

光子の軌道角運動量重ね合わせ状態検出用ホログラム作製のための 電子線レジストの多重露光特性の研究

1733100 早瀬 茂法

主任指導教員：宮本 洋子 指導教員：清水 亮介

1 はじめに

本論文の目的は光子の軌道角運動量重ね合わせ状態検出用ホログラムを作製する際に使用する電子線レジスト gL1000-5(グルーオンラボ社製)の特性測定についてドーズ量および露光回数と加工深さとの関係を詳しく調べることである。

近年、量子力学の基本的な性質を直接情報通信や情報処理に応用する量子情報科学の研究が急速に進展している。この量子情報科学において、量子もつれ合いが中心的な課題である。軌道角運動量に関する量子もつれ合いの検証のためには、異なる軌道角運動量状態の重ね合わせ状態で検出を行う必要がある。光子を軌道角運動量状態の重ね合わせ状態で検出するために、中心に欠陥構造を持つ回折格子である軌道角運動量状態検出用のホログラムが用いられる。

本研究では光子の軌道角運動量重ね合わせ状態の検出方法として経路干渉計法を想定してレジストの特性測定を行う。この方法では、ホログラムの欠陥位置と光軸の中心を一致させて行うため、余分な方位角成分の混入を防ぐことができる。経路干渉計法では複数の回折次数を用いるため、レジストの加工深さが重要である。

電子線レジスト gL1000-5 はスピンコートによる膜厚が厚く、ホログラム作製に向いている。検出用ホログラムは電子線露光による電子線レジストへの凹凸の加工によって作製する。加工の深さには、電子線レジストへの単位面積当たりに照射される電子の電荷量を示すドーズ量の影響が特に大きい。そのため、先行研究 [3] と本研究において、ドーズ量と電子線レジストの加工の深さとの関係を調べた。

先行研究 [3] においては同一の総ドーズ量に対し異なる加工深さが得られた。先行研究では、その原因は初期ドーズ量(多重露光する際の1段目のドーズ量)の違いからだと考え、初期ドーズ量に対する補正を考慮してホログラム用のドーズ量を決定した。しかし作製したホログラムは必要な加工深さに達しなかった。

そこで本研究では、同一の総ドーズ量に対し異なる加工深さが得られた原因は、初期ドーズ量ではなく重ね露光の回数にあると考え、ドーズ量および露光回数と加工深さとの関係について調査を行った。

2 軌道角運動量重ね合わせ状態検出方法

光子の軌道角運動量状態とは、光軸まわりの方位角 φ に対する複素振幅の依存性が $\exp(im\varphi)$ で表されるモードに光子が1個存在する状態である。この複数の m に対応する状態を重ね合わせたものが軌道角運動量重ね合わせ状態である。

光子の軌道角運動量重ね合わせ状態検出用ホログラムは、1次回折光に位相因子 $\exp(im_H\varphi)$ を付加するホログラムであり、中心に欠陥を持つ回折格子の構造になっている。

図1に経路干渉計法による軌道角運動量重ね合わせ状態の検出系を示す。図中の B_n は回折効率と適切に置かれた減衰器によって決まる振幅である。 φ は位相変調器によって決まる位相である。量子状態 $|l(n, r)\rangle$ の l は方位角モード指数、 n は回折次数、 r はホログラムの欠陥位置と光軸の中心との距離である。測定対象のビームをホログラムの中心に入射する。 m_H 次のホログラムは n 次回折光に $\exp(im_H n\varphi)$ の位相変調を与える。ホログラムの中心に $l = m_0$ の光を入射させた場合、ホログラムで反射後の0次回折光は $l = -m_0$ となり、1次回折光は $l = m_H - m_0$ となる。その後、ホログラムの0次回折光と1次回折光をそれぞれシングルモードファイバ(SMF)でフィルタする。SMFは $m = 0$ 成分のみ通過するため、 $m_H = 1$ のホログラムの場合、0次回折光側のSMFは、入射光の $m_0 = 0$ 成分だけを通過させ、1次回折光側のSMFは、入射光の $m_0 = 1$ 成分だけを通過させる。その2つのビームをビームスプリッタによって重ね合わせる。ビームスプリッタ後に検出器を設置することにより、この2つの軌道角運動量状態の特定の重ね合わせ状態を検出することができる。

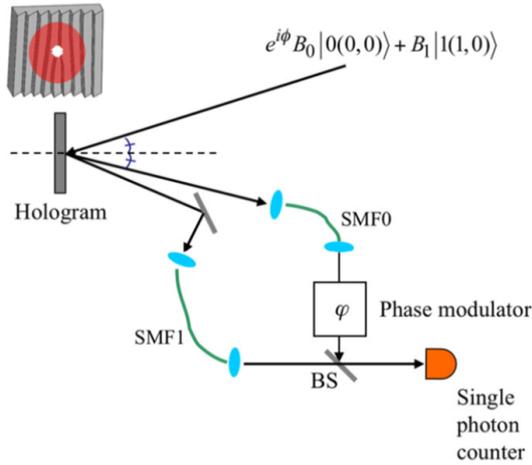


図 1: 経路干渉計法の実験系 [2]

3 ホログラムの設計

ホログラムには反射型ホログラムと透過型ホログラムがある。本研究でターゲットとしているホログラムは反射型ブレイズ状位相ホログラムである。ブレイズ状ホログラムとは物体光と参照光の位相差を $(0, 2\pi]$ に折りたたみ、光学的な距離として記録したホログラムである。干渉縞を記録した正弦波回折格子と比べ、ブレイズ状位相ホログラムの方が回折効率が高い。また、反射型とする理由はホログラム基板内をビームが通過することがないため、伝搬媒質による影響を考慮しなくてよいためである。

3.1 ホログラムパターン

ラゲールガウスビームを発生させるホログラムを作製する。物体光は円筒座標系 (ρ, φ, z) に対して複素振幅が $\exp(im\varphi)$ であり、 z 方向に伝搬するビームとする。

$$u_o = A_o \exp[i(k_z z + m\varphi)] \quad (1)$$

参照光は z 軸に対してわずかに傾いて伝搬する平面波とする。

$$u_r = A_r \exp[i(k_x x + k_z z)] \quad (2)$$

$z = 0$ での物体光と参照光の位相差を $(0, 2\pi]$ の範囲に折り畳んだものをホログラムのパターンとする。

$$I = (k_x x - m\varphi) \bmod 2\pi \quad (3)$$

このホログラムは、図 2 に示すように、中心に欠陥がある回折格子の構造をしている。

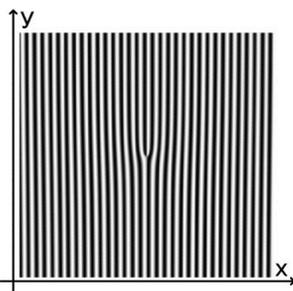


図 2: ホログラムによる位相変調構造 ($m = -1, k_x < 0$, 黒～白は $0 \sim 2\pi$ に対応)[2]

3.2 必要な加工深さと加工方法

ホログラムが十分に薄いと仮定し、ブレイズ状位相ホログラムをブレイズ状回折格子に近似して回折効率を求めると、1次回折光の回折効率 η_1 と位相変調幅 t との関係は、次のようになる。[3][4]

$$\eta_1 = \text{sinc}^2 \left(\frac{t}{2\pi} - 1 \right) \quad (4)$$

また、階段状の構造によるブレイズ構造の近似について検討すると、階段状の回折格子のステップ数 N と s 次回折光の回折効率 $\eta_N(s)$ の関係は次のようになる。[3][4]

$$\eta_N(s) = \left| \frac{1}{N} \sum_{l=0}^{N-1} \exp \left(-i \frac{t - 2\pi s l}{N} \right) \right|^2 \text{sinc}^2 \left(\frac{s}{N} \right) \quad (5)$$

軌道角運動量重ね合わせ状態検出用ホログラムは 0 次回折光と 1 次回折光の光強度比が 1:1 になる必要がある。式 (4) と式 (5) から $t = \pi$ のとき 0 次回折光と 1 次回折光の光強度比が 1:1 となる。位相変調幅はホログラムに加工する凹凸の加工の深さによって決まる。反射型ホログラムに必要な加工の深さは次の式で求めることができる。[3]

$$h = \frac{\lambda}{2\pi} \frac{N-1}{N} \frac{t}{2} \quad (6)$$

また透過型ホログラムの加工の深さは以下の式で求めることができる。[3]

$$h = \frac{\lambda}{n-1} \frac{N-1}{N} \frac{t}{2\pi} \quad (7)$$

ここで、 n は透過媒質の屈折率、 λ は再生光の波長、 N はステップ数である。反射型ホログラムを作製する場合、式 (6) から $t = \pi$ 、 $N = 4$ 、 $\lambda = 830\text{nm}$ のとき必要な加工深さは 1500\AA となった。波長は発生させる予定のもつれ合い光子対の波長を想定した。ここから、1 回目、2 回目、3 回目の露光で必要な加工深さを求めた結果を表 1 に示す。また、透過型ホログラムを作製する場合、必要な加工深さは、屈折率を 1.5 とすると式 (7) から 6200\AA と求められる。反射型ホログラムの方が、透過型ホログラムに比べて必要な加工深さが浅い利点がある。

表 1: 反射型ホログラムの作製に必要な加工深さ

露光回数	必要な加工深さ
1 回目の露光	500 \AA
2 回目の露光	1000 \AA
3 回目の露光	1500 \AA

ホログラムの作製には日本電子社の電子ビーム露光装置 (JSM-7100F 型) を使用する。ガラス基板に ITO(電極) を蒸着してその上にレジストをスピコートし、図 3 の矢印の方向から電子ビームを照射する。基板上に凹凸を作製するため幅の異なる 3 枚の露光パターンを多重露光する。その後、電子ビームが当たった箇所を取り除くために現像を行う。その結果 4 段の階段状の構造を実現し、理想のブレイズ構造に近似する。

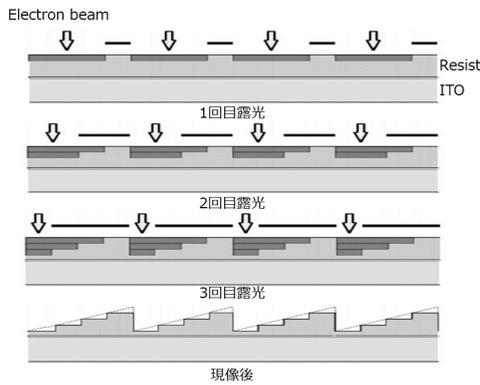


図 3: 階段構造で近似されたブレード状回折格子の作製方法

4 電子線レジスト gL1000-5 の特性調査方法

ホログラムを作製するためには、電子線による露光量を正しく制御し、それによって加工後の凹凸の深さを正確に制御しなければならない。図 2 のパターンを露光すると 1 周期当たりの長さが短いため、後述の方法で正確にドーズ量と加工深さとの関係を調べることは困難である。そのため本研究ではドーズ量と加工深さを調べるためのテストパターンを作製し、アルバック社製の Dektak150 を使用して加工後の凹凸を測定し、そのデータの分析を行った。基板の作製は以下の手順で行った。

1. ガラス基板の ITO が蒸着されている面にレジストをスピコートし、プリバークしてレジスト膜を固めた。
2. 電子ビーム露光装置を用いてレジスト膜に電子ビームを照射した。
3. 電子ビームを当てた箇所を取り除くために現像を行った。現像液には、2-プロパノール (IPA) と 4-メチルケトン (MIBK) を質量比 1:2 で混ぜ合わせたものを使用した。
4. アルバック社製の Dektak150 を使用し、試料の加工の深さを調べた。

4.1 電子ビーム露光装置

日本電子社の電子ビーム露光装置 (JSM-7100F 型) は、走査型電子顕微鏡に電子制御の位置決めステージをマウントし、さらに、走査型顕微鏡の電子ビームの on/off を制御するためのブランキングアンプを接続したものである。走査型電子顕微鏡は、試料の表面を電子ビームでスキャンし試料からの二次電子を検出器でとらえることによって、試料を観察する装置である。この装置のビットマップ露光は、10000 pixel×10000 pixel の画像で行う。図 4 に電子ビーム露光装置の走査方式を示す。

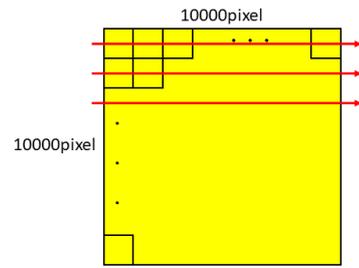


図 4: 電子ビーム露光装置の走査方式 (赤矢印:走査方向)

4.1.1 テストパターン

ドーズ量と加工深さを調査するためにテストパターンを作成した。先行研究では縦向きのパターンであったが、電子線のスキャン方向を考慮して短時間で露光できるようにパターンを横向きに設定した。図 5 は 8 回の多重露光をすることで 8 段階の加工深さを持つ基板を作成するために使用した露光パターンである。図 6 は 5 回の多重露光をすることで 5 段階の加工深さを持つ基板を作成するために使用した露光パターンである。

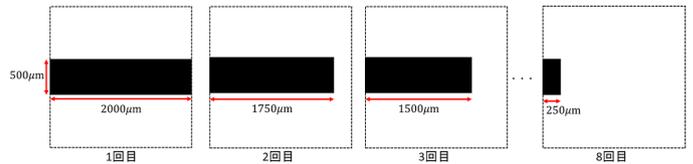


図 5: 8 段階露光用テストパターン (塗りつぶし黒: 露光位置、破線黒: 露光可能範囲の境界)

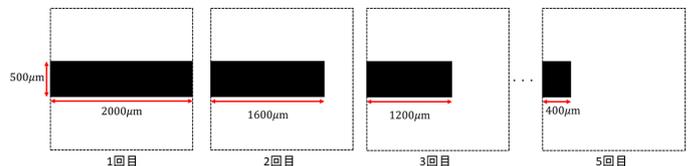


図 6: 5 段階露光用テストパターン (塗りつぶし黒: 露光位置、破線黒: 露光可能範囲の境界)

4.1.2 Dektak150

アルバック社製の Dektak150 は、精密な基準表面上の試料をサンプルステージ上のダイヤモンドの触針で直線的になぞることにより触針の鉛直方向の動きを表面形状として測定でき、表面粗さをナノメートル以下の精度で得ることができる触針式表面形状測定装置である。試料は Dektak150 の走査方向と試料の総ドーズ量変化の方向が一致するように設置した。試料の測定位置と測定方向を図 7 に示す。

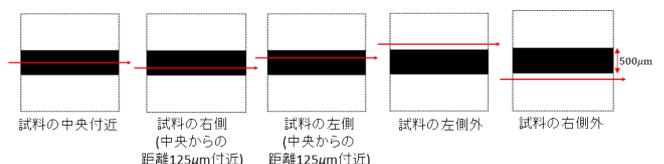


図 7: 試料の測定位置と測定方向

図7のそれぞれの測定位置を4回～6回測定し、1回目のデータを捨ててそれ以外のデータの平均をとった。同じ測定箇所でも測定したデータの中で、他の測定データと比較して値が大きく異なるデータ(以下外れデータ)がある場合はそのデータも除いた。各試料の露光パターンの右側外と左側外を測定したデータは未加工部分の高さの分布として使用した。加工した後の高さの分布は試料の中央付近と未加工部分の高さとの差により加工の深さ分布を求める。中央付近に大きなゴミや傷があった場合、試料の右側と左側の測定データの平均を中央付近の高さ分布として使用した。

4.2 データ分析方法

ここではDektak150で測定したデータの分析方法の説明を行う。

4.2.1 右側外と左側外の測定データ

右側外と左側外を測定データをグラフに表し、外れデータがあるか確認を行った。次に、外れデータを除いたデータの平均値を取り、明らかにゴミとわかる箇所をデータ上で取り除いた。その結果を右側外と左側外の高さ分布とした。

次に、右側外と左側外の高さ分布を一つのグラフに表し、右側外と左側外の高さの差の最大値を計算した。この値があまり大きくないことを確認した後、右側外と左側外の高さ分布の平均値を中央付近の未加工時の高さ分布とみなした。

4.2.2 中央付近の測定データ

右側外と左側外と同様に中央付近の測定データをグラフに表し、外れデータがあるか確認を行った。外れデータを除いたデータの平均値を中央付近の高さ分布とした。

次に、中央付近の高さ分布から右側外と左側外の高さ分布の平均値を引いた結果をグラフに表し、そのグラフを基に露光による加工深さの分析を行った。

4.2.3 ドーズ量の異なる領域の加工深さ

図6のテストパターンの場合、基板は5回の多重露光をすることで5段階の高さ変化をもつので、5段階それぞれの高さ分布、測定序盤の未加工部分と測定終盤の未加工部分の高さ分布の合計7ヶ所の分析を行った。

加工深さの算出に使用したデータの範囲は、ノイズが少なく、総ドーズ量が一定であると考えられる領域からさらに両端を除いた、比較的平坦な範囲を選択した。その後、明らかに基板上に付着していると考えられる箇所を除き、平均してその箇所における高さとした。

5 電子線レジスト gL1000-5 の特性調査

5.1 先行研究

電子線レジストの加工深さがドーズ量のみによって決まるのであれば、同一の総ドーズ量で同一の加工深さが得られるはずである。しかし先行研究では同一の総ドーズ量に

対して異なる加工深さが得られる場合があった。先行研究ではその原因は初期ドーズ量(1段目のドーズ量)の違いによるものと考え、分析を行った。その結果、ホログラム作製に必要な設計ドーズ量を1回目の露光は $5.6\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 、2回目の露光は $4.4\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 、3回目の露光は $2.5\mu\text{C}/\text{cm}^2$ とした。しかし、この設計ドーズ量でホログラムを作製したところ、レーザーを用いた回折効率の測定結果から3段目の加工深さが約 1000\AA と見積もられ、設計で想定した加工深さに対して実際の加工の深さが小さいことがわかった。

そこで本研究では同一の総ドーズ量に対して異なる加工深さが得られる原因は初期ドーズ量の違いからではなく、露光回数であると考え、分析を行った。

5.2 不良サンプルの排除

各露光位置を測定したデータが使用できるかどうかを調べるために良い試料と悪い試料を判断するための判断基準を3つ設定した。

5.2.1 右側外と左側外の高さの差

良サンプルの露光位置の右側外と左側外の測定データを図8に示す。Dektak150では測定開始位置の高さを 0\AA として各測定位置の高さを測定開始位置の高さとの相対高さとして測定している。試料のほとんどが測定位置 $2500\mu\text{m}$ で左右差の高さが最大となっていたことから、測定位置 $2500\mu\text{m}$ を判断材料とした。測定位置 $2500\mu\text{m}$ での左右の高さの差を求めると図8では 150\AA である。この値が大きいと露光前のレジストの高さ分布が平面で近似できないことを示しており、右側外と左側外の平均値を未加工部分の高さ分布として使用することが難しい。

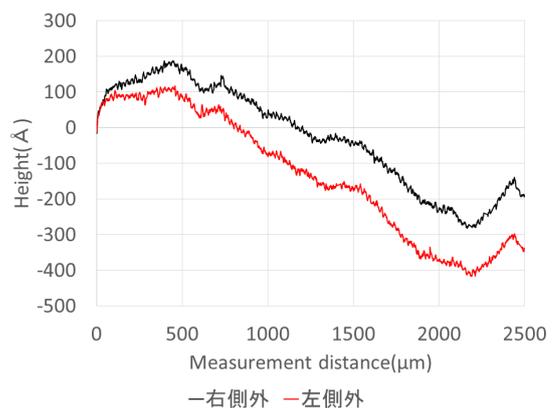


図8: 良サンプルの右側外と左側外の測定データ

5.2.2 右側外と左側外の平均の高さと中央付近の未加工部分の高さの差

良サンプルの右側外と左側外の平均の高さと中央付近の未加工部分の高さの差を図9に示す。測定位置 $2500\mu\text{m}$ での右側外と左側外の平均の高さと中央付近の高さの差を求めると図9では 10\AA である。この値が大きいことは、右側外と左側外の平均の高さと中央の高さ分布が未露光

箇所では一致していないことを示しており、露光前の高さとして右側外と左側外の平均の高さを使用できないということである。

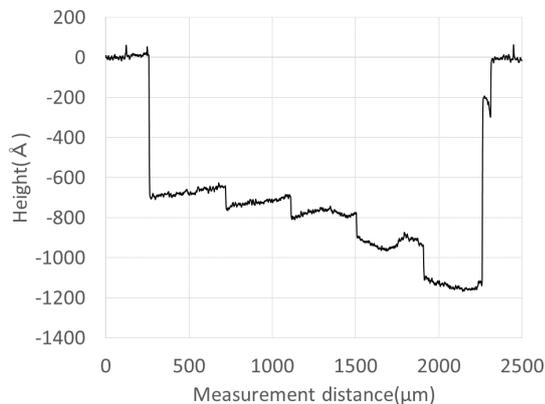


図 9: 良サンプルの中央付近の高さと左右外側の高さとの差

5.2.3 総ドーズ量が一定と考えられる領域の高さの標準偏差

良サンプルの測定位置 $250\mu\text{m}\sim 750\mu\text{m}$ (1 段目) の加工深さを図 10 に示す。加工深さの算出に使用したデータの範囲 (赤破線内) の標準偏差を求めると図 10 では 11Å である。この値が低いサンプルを良サンプルと判断した。

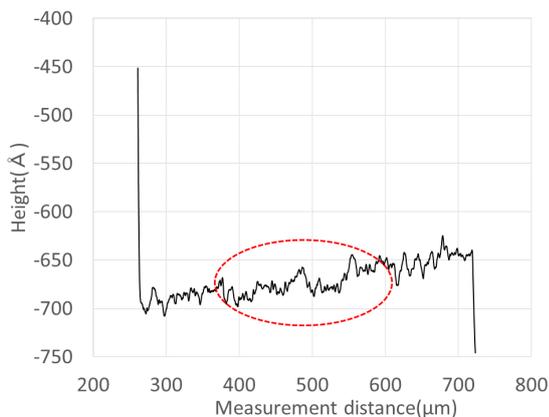


図 10: 良サンプルの測定位置 $250\mu\text{m}\sim 750\mu\text{m}$ の加工深さ

6 多重露光特性

作製したサンプルの中で不良サンプルを排除を行い、多重露光特性を調べた。

各基板、各露光位置における左右外側の高さの差と左右平均と中央の未露光部分との高さの差のサンプル間の分布を図 11 に示す。

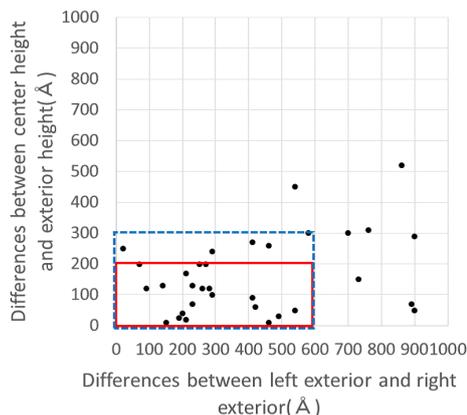


図 11: 左右外側の高さの差と左右平均と中央の未露光部分との高さの差

図 11 において赤実線内は左右外側の高さの差が 600Å 以下かつ左右平均と中央の未露光部分との差が 200Å 以下の範囲を示している。また青破線内は左右外側の高さの差が 600Å 以下かつ左右平均と中央の未露光部分との差が 300Å 以下の範囲を示している。

測定基板が概ね平らに傾いていれば右側外と左側外の平均を取ることで中央の未露光部分の高さを推定することが可能である。しかしながら平らでなく曲がってれば、右側外と左側外の平均を取ることで中央の未露光部分の高さを推定することができない。また、総ドーズ量と加工深さのグラフを作成するために全体のサンプル数の約 75% を良サンプルとなるように設定した。以上のことから、良サンプルの判断基準を、左右外側の差が 600Å 以下であり、かつ左右平均と中央付近の未露光部分との高さの差が 300Å 以下であるものとした。

各試料の総ドーズ量が一定と考えられる領域の高さの標準偏差をまとめたグラフを図 12 に示す。

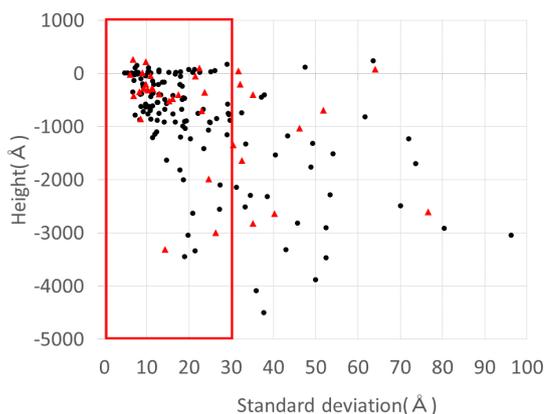


図 12: 総ドーズ量が一定と考えられる領域の高さの標準偏差 (黒丸:図 11 において左右差が 600Å 以下かつ左右平均と中央の未露光部分との差が 200Å 以下の範囲にある試料 赤三角:図 11 において左右差が 600Å 以下かつ左右平均と中央の未露光部分との差が 200Å 超 300Å 以下の範囲にある試料)

図 12 中の黒丸は図 11 において左右差が 600\AA 以下かつ左右平均と中央との差が 200\AA 以下の範囲にある試料、赤三角は左右差が 600\AA 以下かつ左右平均と中央との差が 200\AA 超 300\AA 以下の範囲にある試料の結果である。

低ドーズ量の領域では総ドーズ量が $1\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 変化することから、図 12 の標準偏差 30\AA 以下 (赤実線内) を良サンプルと判断した。図 12 の赤実線内の黒丸の試料のドーズ量と加工深さのデータを図 13 に示す。

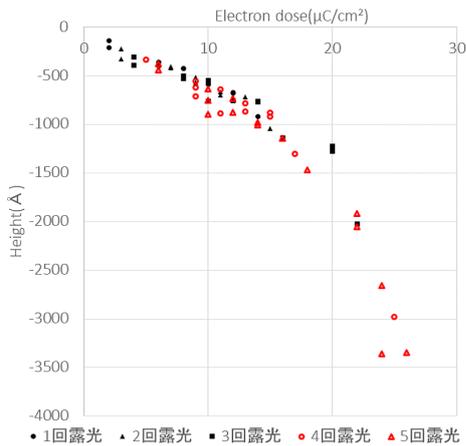


図 13: ドーズ量と加工深さ (図 12 の標準偏差 30\AA 以下の黒丸の試料)

7 考察

7.1 多重露光特性に関する考察

総ドーズ量が $1\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 変わると加工深さが約 50\AA 変化することから、標準偏差が 30\AA 以下のデータ (図 13) について考察する。図 13 では、露光回数が違って加工深さに大きな変化はない。しかしながら加工深さは総ドーズ量が大きい方がドーズ量の変化に敏感であるため、本研究で扱った $0\sim 30\mu\text{C}/\text{cm}^2$ に対してさらに総ドーズ量の範囲を広げると、露光回数の影響が現れてくる可能性がある。また、図 13 では総ドーズ量 $15\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 以上のデータが少ないことから、この範囲の試料を増やし、分析することで露光回数が加工深さに与える影響が明らかになる可能性もある。

7.2 ホログラム、テストパターン作製に関する考察

実験方法について考察を行う。本研究においてテストパターンを作製する手順は以下の通りである。

1. ガラス基板の洗浄をする。
2. 電子線レジスト (gL1000-5) をスピンコートする。
3. 光学顕微鏡で観察しながらレジスト膜の均一かつ傷がない箇所を露光位置として選定する。
4. 電子ビーム露光装置を用いて露光する。
5. 現像液 (薬品処理) によって露光した箇所を溶解する。

この作業工程では電子ビーム露光装置を用いて露光する前に光学顕微鏡で露光位置を決めるが、このとき光学顕微鏡で観察した画像内でレジスト膜が不均一か確認し、

不均一な基板は露光前に排除して膜厚が一定の基板を露光する。そうすれば効率的に良いサンプルを作製することが可能であると考えられる。またこの作業工程はホログラムを作製する際でも同じであることからホログラム作製の効率化にも繋がると考えている。

8 まとめ

本研究では電子線レジスト gL1000-5 を用いたホログラム作製について、ドーズ量と露光回数の両方に着目して加工深さの影響を調べることにした。不良サンプルを排除し、電子線レジストの多重露光特性を調べた結果、以下のことがわかった。

1. 不良サンプルの条件を以下のいずれかを満たすものと決定した。
 - 右側外と左側外の高さの差が 600\AA を超えること。
 - 右側外と左側外の平均の高さと中央付近の未加工部分の高さの差が 200\AA を超えること。
 - 総ドーズ量が一定と考えられる領域の高さの標準偏差が 30\AA を超えること。
2. 加工深さ 2000\AA 程度までは露光回数による影響は小さく、本研究のデータを用いてホログラム作製が可能である。

参考文献

- [1] 川瀬大輔, 「光子の軌道角運動量もつれ合いの生成と制御に関する研究」, 北海道大学博士論文, (2009)
- [2] Miyamoto et al., “Detection of superposition in the orbital angular momentum of photons without excess components and its application in the verification of non-classical correlation”, *J.opt.* **13** (2011) 064027.
- [3] 亀井健, 「電子線露光による光子の軌道角運動量重ね合わせ状態検出用ホログラムの作製」, 電気通信大学修士論文, (2015)
- [4] 尾藤浩一, 「ホログラムの歪みの補正による異方性の少ないラゲールガウスビームの発生」, 電気通信大学修士論文, (2007)