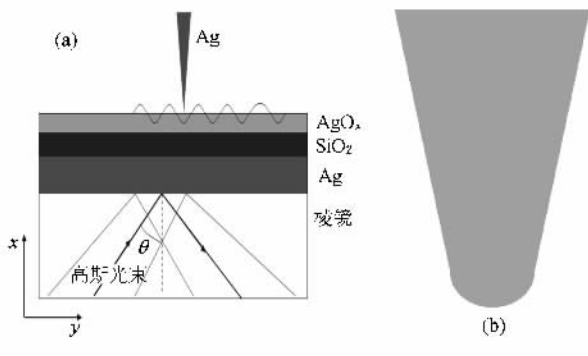


图 1 模型示意图 (a) 整体模型 (b) 针尖模型

图 1 中 Kretschmann 型激发 SPR 结构为五层介质结构:棱镜、金属银膜层、隔热层  $\text{SiO}_2$ 、记录层  $\text{AgO}_x$  及空气层.其中棱镜的材料是 ZF6,对波长为  $514.5 \text{ nm}$  的光折射率为  $1.768$ ,空气的折射率设为  $1$ .其他参量如表 1 所示,各层膜的折射率参量都是通过采用椭圆偏振仪实验测量获得.

表 1 Kretschmann 型激发 SPR 膜层结构参量

膜层	折射率	厚度/nm
金属银膜	$0.144 + 2.993i$	40
隔热层 ( $\text{SiO}_2$ )	1.463	20
记录层 ( $\text{AgO}_x$ )	$2.387 + 0.087i$	15

模拟采用  $p$  偏振基模高斯光束作为入射光源,其波长为  $514.5 \text{ nm}$ ,束腰大小为  $700 \text{ nm}$ .计算网格尺寸为  $2.5 \text{ nm} \times 2.5 \text{ nm}$ ,网格数为  $1500 \times 4000$ .探针采用金属银材料,其折射率与银膜的一样,形状为锥形,圆锥角为  $20^\circ$ ,针尖为半圆.

## 3. FDTD 方程及双波法提取场强振幅

二维 TM 波 FDTD 有损耗介质的电磁场计算公式<sup>[7-9]</sup>可表述为

$$H_z \Big|_{i+1/2, j+1/2}^{n+1/2} = H_z \Big|_{i+1/2, j+1/2}^{n-1/2} + \frac{\Delta t}{\mu_0} \left( (E_x \Big|_{i+1/2, j+1}^n - E_x \Big|_{i+1/2, j}^n) \Delta y - (E_y \Big|_{i+1, j+1/2}^n - E_y \Big|_{i, j+1/2}^n) \Delta x \right), \quad (1)$$

$$E_x \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} = \frac{2\epsilon_0 \epsilon_r \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} - \sigma \Big|_{i+1/2, j} \Delta t}{2\epsilon_0 \epsilon_r \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} + \sigma \Big|_{i+1/2, j} \Delta t} E_x \Big|_{i+1/2, j}^n + \frac{2}{2\epsilon_0 \epsilon_r \Big|_{i+1/2, j}^{n+1} + \sigma \Big|_{i+1/2, j} \Delta t} \frac{\Delta t}{\Delta y} \times (H_z \Big|_{i+1/2, j+1/2}^{n+1/2} - H_z \Big|_{i+1/2, j-1/2}^{n+1/2}) \quad (2)$$

$$E_y \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} = \frac{2\epsilon_0 \epsilon_r \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} - \sigma \Big|_{i, j+1/2} \Delta t}{2\epsilon_0 \epsilon_r \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} + \sigma \Big|_{i, j+1/2} \Delta t} E_y \Big|_{i, j+1/2}^n + \frac{2}{2\epsilon_0 \epsilon_r \Big|_{i, j+1/2}^{n+1} + \sigma \Big|_{i, j+1/2} \Delta t} \frac{\Delta t}{\Delta x} \times (H_z \Big|_{i+1/2, j+1/2}^{n+1/2} - H_z \Big|_{i-1/2, j+1/2}^{n+1/2}) \quad (3)$$

式中  $\mu_0 = 1.2566306 \times 10^{-6}$  表示真空中的磁导率,  $\epsilon_r$  表示介质的相对介电常数,  $\sigma$  为介质电导率,  $\epsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$  为真空中的介电常数,  $\Delta x$ ,  $\Delta y$  分别为两个坐标方向的空间网格步长,  $\Delta t$  为时间步长.

在棱镜、隔热层、记录层和空气中,有

$$\epsilon_r + \frac{\sigma}{i\omega\epsilon_0} = (n)^2, \quad (4)$$

式中  $n$  为棱镜、隔热层、记录层和空气的折射率,  $\omega$  为光波角频率.

金属银为色散介质,在可见光波段银的介电常数可用 Drude 模型<sup>[10,11]</sup>表示,

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\omega_p^2}{\omega(j\nu_c - \omega)}$$

$$\begin{aligned} &= \varepsilon_0 [\varepsilon_\infty + \chi(\omega)] \\ &= \varepsilon_0(n + j\kappa). \end{aligned} \quad (5)$$

在时域中有

$$D(t) = \varepsilon_0 \varepsilon_\infty E(t) + \varepsilon_0 \int_0^t \chi(t') E(t-t') dt', \quad (6)$$

式中  $D$  代表电通量密度,  $\omega_p$  代表等离子体频率,  $n$ ,  $\kappa$  分别为金属介电常数的实部和虚部,  $\nu_c$  代表离子的碰撞频率,  $\chi$  为电极化率,  $\varepsilon_\infty = 1$  为无限频率的介电常数.

将方程(6)代入麦克斯韦方程,可得  $E$  和  $H$  之间的 FDTD 关系表达式为

$$\begin{aligned} E^{n+1} &= (\varepsilon_\infty E^n + \phi^n + (\Delta t/\varepsilon_0) \cdot \nabla \\ &\quad \times H^{n+1/2}) (\varepsilon_\infty + \chi^0), \end{aligned} \quad (7)$$

式中

$$\begin{aligned} \chi^0 &= (\omega_p^2/\nu_c \int \Delta t - (1 - e^{-\nu_c \Delta t})/\nu_c], \\ \phi^{n-1} &= E^{n-1} \Delta \chi^0 + e^{-\nu_c \Delta t} \phi^{n-2}, \\ \phi^{-1} &= \phi^0 = 0, \\ \Delta \chi^0 &= -(\omega_p^2/\nu_c^2) (1 - e^{-\nu_c \Delta t})^2. \end{aligned}$$

把银的折射率代入(5)式,计算得到  $\omega_p$  和  $\nu_c$  的值,再将它们代入(7)式,经过数学计算就可得 FDTD 中金属银的电磁场计算公式.

对于时谐场,空间某一点的场采用复数表示有

$$\tilde{f}(t) = f_0 \exp[i(\omega t + \varphi)], \quad (8)$$

其中  $f_0$  为振幅,  $\varphi$  为初相位.分解可得

$$\begin{aligned} \tilde{f}(t) &= f_0 \exp[i(\omega t + \varphi)] \\ &= f_0 \cos(\omega t + \varphi) + i f_0 \sin(\omega t + \varphi). \end{aligned} \quad (9)$$

由上述方程可知在 FDTD 中,可分别采用正弦和余弦入射光源计算得到场分布,再将两者平方相加开根,就可提取场强振幅.

## 4. 结果与分析

### 4.1. 入射角度的确定

以基模高斯光束为激励源的 SPR 共振角度可通过研究平面波源激发 SPR 来确定.无限大平板是一种周期性结构,因此可采用周期性结构的 FDTD 方法来分析确定平面波源激发 SPR 的共振角度.图 2 为采用网格尺寸为  $0.5 \text{ nm} \times 0.5 \text{ nm}$  的周期性 FDTD 模拟获得的入射角度与反射系数之间的关系图.模拟得到的表面等离子体共振角即基模高斯光

束的入射角度为  $56^\circ$ .

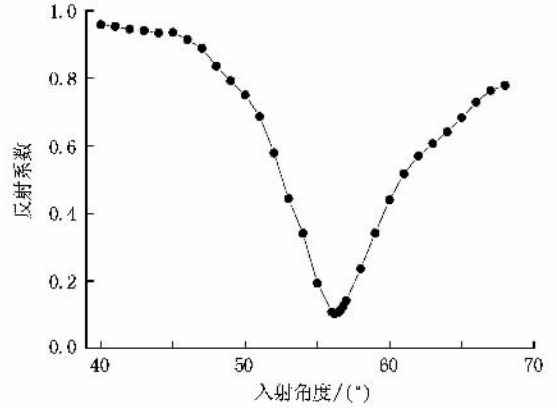


图 2 入射角度与反射系数之间的关系图

### 4.2. 探针附近及记录层表面电场强度振幅分布

p 偏振基模高斯光束经归一化之后,以  $56^\circ$  斜入射,发生全内反射,产生倏逝波.倏逝波激发表面等离子体波,并与其发生共振,产生场增强.探针进入倏逝场,在针尖处产生局域场增强.图 3 为模拟的曲率半径为  $25 \text{ nm}$  的探针在距记录层  $5 \text{ nm}$  时的相对电场强度振幅分布图.探针针尖及记录层表面处的电场强度振幅分布与针尖到记录层表面的距离和针尖尺寸有关.

#### 1) 针尖与记录层间距的影响

取针尖曲率半径为  $10 \text{ nm}$ ,模拟不同针尖与记录层之间的距离情况下的针尖处场强最大值.在图 1 的坐标系中,探针所处倏逝场中的倏逝波,可表示为

$$\begin{aligned} E &= A \exp(-k_0 x \sqrt{n^2 \sin^2 \theta - 1}) \\ &\quad \times \exp[i(\omega t - k_0 n y \sin \theta)], \end{aligned} \quad (10)$$

其中  $A$  为倏逝波的振幅,  $k_0 = \omega/c = 2\pi/\lambda$  为真空中的波数,  $\omega$  为角频率,  $c$  为真空中光速,  $\lambda$  为光在真空中的波长,  $n$  为棱镜的折射率.

探针针尖尺寸很小可忽略探针对于倏逝场的影响,如图 4 所示,针尖附近的场强与到记录层的距离 ( $X$ ) 成指数衰减,因此同样的针尖工作在接触模式下时场增强效应最明显.

图 5 为记录层表面相对电场强度振幅分布的主峰峰值和次峰峰值与针尖到记录层表面的距离关系图.从图中可见,由于金属表面近场波振幅衰减很快,随着针尖到记录层距离的增大,记录层表面的相对电场强度振幅主峰峰值迅速下降;当  $X$  等于  $23.6 \text{ nm}$  时,主峰峰值与次峰峰值相等,即记录层表

面相对电场强度振幅的对比度为 0 ,因此当  $X$  小于 23.6 nm 时可实现光刻.

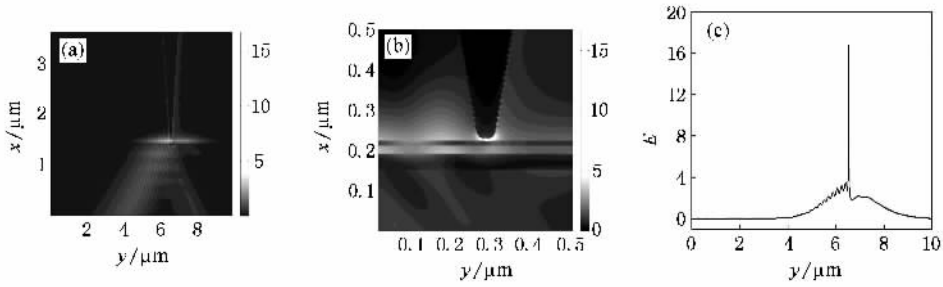


图 3 相对电场强度振幅分布 (a)整个计算空间 (b)探针附近 (c)记录层表面

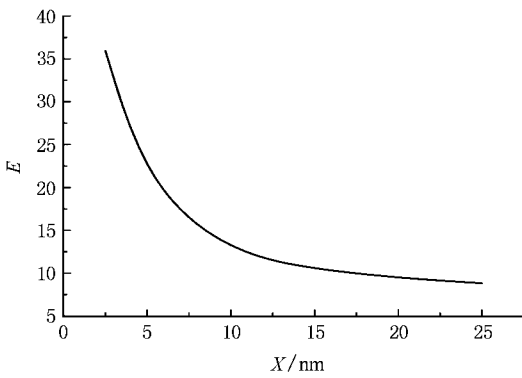


图 4 针尖处场强最大值与针尖到记录层距离的关系图

### 2) 针尖曲率半径的影响

以探针距记录层表面 5 nm 为例 ,模拟了针尖曲率半径分别为 50 ,25 ,10 nm 时记录层表面的相对电

场强度振幅分布 ,如图 6 所示 .由图可见 ,随着针尖曲率半径的变化 ,局域场增强效应并没有很大的变化 ,针尖下记录层表面相对电场场强振幅大于光刻临界值 4 的分布宽度与针尖尺寸大小  $2R$  相近 .图 6 中 (a)和 (b)中主峰两侧的“肩膀”是由针尖模型网格化产生的误差所引起的 .模型网格化时 ,针尖并不是一个光滑的半圆 ,而是接近半圆轮廓的阶梯 .而这种阶梯状容易产生较大的场增强<sup>[12]</sup> ,并作用于记录层表面 ,进而形成主峰两侧的肩膀 .图 6 (c)由于阶梯间距较小 ,场增强效应相互影响而没有产生“肩膀” .这种场增强的作用也会随着距离的增加而减弱 ,对于此处分析针尖下记录层表面相对电场场强振幅大于光刻临界值 4 的分布宽度并不影响 .实际上随着计算网格尺寸的减小 ,上述的“肩膀”最终将会消失 ,模拟的结果就更具指导意义 .

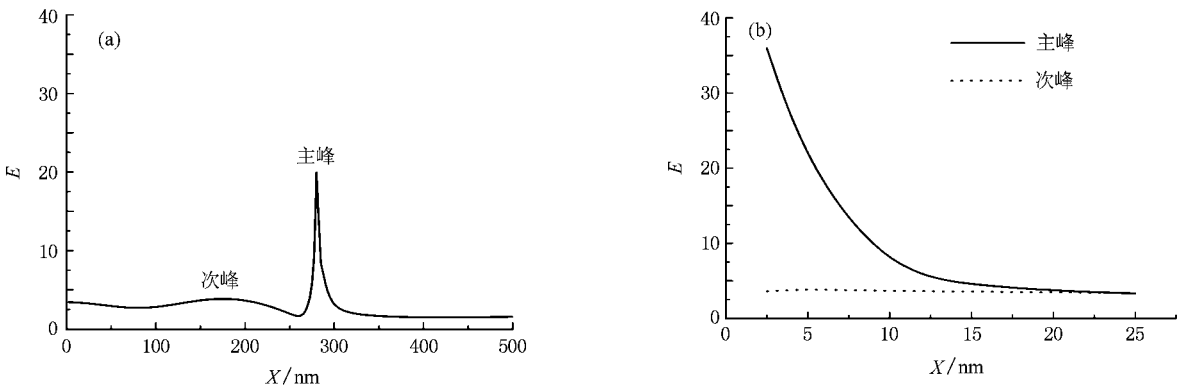


图 5 (a)记录层表面相对电场强度振幅分布图 (b)主峰峰值和次峰峰值与针尖到记录层表面距离关系图



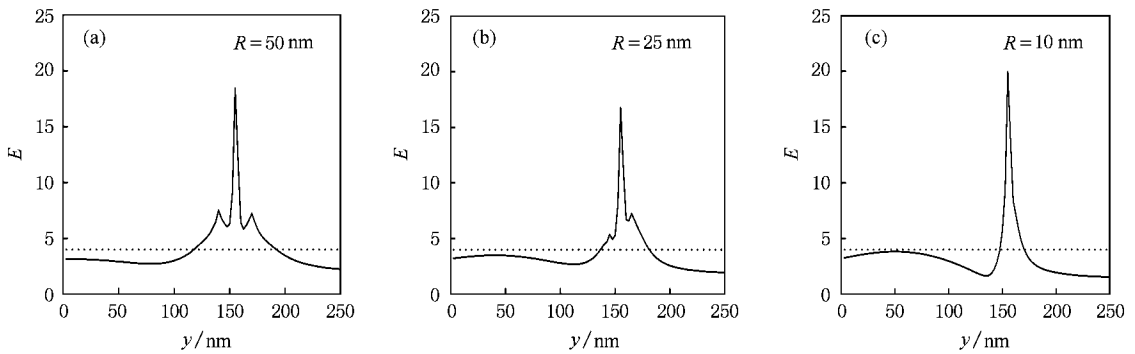


图 6 不同针尖曲率半径时记录层表面相对电场强度振幅分布图

## 5. 结 论

本文采用有损耗介质和色散介质的时域有限差分方法理论分析了 PSPRN 光刻方法,分别讨论了探针针尖到记录层表面的距离及探针针尖曲率半径对探针的场增强效应和记录层表面处的电场强度振幅分布的影响:1)探针与记录层的间距越小,探针的局域场增强效应越明显,当探针与记录层的间距大于 23.6 nm 时,记录层表面的相对电场强度振幅对比

度很小,不能实现纳米光刻.2)探针针尖曲率半径直接决定了记录层表面光斑尺寸的大小.

数值结果表明:当金属银探针到记录层表面的距离在 5 nm 时,探针能在记录层表面形成针尖尺寸大小的记录光斑,显示出在近场光刻方面的可行性.

本文只是对 PSPRN 进行了理论上的探索研究,而 FDTD 作为一种数值模拟方法,仍存在一定的误差,比如:网格划分造成探针针尖形状的误差,金属色散介质的 Drude 模式产生的误差等.后续有必要进行实验验证和对方法的误差分析做进一步的探讨.

- [ 1 ] Betzig E, Trautman J K 1992 *Science* **257** 193
- [ 2 ] Kuwahara M 2001 *Microelectronic Engineering* **57-58** 883
- [ 3 ] Shi L P, Chong T C, Yao H B, Tan P K, Miao X S 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 10209
- [ 4 ] Raether H 1988 *Surface Plasmon on Smooth and Rough Surface and on Gratings* ( Berlin : Springer-Verlag ) p10
- [ 5 ] Kretschmann E 1971 *Z. Physik* **241** 313
- [ 6 ] Hong X, Du D D, Qiu Z R, Zhang G X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 7219 ( in Chinese ) [ 洪 昕、杜丹丹、裘祖荣、张国雄 2007 物理学报 **56** 7219 ]
- [ 7 ] Taflov A, Hagness S 2000 *Computational Electrodynamics : The Finite-Difference Time-Domain Method*, 2ed ( Boston : Artech House )
- [ 8 ] Ge D B 2002 *Electromagnetic Finite-Difference Time-Domain Method* ( Xi 'an : Xidian University Press ) p15 ( in Chinese ) [ 葛德彪 2002 电磁波时域有限差分方法 ( 西安 : 西安电子科技大学出版社 ) 第 15 页 ]
- [ 9 ] Zhou Q, Zhu X, Li H F 2000 *Acta. Phys. Sin.* **49** 210 ( in Chinese ) [ 周 庆、朱 星、李宏福 2000 物理学报 **49** 210 ]
- [ 10 ] Tominaga J, Nakano T 2005 *Optical Near-Field Recording : Science and Technology* ( Berlin Springer-Verlag ) p49
- [ 11 ] Yang G J, Kong F M, Li K, Mei L M 2007 *Acta. Phys. Sin.* **56** 4252 ( in Chinese ) [ 杨光杰、孔凡敏、李 康、梅良模 2007 物理学报 **56** 4252 ]
- [ 12 ] Li Y Q, Wu S F, Jian G S, Liu K 2004 *Chinese Journal of Light Scattering* **16** 48 ( in Chinese ) [ 李亚琴、吴世法、简国树、刘 琨 2004 光散射学报 **16** 48 ]

# Numerical simulation of probe induced surface plasmon resonance coupling nanolithography<sup>\*</sup>

Hong Xiao-Gang<sup>1)</sup> Xu Wen-Dong<sup>1)†</sup> Li Xiao-Gang<sup>1)</sup> Zhao Cheng-Qiang<sup>1)</sup> Tang Xiao-Dong<sup>2)</sup>

1 *Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China*

2 *School of Information Science and Technology, East China Normal University, Shanghai 200241, China*

( Received 28 December 2007 ; revised manuscript received 26 March 2008 )

## Abstract

A new nanolithographic technology, the probe induced surface plasmon resonance coupling nanolithography (PSPRN), is presented and analyzed numerically by using finite difference time domain method for the loss and dispersive materials. The PSPRN uses a fundamental mode Gaussian beam with wavelength of 514.5 nm to excite the Kretschmann surface plasmon resonance, and utilizes the metal probe local-field enhancement effect to realize nanolithography. The influences of different distances between probe and recording layer and different sizes of tip on local field enhancement and the distribution of electric field intensity amplitude on the surface of recording layer were investigated. Results show that the local field enhancement effect is most significant and the electric field intensity amplitude contrast ratio is maximal when the probe is in contact with the recording layer. When the distance between tip and recording layer is 5 nm, the distribution width of the relative electric field intensity amplitude above the critical value for near-field nanolithography on the surface of recording layer is close to the size of the tip.

**Keywords** : nanolithography, surface plasmon resonance, finite-difference time-domain method

**PACC** : 8116N, 7320M

<sup>\*</sup> Project supported by the Shanghai Committee of Science and Technology, China ( Grant No. 06DJ14007 ), the Major Program of the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 60490294 ), the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 50502036 ), and the "Dawn" Program of Shanghai Education Commission, China ( Grant No. 06SG30 ).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail : xuwendong@mail.siom.ac.cn