

高出力レーザー対応光学部品の超平坦化

多幡 能徳・平田 和也・森本 隆志・原口 康史

Realization of Ultra-Flat Surfaces in Optical Components Accepted for High Power Laser Applications Using Non-Adiabatic Optical Near-Field Etching

Yoshinori TABATA, Kazuya HIRATA, Takashi MORIMOTO and Koshi HARAGUCHI

Optical near-field etching is proposed as a new method of surface flattening. In this method, synthetic silica substrate surface is flattened through a non-adiabatic process by irradiation of a continuous wave laser ($\lambda = 532$ nm) in the presence of Cl_2 gas. Cl_2 molecules located adjacent to surface protrusions are dissociated with energy of near field light generated by laser irradiation. Produced Cl radicals etch the surface protrusions selectively and therefore surface is flattened. An ultra-flat surface of the synthetic silica substrate with a minimum average surface roughness Ra of 1.37 Å was realized.

Key words: optics, high power laser, ultra-flat surface, optical near field, etching

近年、高出力レーザーや高輝度ランプ、LED など高出力光源を用いた加工・露光分野において、寸法の微細化に伴い、光源の短波長化、高出力化が進展している。それら光源の高い光エネルギー密度による、ミラーやレンズなど光学素子の劣化や損傷が問題となっている。光学素子の劣化や損傷の要因のひとつとして、光学素子の表面粗さに起因する入射光の散乱・吸収が挙げられ、高出力光においてはその影響が無視できないレベルに達する。われわれの実験では、光学素子の表面粗さを低減することにより、光学素子表面の凹凸による散乱損失が低減され、光利用効率が向上し、耐パワー性が向上することを確認している。

一般的には、光学ガラス基板や結晶などの表面の平坦化は、化学機械研磨 (CMP) により行われているが、研磨剤の粒径や、研磨パッド表面の凹凸などが影響し、理想的な平坦面の実現は困難となっている。

上記の問題を解決するための基礎技術として、われわれは、従来の CMP ではない全く新しい手法である近接場光と気体分子との非断熱的な光化学反応に基づくエッチング (近接場光エッチング) を用いて、レーザー用光学素子基板をサブナノメートルまで平坦化する技術を開発した。本技術で得られる光学素子を使用することで、耐パワー性や

光の利用効率が向上すれば、光源内部の光学系の設計が容易になり、光源装置の高出力化、小型化、低価格化などの波及効果もたらされると考えられる。

本稿では、高出力光源に対応可能な、光学部品の表面を超平坦に加工する技術について紹介する。

1. 背景

1.1 表面粗さとレーザー耐性

光学素子基板の表面粗さは、一般的に R_a 値で表される。この R_a 値は、ある評価長さにおける表面粗さの平均線 (面) からの絶対偏差の平均値で表される (図 1)。

$$R_a = \frac{1}{l} \int_0^l |f(x)| dx \quad (1)$$

l は評価長さ、 $|f(x)|$ は平均線からの高さの絶対値であり、 dx は表面形状測定時の面内分解能に対応する。この R_a 値は、光学素子のレーザー耐性に大きな影響を与える。表面が粗い (R_a 値が大きい) 基板では、光学素子の表面における光散乱や吸収が大きくなり、光学素子の劣化や損傷の要因のひとつとなっている。われわれの実験では、図 2 に示すように、 R_a 値の低減によりレーザー耐性が向上することが確認されている。

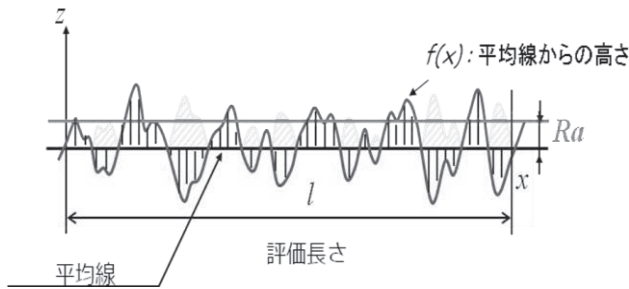


図1 表面粗さ (R_a 値).

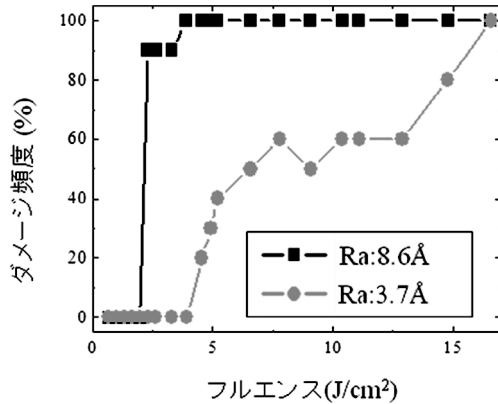


図2 Nd:YAG レーザー THG 用 AR コート時のレーザー耐性.

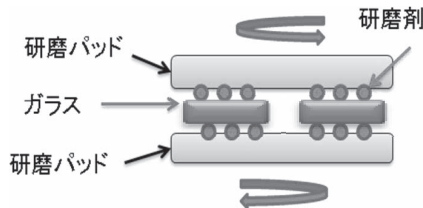


図3 化学機械研磨の概念図.

1.2 従来技術

一般的に、光学素子に使用されるガラス基板の平坦化は、CMP により行われている。CMP では図3に示すように、回転する研磨パッドの間にガラス基板を挟み、研磨剤を流し込みながらガラス基板を研磨する。この手法は研磨パッドや研磨剤によりガラス基板を削り取る手法であるため、研磨パッドの平坦性や研磨剤の粒径、不純物の混入などにより、スクラッチといわれるひっかけ傷や、ディグといわれる穴状の傷が多く発生する(図4)。CMP で研磨したガラス基板の表面粗さ (R_a 値) は、高精度に研磨されたものでも 1 nm 前後である。CMP における研磨剤の粒径は、最も小さいものでも数十 nm であることに加えて、研磨パッド表面の凹凸などが影響し、さらなる表面粗さの低減は困難となっている。一方、レーザー耐性など光学素子

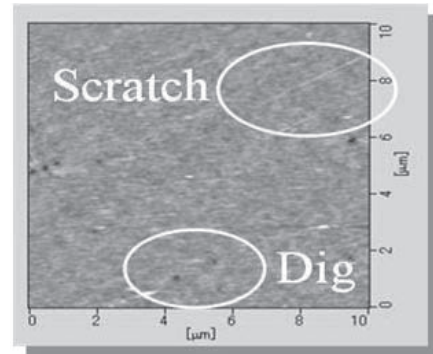


図4 化学機械研磨によって研磨したガラス基板の表面像.

の性能向上のためには、 R_a 値を 0.1 nm 程度以下とすることが望ましい。また、CMP によるガラス研磨の研磨剤として最も広く使われる酸化セリウムはレアアースであり、資源の面からも代替技術が求められている。

2. 近接場光エッチングの原理

前述の問題を回避するためには、研磨剤を使用せず、非接触で平坦化する手法が望ましい。また、従来手法では達成できないレベルの表面平坦性を実現するため、われわれは、近接場光を用いたエッチング手法を考案した。近接場光の特徴的な現象のひとつである「非断熱光化学反応」¹⁾によって、従来の伝搬光では達成できないサブナノメートルオーダーの加工が可能となる。以下に、近接場光を用いたエッチングの原理および優位性について述べる。

図5は、通常の伝搬光による分子の解離過程(断熱過程)を表したものである²⁾。横軸は分子の原子間距離、縦軸は電子のエネルギー準位を示す。断熱過程では、照射された光のエネルギーを電子が吸収することによって、電子が基底準位から、励起準位に直接励起されて解離するという過程をたどる。この場合、電子を励起準位に上げるために、高い光子エネルギーが必要となり、紫外域の高出力レーザーなどを使用する必要がある。

一方、物質表面に光を照射したときに局所的な凸部に発生する近接場光では、電場ポテンシャルが空間的に急激に減衰するため、分子内での電場強度が異なり、分子振動(フォノン)が励起される。フォノンと近接場光が結合した準粒子が形成され、そのエネルギーにより、分子が解離する(図6)。このような現象を非断熱光化学反応とよぶ。表面の凸部のみで発生する近接場光によって、伝搬光では実現できないサブナノメートルオーダーの平坦化が可能となる。

次に、近接場光エッチング技術の特色・独創性を、光学素子として需要の大きい合成石英基板を用いた場合につい

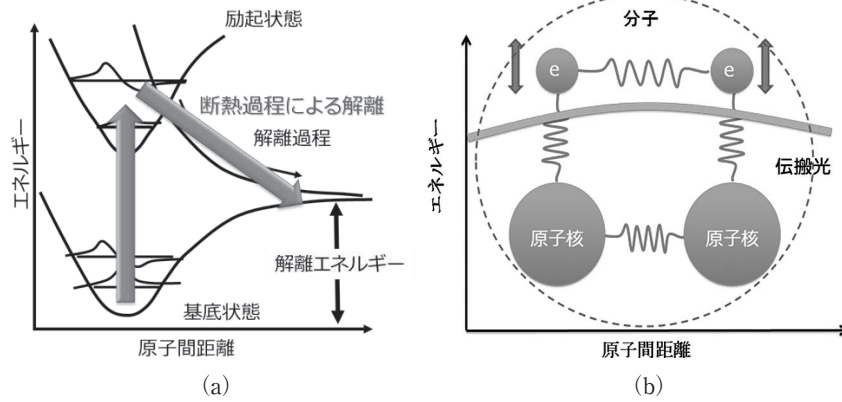


図5 伝搬光による分子の解離過程. (a) 断熱光化学反応による解離過程, (b) 原子, 電子の振動状態.

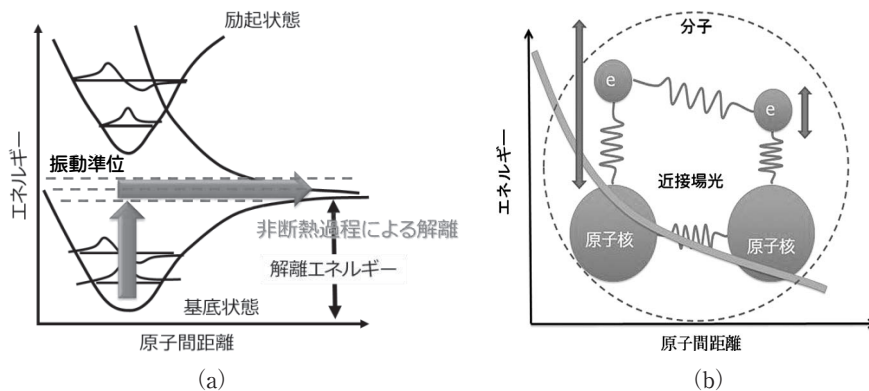


図6 近接場光による分子の解離過程. (a) 非断熱光化学反応による解離過程, (b) 原子, 電子の振動状態.

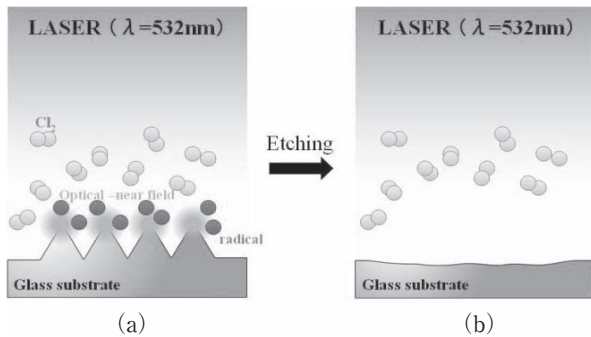


図7 近接場光エッチングの原理のイメージ図. (a) 平坦化前, (b) 平坦化後.

て詳述する.

合成石英をエッチングする気体として, 塩素ラジカルを用いる. 塩素分子は常温では合成石英とは反応しない. 塩素分子雰囲気中に合成石英基板を設置し, レーザー光 (Nd:YAG レーザーの第二高調波, 波長 532 nm) を照射する (図7 (a)). このレーザー光は, 波長が塩素の光吸収端波長である 400 nm より長い³⁾ ため塩素分子には吸収されず, 塩素分子は解離しない. また, 照射するレーザーの平

均的なエネルギー密度は, 合成石英を損傷させるエネルギー密度よりも低い. 一方, レーザー光により基板表面の局所的な凸部に近接場光が発生し, 発生した近接場光の領域に飛び込んできた塩素分子は, 非断熱光化学反応により解離し, ラジカル化する (図7 (a)). 発生した塩素ラジカルは, 塩素分子とは異なり, 合成石英と反応して基板表面をエッチングする. この反応は近接場光の発生する表面の凸部近傍のみで起こるため, 凸部のみが選択的にエッチングされ, 基板の表面が平坦化される. エッチングにより最終的に合成石英基板表面の微細な凸構造がなくなり, 完全に平坦化されると近接場光は発生しなくなるため, 反応は自動的に停止する (図7 (b)). この自律的なエッチング過程により, 特殊な研磨装置や, 研磨パッド, 研磨剤, 近接場光発生のための光ファイバーなどを必要とせず, レーザー光を照射するだけで, 従来の研磨法の限界を超える超平坦な表面状態を実現できる⁴⁾.

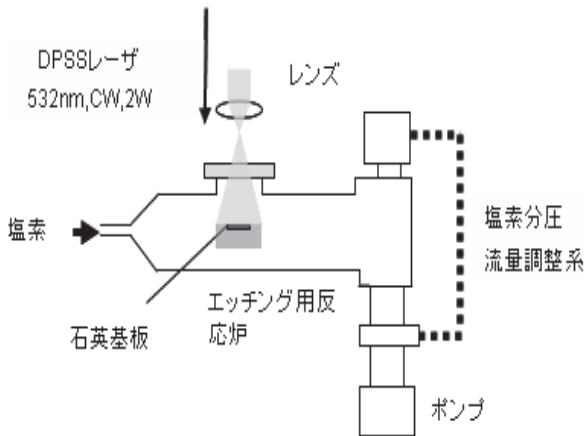


図8 近接場光エッチング装置の概略図.

3. 実験および結果

3.1 実験装置

前述した近接場光の基本原理をもとに、近接場光エッチング装置を製作した。

図8に示す概略図のように、レーザー光を入射するための窓付きのエッチング用反応炉の中に、CMPにより研磨した合成石英基板を設置し、塩素ガスを導入した。塩素ガスは圧力、流量等が調整可能である。そして、レーザー光

(波長 532 nm, CW, 2W) を、光量分布がある程度均一となるようにレンズでビーム径を拡大し、直径 30 mm の合成石英基板に照射した。図9は、近接場光エッチング装置およびエッチング中の様子である。

3.2 実験結果

図10は合成石英基板の近接場光エッチング前後の表面状態を表す原子間力顕微鏡 (AFM) 像である。CMPによって研磨した合成石英基板の表面に存在する微小な突起が近接場光エッチングにより除去され、表面粗さが低減していることが確認できる。

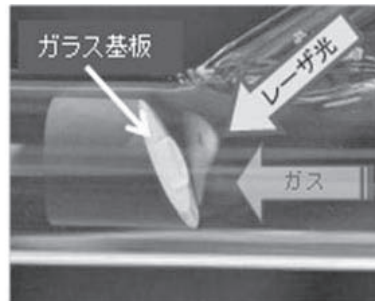
図11に、近接場光エッチングの時間と、AFMを用いて測定した合成石英基板の \bar{R}_a 値の関係を示す⁴⁾。 \bar{R}_a 値は、図12に示す9か所の位置における測定値の平均値である。近接場光エッチングの時間の増加に伴い、単調に表面の粗さが低減していることがわかる。

本平坦化技術でエッチングした合成石英基板に誘電体多層膜を施した高出力紫外線レーザー用ミラーを製作した。そのミラーのレーザー耐性をISO 11254に準拠した標準試験により評価した結果、レーザー耐性が従来製品の約2倍まで向上した。

近接場光エッチングは、従来のCMPで必要な研磨パッ

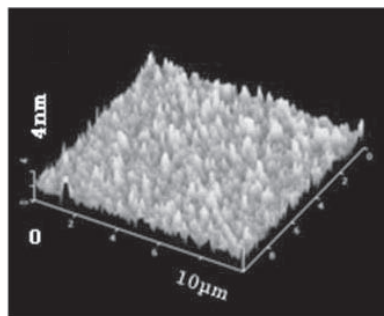


(a)

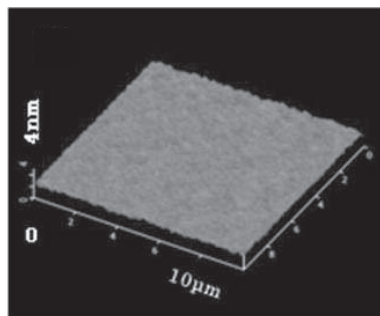


(b)

図9 近接場光エッチング装置。(a) 装置外観, (b) エッチングの様子。



(a)



(b)

図10 近接場光エッチング前後の表面平坦性比較。(a) エッチング前 (R_a 値 = 6 Å), (b) エッチング後 (R_a 値 = 1.37 Å).

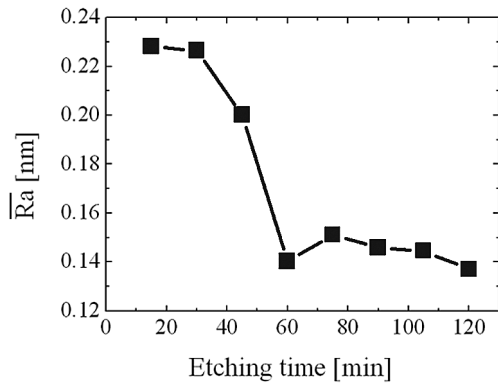


図 11 近接場光エッチング時間と表面平坦性.

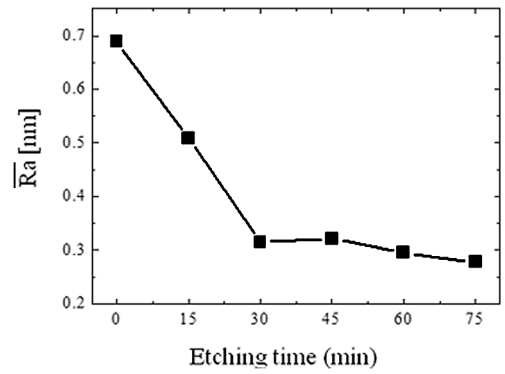


図 13 曲面基板の平坦化例.

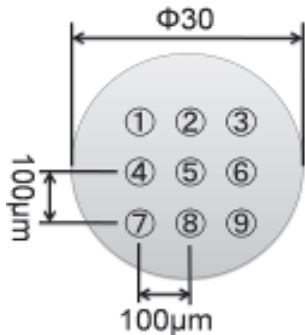


図 12 表面粗さ測定位置.

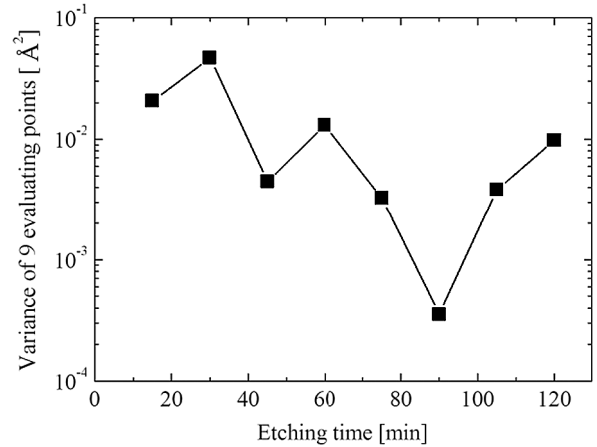


図 14 R_a 値の面内分布.

ドを使用せずに表面の平坦化が可能であり、平面用の近接場光エッチング装置に特別な改良をせずに、レンズなどの曲率を有するサンプルにも適用できる。 $R=50$ mm、直径 50 mm の合成石英製レンズに近接場エッチングを適用した結果、平面基板の場合と同様に、エッチング時間に対し単調に \bar{R}_a 値が減少した (図 13)。

さらには、マイクロレンズや、回折格子、構造的な無反射層を有する基板など、ナノメートルオーダーの複雑な三次元的構造をもつサンプルであっても適用可能であると考ええる。

4. 考 察

前章までに述べた通り、エッチング時間の増加に伴い \bar{R}_a 値が単調に減少し、合成石英基板の表面がサブナノメートルオーダーで平坦化され、レーザー耐性が向上した。光学素子性能をより向上させることを目指し、さらに平坦性を高めるための考察を以下に述べる。

図 11 にみられるように、エッチング時間が 60 分を超えたあたりから、 \bar{R}_a 値低下の度合いが緩やかになっている。また、面内 9 点の R_a 値の分散が、エッチングがある程度進行した後に増加していることがわかった (図 14)。これは、近接場光エッチングの進行に伴い、基板表面の微細な

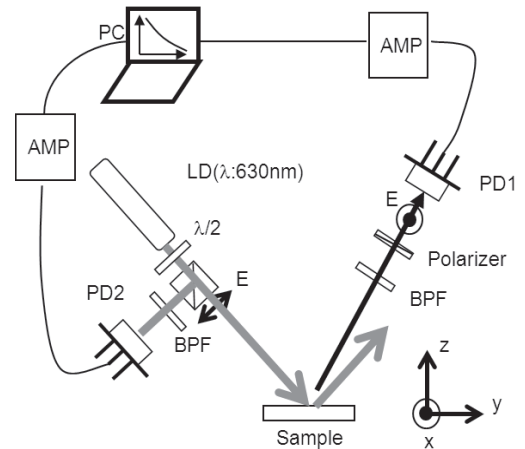


図 15 散乱光による平坦性モニター.

形状が変化し、それによって近接場光強度分布も変化することに起因するものと予想される。そこでわれわれは、近接場光エッチングによる表面構造の変化を予測可能とした有限差分時間領域法によるシミュレーションを実施した⁵⁾。

シミュレーションから、平坦性をさらに高める条件が存在するを見いだした。その条件をリアルタイムに近接

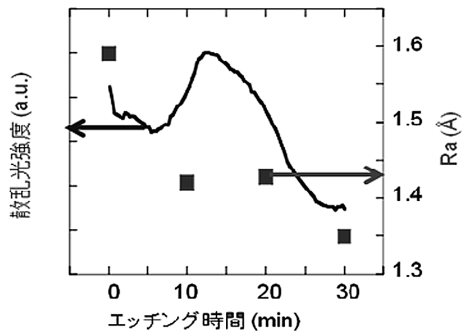


図 16 散乱光強度と R_a 値との対応関係.

場光エッチングに反映するために、散乱光による平坦性モニターを考案した (図 15)⁶⁾。プロセス中の基板の表面散乱光強度と、AFM による表面粗さ測定値との対応関係を図 16 に示す。

近接場光エッチングのプロセス中に散乱光強度をモニターすることにより、そのときの R_a 値を見積もることが可能となる。散乱光モニターを近接場光エッチング装置に導入し、リアルタイムに表面状態をモニターすることで、さらなる平坦化が可能と考える。

5. 応 用

近接場光エッチング技術はミラーやレンズなど光学素子の性能向上に寄与し、高出力レーザーおよび高出力レーザー加工装置、半導体露光装置などの高出力化に対応できる。また、このエッチング方法は、光学素子や光学素子を使用する装置だけではなく、半導体デバイスや太陽電池、発光ダイオードや MEMS 部品、液晶ディスプレイ、ハードディスク、光ディスクなど、幅広い分野・製品に適用可能であると考えられる。

また、近接場光は平坦化の対象となる基板自身もつ微細な凸部において発生するため、近接場光エッチングによって得られる基板表面は、従来技術では得られないサブナノメートルオーダーの超平坦性を有する。従来、近接場

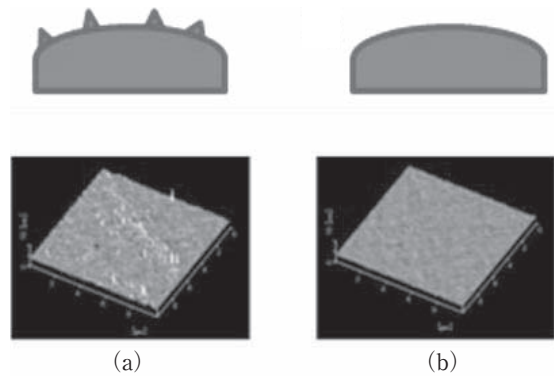


図 18 レンズへの適用例. (a) 平坦化前, (b) 平坦化後.

光発生に用いられるプローブやフォトマスクも不要であるため、生産性も高い。エッチングに必要な光源としては、レーザーだけではなくインコヒーレントな光源も使用可能と考えられ、高出力の LED やランプなどを用いて、大面積一括でエッチングできると思われる。また、ガラスのように透明な基板をエッチングする場合、光が到達する限り複数枚重ねて同時にエッチングが可能であるため、CMP と比較して生産性が向上する (図 17)。さらには、曲率をもつ基板や、従来の CMP では平坦化が難しいと考えられる三次元構造体、マイクロレンズなどの微小部品の表面、光ファイバーのような円筒状の素子の内面など、多様な形状にも適用できる。図 18 はレンズへの適用例である。また、図 19 に示すように、樹脂材料や結晶などさまざまな材料にも適用可能である。本手法はドライプロセスであるため、既設の生産ラインなどに容易に組み込むことが可能である。

本技術は、光学素子の性能向上にとどまらず、半導体露光装置やレーザー加工装置および光源装置への縦断的な波及効果が大きいと考えられる。装置内部の光学系が改善され、装置の小型化、低価格化などの大きな波及効果が期待できる。また、本技術を応用した光学素子を使用する装置

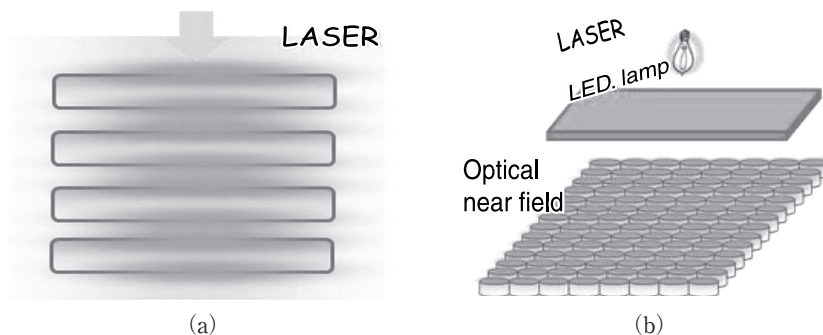


図 17 量産化時のサンプル配置例. (a) 重ね合わせ配置, (b) 多数枚配置.

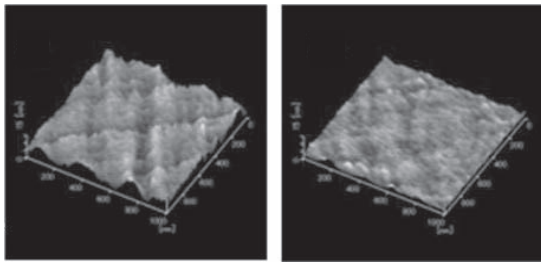


図19 樹脂材料 (PMMA) への適用例. (a) 平坦化前, (b) 平坦化後.

において光利用効率が向上し、その結果、プロセスの時間の短縮化や、装置内部での発熱の低減がなされ、省エネルギー化にも寄与できるものと考えられる。

本技術の応用範囲は広く、半導体産業、自動車産業、太陽電池産業、情報機器産業など多くの産業に寄与できる。光学材料のみならず、さまざまな媒質、形状に適用できるため、半導体デバイスや太陽電池、発光ダイオード、ハードディスク、光ディスク、液晶ディスプレイや MEMS 部品製造などへの応用が期待される。継続的に技術開発を遂行し、多種多様な材料や形状へ適用し、さまざまな分野への展開を進めたい。

本研究は、NEDO「エネルギー使用合理化技術戦略的開発 / 先導研究 / 近接場光エッチングを用いた光学素子用基板表面のサブナノ平坦化技術の開発」、NEDO「省エネルギー

革新技術開発事業 / 挑戦研究 / 近接場光相互作用を用いた自己完結型超平坦物質形成技術の開発」の一環として行われたものである。指導を受けた東京大学大学院工学系研究科電気系工学専攻 大津元一教授、八井崇准教授および同研究室の皆様、徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部 原口雅宜教授および同研究室の皆様にご感謝する。

文 献

- 1) T. Kawazoe: "Exposure dependence of the developed depth in nonadiabatic photolithography using visible optical near fields," *J. Nanophotonics*, **1** (2007) 011595.
- 2) 大津元一 (編著): ナノフォトニックデバイス・加工 (オーム社, 2008).
- 3) R. Kullmer and D. Bäuerle: "Laser-induced chemical etching of silicon in chlorine atmosphere, I. Pulsed irradiation," *Appl. Phys. A*, **43** (1987) 227-232.
- 4) T. Yatsui, K. Hirata, W. Nomura, M. Ohtsu and Y. Tabata: "Realization of an ultra-flat silica surface with angstrom-scale average roughness using nonadiabatic optical near-field etching," *Appl. Phys. B: Lasers Opt.*, **93** (2008) 55-57.
- 5) Y. Fujiyoshi, M. Haraguchi, M. Fukui and T. Okamoto: "Numerical simulation for nonadiabatic optical near-field etching," *The 7th Asia-Pacific Conference on Near-field Optics* (2009) pp. 25-27.
- 6) T. Yatsui, K. Hirata, Y. Tabata, W. Nomura, T. Kawazoe, M. Naruse and M. Ohtsu: "In situ real-time monitoring of changes in the surface roughness during nonadiabatic optical near-field etching," *Nanotechnology*, **21** (2010) 355303.

(2012年7月10日受理)