

基于多层膜结构的亚波长光栅研究*

梁高峰¹⁾²⁾ 赵青^{1)†} 陈欣¹⁾²⁾ 王长涛²⁾ 赵泽宇²⁾ 罗先刚^{2)†}

1) (电子科技大学物理电子学院, 成都 610054)

2) (中国科学院光电技术研究所, 微细加工光学技术国家重点实验室, 成都 610209)

(2011年6月9日收到; 2011年9月26日收到修改稿)

利用表面等离子体共振效应理论及金属-介质复合膜的特殊纳米光学效应对平面多层膜超分辨光刻技术进行了研究. 在曝光光源为 365 nm 的情况下, 实现周期 230 nm, 线宽 100 nm 的超分辨光刻成像. 讨论了均匀金属-介质多层膜的结构参数选择, 并通过数值仿真得到有效的光强度和对对比度, 然后用等离子体纳米光刻进行试验验证, 通过最优化选择, 最终得到了亚波长结构多层膜的大区域范围超分辨成像.

关键词: 表面等离子体, 超分辨成像, 纳米光刻技术

PACS: 42.50.Gy, 52.40.Hf, 85.40.Hp

1 引言

衍射极限的存在是现代光学成像技术的主要障碍, 传统光学成像系统能分辨的两点间的距离总是大于入射波长的一半. 这是因为它只能传输低频的传播波, 而携带物体精细结构信息的高频倏逝波部分不能有效传输, 也就不能参与成像. 为了实现半波长以下的超分辨成像, 人们一直在不懈努力. 近年来快速发展的超透镜技术作为一种打破衍射极限的新方法受到研究人员的普遍关注. 它是根据 Pendry^[1] 提出的负折射率完美透镜理论: 在准静电条件下, 当金属板厚度很薄时, 物体发出的传播波部分和倏逝波部分都可以在负折射率介质中传输到像面, 从理论上可以实现完美成像. 加州大学 Berkeley 分校的研究小组从实验上验证了金属平板对于透射倏逝波的放大现象^[2,3]. 因此, 这种负折射率性质的材料可以用于超分辨成像. 由于人工制备这种特殊材料对工艺条件要求非常苛刻, 目前人们虽然已经可以得到在微波频段具有负介电常数和负磁导率的材料^[4], 但在光频段的负折射率材料制备还面临很大的困难. 后来 Pendry 等提出采用增益介质或者金属-空气均匀分层的金属平板结

构提高超透镜的分辨率^[5,6]. 这种方法相对单层金属不仅增加了物象之间的距离, 还减少了波在金属中的损失, 但由于单层金属要求很薄, 实验中难以制备, 而添加金属掩模光栅可以使 TM 极化波通过缝隙补偿传输波, 并重现或放大倏逝波^[7], 使得透镜分辨率得到很大提高. Berkeley 分校的研究小组用单层 Ag 膜透镜实现了在入射光波长为 365 nm 时分辨 60 nm 线宽图形^[8], 而浙江大学的研究人员用近似结构得到了周期 500 nm, 线宽 100 nm 图形的超分辨成像^[9]. 通过改变多层膜结构和入射波长 Belov 和 Hao^[10] 在理论上得到了在 600 nm 波长下可分辨 30 nm 线宽图形, Yang 等^[11] 的数值计算结果更是达到了在 193 nm 波长下的 21.5 nm 的分辨率. 目前, 超透镜成像分辨率理论上已经可以达到 20 nm, 甚至更低, 但几乎都局限于理论计算与模拟, 缺少实际实验结果支持. 本文将对平面多层膜透镜进行理论分析和仿真计算, 得到合理参数, 并利用等离子体纳米光刻技术^[12] 对 Ag-SiO₂ 复合结构进行实验验证, 最终得到了物体突破衍射极限的超分辨成像. 这种理论结合实验的思路有利于后续开展光学透镜及更高分辨率成像的研究.

* 国家重点基础研究发展计划 (973 计划)(批准号: 2011CB301800-G)、国际合作项目 (批准号: 2011DFA63190) 和微细加工光学技术国家重点实验室基金 (批准号: 201101445) 资助的课题.

† E-mail: zhaoq@uestc.edu.cn; lxg@ioe.ac.cn

2 超分辨结构模型

金属平板透镜能够实现超分辨的原因在于外加的电磁波在垂直于金属表面两侧的电场分量发生突变, 激发金属表面自由电子运动形成感应电荷, 如果它们受到平行于分界面的电场作用就会在金属表面振荡从而产生表面等离子体. 如果金属平板比较薄, 金属平板两侧的表面等离子体波发生耦合, 在界面附近, 表面等离子体波的场强很强, 能够弥补从物体发出的倏逝波在自由空间中的衰减.

对于激发电磁波的选择我们做如下讨论: 假定 $z = 0$ 是金属与介质的分界面, $z < 0$ 部分为金属, $z > 0$ 部分为介质, ϵ_m 和 ϵ_d 分别为金属和介质的介电常数 (图 1).

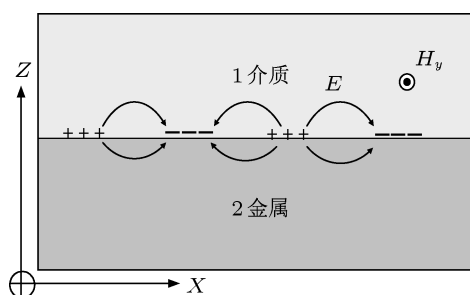


图 1 金属 - 介质分界面产生等离子体

对于横磁波 (transverse magnetic wave, TM), 其磁场分量垂直于入射面, 电场分量平行于入射面, 可表示为

$$z > 0 \text{ 部分} \begin{cases} H_1 = (0, H_{y1}, 0)e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)}, \\ E_1 = (E_{x1}, 0, E_{z1})e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)}; \end{cases} \quad (1)$$

$$z < 0 \text{ 部分} \begin{cases} H_2 = (0, H_{y2}, 0)e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)}, \\ E_2 = (E_{x2}, 0, E_{z2})e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)}; \end{cases} \quad (2)$$

其中波矢 k_x, k_{z1}, k_{z2} 满足以下关系:

$$k_x^2 + k_{z1}^2 = k_1^2 = \epsilon_d \left(\frac{\omega}{c}\right)^2, \quad (3)$$

$$k_x^2 + k_{z2}^2 = k_2^2 = \epsilon_m \left(\frac{\omega}{c}\right)^2.$$

利用 Maxwell 方程中的磁场旋度关系式并结合电磁场边界条件, 可以得到:

$$\frac{k_{z1}}{k_{z2}} = -\frac{\epsilon_d}{\epsilon_m}, \quad (4)$$

而 k_{z1} 和 k_{z2} 都是正值, 所以 ϵ_d 和 ϵ_m 应该正负相反.

对于横电波 (transverse electric wave, TE), 其磁场分量平行于入射面, 电场分量垂直于入射面, 可表示为

$$z > 0 \text{ 部分} \begin{cases} H_1 = (H_{x1}, 0, H_{z1})e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)}, \\ E_1 = (0, E_{y1}, 0)e^{i(k_x x + k_{z1} z - \omega t)}; \end{cases} \quad (5)$$

$$z < 0 \text{ 部分} \begin{cases} H_2 = (H_{x2}, 0, H_{z2})e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)}, \\ E_2 = (0, E_{y2}, 0)e^{i(k_x x - k_{z2} z - \omega t)}; \end{cases} \quad (6)$$

其中波矢 k_x, k_{z1}, k_{z2} 与 (3) 式中的关系一样, 利用 Maxwell 方程中的电场旋度关系式并结合电磁场边界条件 (在此我们假设所有的材料都是非磁性的, 因此可以取磁导率 $\mu = 1$), 可以得到:

$$E_{y1}(k_{z1} + k_{z2}) = 0, \quad (7)$$

由于 k_{z1} 和 k_{z2} 都是正值, 则 $E_{y1} = 0$, 这样 $z > 0$ 部分不会存在只有磁场的电磁波, $z < 0$ 部分也不会存在电磁波, 因此 TE 波不能激发表面等离子体波.

所以, 只有 TM 波能激发表面等离子体, 有关多层金属介质超透镜的计算与实验也只能用 TM 波. 在紫外光波段, 贵金属的介电常数具有负的实数部分, 而介质 SiO_2 材料具有正的介电常数, 为了更好的匹配, 我们的金属部分选择 Ag. 从上面计算说明 Ag-SiO₂ 多层膜结构能被激发出表面等离子体, 也就是说可以作为制造超透镜的材料. 我们选用均匀厚度的多层膜, 要求每层厚度均小于电磁波在金属中的穿透深度, 并用 Cr 金属制作的光栅掩模来激发等离子体.

按照 Drude 模型理论, 我们可以用 $\epsilon(\omega) = \epsilon_0 - \omega_p^2 / [\omega(\omega + iV_c)]$ 来计算 Cr 和 Ag 的介电常数 [13]. 对于 Cr, 取 $\epsilon_0 = 3.2, \omega_p = 2.2 \times 10^{16} \text{ rad/s}, V_c = 3.8 \times 10^{15} \text{ rad/s}$, 则有 $\epsilon_{Cr} = -8.5734 + 8.6632 * i$. 对于 Ag, 取 $\epsilon_0 = 4.2, \omega_p = 1.3 \times 10^{16} \text{ rad/s}, V_c = 9.1 \times 10^{13} \text{ rad/s}$, 有 $\epsilon_{Ag} = -2.4012 + 0.2488 * i$.

多层金属介质结构可以用等效介质理论的方法来分析其电磁特性 [14,15]. 这样多层膜的等效介电常数可表示为

$$\epsilon = \epsilon_0 \begin{pmatrix} \epsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_z \end{pmatrix}, \quad (8)$$

其中

$$\begin{aligned} \varepsilon_x = \varepsilon_y &= (h_m \varepsilon_m + h_d \varepsilon_d) / (h_m + h_d), \\ \varepsilon_z &= (h_m + h_d) \varepsilon_m \varepsilon_d / (h_d \varepsilon_m + h_m \varepsilon_d), \end{aligned} \quad (9)$$

ε_m 和 ε_d 分别是金属介质的介电常数, 在此即是 $\varepsilon_m = \varepsilon_{Ag}$, $\varepsilon_d = \varepsilon_{SiO_2} = 2.13$, h_m 和 h_d 分别是单层金属和介质的厚度. 为了尽量减少传输损失和方便制作加工, 在此我们取单层厚度都是 10 nm, 将数据代入 (9) 式可得 $\varepsilon_x < 0$, $\varepsilon_z > 0$. 这是一种很有意义的情况, 根据各向异性介质中的色散关系 $k_x^2/\varepsilon_z + k_z^2/\varepsilon_x = (\omega/c)^2 = k_0^2$, 此时多层膜只支持波矢量 k_x 的高频分量传播, 这样高频的倏逝波分量就可以在其中传播, 并且不受低频分量的干扰 [16], 这非常有利于进行高分辨率成像.

另外对于 Cr 掩模, 我们利用光栅的衍射效应, 入射光经过光栅后横向波矢与 Cr 掩模周期有如下关系:

$$k_x = k_0 \sin \theta \pm 2\pi n/l, \quad (10)$$

其中 k_0 是自由空间波矢, θ 是入射角, n 是衍射级次, l 是掩模周期. 我们取入射光为 365 nm 的 TM 波垂直入射, 以及缝宽 100 nm, 周期 230 nm 的 Cr 金属掩模, 对于第一级衍射, 计算可得:

$$k_x = \pm 2\pi n/l \approx 1.6k_0, \quad (11)$$

级次越高波矢越大. 波长在 365 nm 附近时, 高频和低频的色散曲线趋于重合 (图 2), 等离子体存在较宽的波矢频带范围 [17], 我们利用这个波长能在较宽的频带内激发表面波使高频波矢分量都传输到像面参与成像, 有利于实现超分辨成像.

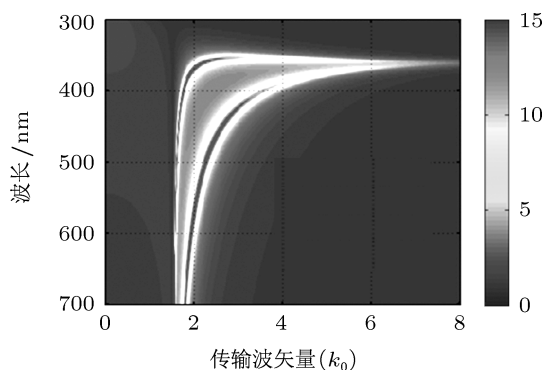


图 2 超透镜中磁场分量的色散分布 [17]

3 数值计算

通过上面的分析我们总结模型结构 (图 3): 入

射光选 365 nm 的紫外光, 整个透镜结构包括六层均匀厚度的 Ag-SiO₂ 复合结构 (共 60 nm), 工艺上需要填平掩模, 我们加一层 10 nm 厚且与 Ag 膜介电常数实部相匹配的聚甲基丙烯酸甲酯 (poly-methylmethacrylate, 简称 PMMA) 材料. 为了更好地成像我们用厚 60 nm 的石英基底, 40 nm 厚的 Cr 金属掩模, 50 nm 厚的光刻胶, Y 方向上所有分量都看做半无穷大. 因为假设所有的材料都是非磁性的, 所以这里只需关注 ε . PMMA, 光刻胶的介电常数分别是 $\varepsilon_{PMMA} = 2.4$, $\varepsilon_{PR} = 2.56$. 这种结构下, 虽然电磁波在金属里传输有损失, 但在每个分界面处介电常数改变符号, 使得表面等离子体波不断激发, 每一层的耦合激发都在一定程度上放大了倏逝波分量, 所以这种结构的透镜可以使物体发出的带有精细信息的倏逝波很好地传输到像面, 进而达到超分辨的目的.

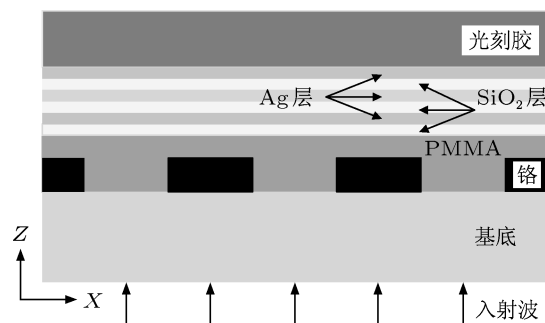


图 3 多层膜透镜结构图

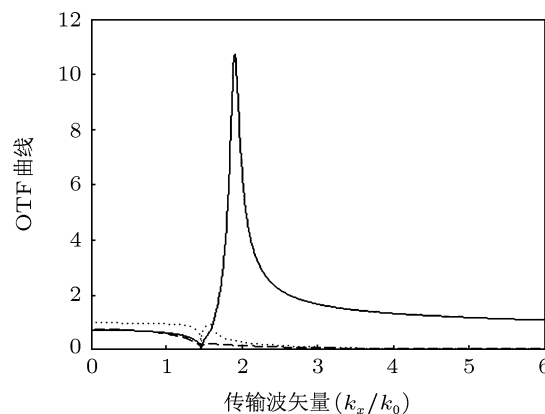


图 4 三种不同情况下的 OTF 曲线

光学传递函数 (optical transfer function, 简称 OTF) 是在给定横向波矢 k_x 时, 像的磁场强度与物体磁场强度的比值. 图 4 是 OTF 与横向波数的函数关系, 虚线是用 TE 波入射, 实线用 TM 波入射, 点线是将 Ag 换成 PMMA 并用 TM 波入射. 可以

看出三种情况下低频波传输差距不大,虚线和实线重合且略低于点线是由于金属损耗.而高频波实线所示传输情况明显好于其他,尤其在 $1.5k_0-3k_0$ 区域.这说明图 3 所示系统的确可以激发表面波,进而传输倏逝波到像面参与成像.

我们用基于有限元法的 COMSOL 软件来仿真.用 TM 偏振光垂直入射到基底上,成像系统内部用连续边界条件,侧面用匹配边界条件,光刻胶底面用散射边界条件.仿真得结果如图 5 和图 6.

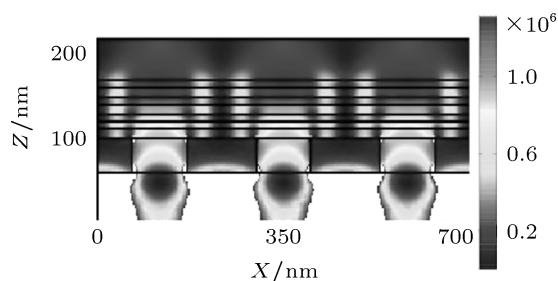


图 5 透镜电场强度分布图

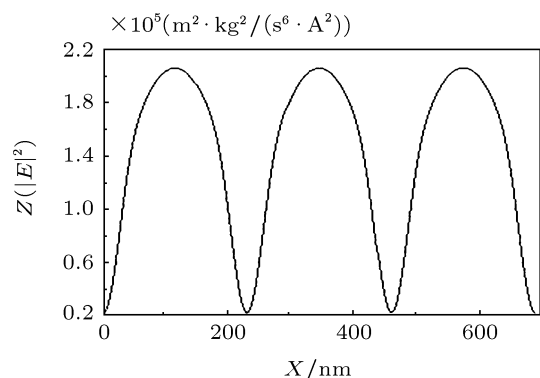


图 6 光刻胶内 30 nm 处的光强分布图

可以看出,模拟结果符合预期效果.我们用两个重要参数光强度 I 和对比度 C 来说明结果,强度 I 是像平面光刻胶 30 nm 处取截面所得,而对比度表示为

$$C = (I_{\max} - I_{\min}) / (I_{\max} + I_{\min}) = (E_{\max}^2 - E_{\min}^2) / (E_{\max}^2 + E_{\min}^2), \quad (12)$$

根据模拟结果数据可得强度 $I \approx 2.1 \times 10^5 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}^2 / (\text{s}^6 \cdot \text{A}^2)$, 对比度 $C \approx (2.1 - 0.2) / (2.1 + 0.2) = 0.83$.而且图形各处均匀,能很好地反映超分辨成像特性,我们认为此设计参数可用于实验制备超透镜.

4 实验过程及结果分析

根据上面的设计参数我们来制作超透镜.针对最终需要达到的目标,我们对制备该透镜器件制定了以下工艺流程,大体可归纳为三大工艺阶段:掩模的制作、核心部分多层膜的制备以及超分辨光刻.

用激光干涉光刻蚀法能够较方便地在光刻胶上得到特征尺寸 100 nm, 周期 230 nm, 且对比度较好的图形.接着通过反应离子束 (ion beam etching, IBE) 刻蚀将图形转移到下面金属层上,即可得到需要的纳米尺寸的掩模 [18,19].

掩模制作完毕后,用 PMMA 填平掩模的起伏从而使其表面达到平整.接下来是多层膜的制备,实验所采用磁控溅射方法镀膜,该实验同时采用银靶和二氧化硅靶.对银膜采用直流溅射,对二氧化硅膜采用射频溅射.实验中要保证制备出的平面多层膜满足对膜厚、致密性、及均匀性的所有要求.

完成了平面多层膜的结构后,便可以进行最后的超分辨光刻了.这里采用一体式曝光的方式.为了观察到光刻胶入射面对光强的感应,选择负性光刻胶.本实验所使用的曝光光源是波长 365 nm 的 I 线汞灯光源.

经过反复多次试验和调整,优化曝光和显影时间、剂量等参数,最终完成超分辨光刻,得到实验结果如图 7.

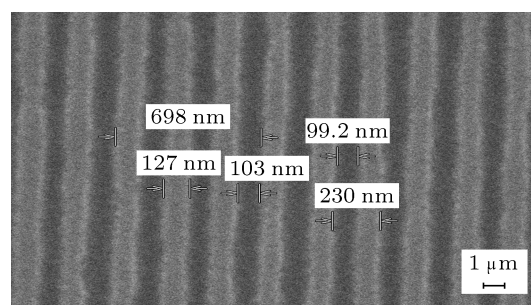


图 7 特征尺寸为 100 nm 的超分辨光刻图形 (放大 50k 倍)

从成像结果来看,得到了比较清晰的线宽 100 nm, 周期 230 nm 光刻图形,而且线条均匀工整、对比度较好,良好的面型幅度达到厘米量级 (1—2 cm),相当成功地实现了一对一超衍射分辨光刻成像.所以,根据前面理论分析和数值模拟设计的参数而制作的平面多层膜透镜,在实验中证明了它可以等效为负折射率的人工介质材料,其对倏逝波的传输和放大作用可以实现超分辨光刻.从高

倍率的图形来看,其特征尺寸能够得到严格的保证,即使从低倍率的图形来看,其在很大区域范围内仍能保持良好的面型,所以该实验方案具有很好的可行性和合理性.

5 结论

通过理论推导和仿真设计得到可行的实验参

数,然后进行严谨的实验操作,实现了带有掩模结构的多层 Ag-SiO₂ 透镜超分辨成像,并得到了特征尺寸 100 nm 的大面积光刻图形. 这一系列研究工作是做出更高分辨率图形的基础,理论作为实验的基础又得到了实验的支持. 相信该研究会比亚波长超分辨成像有重要影响,并对以后的微纳光子器件设计有一定的借鉴意义.

-
- [1] Pendry J B 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966
- [2] Liu Z W, Fang N, Yen T J, Zhang X 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 5184
- [3] Fang N, Liu Z W, Yen T J, Zhang X 2003 *Opt. Express* **11** 682
- [4] Shelby R A, Smith D R, Schultz S 2001 *Science* **292** 77
- [5] Ramakrishna S A, Pendry J B 2003 *J. Modern Opt.* **50** 1419
- [6] Pendry J B, Ramakrishna S A 2003 *Physica B* **338** 329
- [7] Bloemer J M, D'Aguanno G, Scalora M, Mattiucci N, de Ceglia D 2008 *Opt. Express* **16** 19342
- [8] Fang N, Lee H, Sun C, Zhang X 2005 *Science* **308** 534
- [9] Shen S 2006 *Ph. D. Dissertation* (Hangzhou: Zhejiang University) (in Chinese) [申溯 2006 博士学位论文 (杭州: 浙江大学)]
- [10] Belov P A, Hao Y 2006 *Phys. Rev. B* **73** 113110
- [11] Yang X F, Zeng B B, Wang C T, Luo X G 2009 *Opt. Express* **17** 21560
- [12] Luo X G, Ishihara T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4780
- [13] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [14] Tretyakov S 2000 *Analytical Modeling in Applied Electromagnetic* (Norwood MA: Artech House) p12-36
- [15] Liu B C, Yu L, Zhang K 2010 *Chin. Phys. B* **19** 097303
- [16] Wood B, Pendry J B, Tsai D P 2006 *Phys. Rev. B* **74** 115116
- [17] Xu T, Fang L, Ma J X, Zeng B B, Liu Y, Cui J, Wang C T, Feng Q, Luo X G 2009 *Appl. Phys. B* **97** 175
- [18] Chen X, Zhao Q, Fang L, Wang C T, Luo X G 2011 *High Power Laser and Particle Beams* **23** 806 (in Chinese) [陈欣, 赵青, 方亮, 王长涛, 罗先刚 2011 强激光与离子束 **23** 806]
- [19] Li H H, Chen J, Wang Q K 2010 *Chin. Phys. B* **19** 114203

Research of subwavelength grating based on multilayer films structure*

Liang Gao-Feng¹⁾²⁾ Zhao Qing^{1)†} Chen Xin¹⁾²⁾ Wang Chang-Tao²⁾
Zhao Ze-Yu²⁾ Luo Xian-Gang^{2)†}

1) (*School of Physical Electronics, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China*)

2) (*State Key Laboratory of Optical Technologies for Microfabrication, Institute of Optical and Electronics, Chinese Academy of Science, Chengdu 610209, China*)

(Received 9 June 2011; revised manuscript received 26 September 2011)

Abstract

Based on the theory of surface plasmon resonance and the special nano-optical effect of metal-dielectric composite, we study super-resolution photolithography using multilayer films. The main point is to use 365 nm exposure light to realize super-resolution imaging by using a mask with a period of 230 nm and linewidth of 100 nm. We discuss the selection of the parameters multi-film with equal thickness, and achieve a sufficient contrast and high intensity through numerical simulation, then verify the obtained results by the plasmon nanolithography technique. Choosing the best scheme, we achieve large-area super-resolution images with the subwavelength structure.

Keywords: surface plasmon, super-resolution imaging, nanolithography technique

PACS: 42.50.Gy, 52.40.Hf, 85.40.Hp

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2011CB301800-G), the International Cooperation Project, China (Grant No. 2011DFA63190), and the State Key Laboratory Foundation for Micro-Fabrication Optical Technology of China (Grant No. 201101445).

† E-mail: zhaoq@uestc.edu.cn; lxx@ioe.ac.cn