表面等离子体超衍射光学光刻

王长涛, 赵泽宇, 高平, 罗云飞, 罗先刚*

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

* 联系人, E-mail: lxg@ioe.ac.cn

2015-09-10 收稿, 2015-11-16 修回, 2015-11-20 接受, 2016-01-08 网络版发表

国家重点基础研究发展计划(2013CBA01700)和国家自然科学基金(61575204)资助

摘要 由于光波衍射特性, 传统光学光刻面临分辨力衍射极限限制, 成为传统光学光刻技术发展的原理性障碍. 表面等离子体(surface plasmon, SP)是束缚在金属介质界面上的自由电子密度波, 具有突破衍射极限传输、汇聚和成像的独特性能. 近年来, 通过研究和利用SP超衍射光学特性, 科研人员提出和建立了基于SP的纳米干涉光刻、成像光刻、直写光刻等方法, 在紫外光源和单次曝光条件下, 获得了突破衍射极限的光学光刻分辨力. 目前, 基于SP成像结构, 实验中获得了22 nm($\sim 1/17$ 波长)最高SP成像光刻线宽分辨力水平. SP将为发展高分辨、低成本、高效、大面积纳米光学光刻技术提供重要方法和技术途径. 本文系统综述了SP光学光刻技术研究发展情况, 总结和分析了技术发展现状、存在问题, 并对其发展趋势和前景进行了展望.

关键词 表面等离子体, 光学光刻, 超分辨, 衍射极限

当前诸多微纳加工技术中, 光学技术手段占有重要的、不可替代的地位. 其中, 具有良好技术兼容性和继承性的光学光刻技术, 一直是业界公认的集成电路制备核心技术, 广泛应用在微电子产业和其他需求微纳制造的领域.

分辨力是决定光学光刻性能的核心技术指标. 由于光的衍射影响, 传统光学光刻存在分辨力衍射极限, 成为其光学分辨力提升的原理性障碍. 以投影光学光刻技术研究为例, 由于光学成像分辨力受限于物镜孔径和光源波长, 主要采用缩短工作波长和增大数值孔径方法来提高分辨力. 然而由于工程技术限制, 目前光刻物镜数值孔径增加已接近极限, 所用光源波长从紫外频段(汞灯i线、g线)缩小到193 nm深紫外频段. 即使采用各种分辨力增强技术, 单次曝光条件下193 nm浸没式光刻也无法突破34 nm线宽分辨力的理论极限. 虽然多重图形、多重曝光技术(double/multiple patterning and exposure)可以制备更

小线宽图形, 但大大增加了工艺步骤和成本, 且图形结构也受到严重限制^[1]. 若进入到更短波长电磁频段范围, 如深紫外(EUV)、X射线等, 不仅高功率光源难以获取, 而且配套技术兼容性和继承性差, 包括投影镜头、掩模、抗蚀剂等一系列技术还不十分完善, 研发成本激增. 分辨力衍射受限原理性障碍同样存在于激光直写、激光干涉光刻技术领域, 最高分辨力一般为 $1/2 \sim 1/4$ 波长, 约100~200 nm水平. 受限于此, 科研人员不得不采用电子束直写、聚焦离子束直写技术, 其加工分辨力约10 nm, 但系统复杂、效率低、视场小、设备和加工成本极其高昂.

如果能打破传统分辨力衍射极限瓶颈, 大幅延伸长波光源下的分辨力提升空间, 则不仅能够突破当前光学光刻技术发展困境, 建立低成本、高效、大面积的纳米光学光刻, 而且对于推动集成电路产业发展, 以及满足现代科学技术领域对微纳加工技术的迫切需求具有重要意义.

引用格式: 王长涛, 赵泽宇, 高平, 等. 表面等离子体超衍射光学光刻. 科学通报, 2016, 61: 585–599

Wang C T, Zhao Z Y, Gao P, et al. Surface plasmon lithography beyond the diffraction limit (in Chinese). Chin Sci Bull, 2016, 61: 585–599, doi: 10.1360/N972015-01038

近年来,在如何突破光学光刻分辨力极限方面,科研人员已经做了一些有益尝试.例如,利用飞秒脉冲激光作用下感光材料的双光子吸收阈值效应和聚合效应,可以获得传统激光直写分辨力极限以下的线条宽度^[2,3].类似激发辐射抑制(STED)荧光超分辨显微成像研究思路,利用不同波长激光对特殊材料透光特性的开关调制作用,可以将干涉线条宽度压缩到100 nm以下^[4-6].如同多重曝光和多重图形光刻技术一样,这些方法并没有从光学层面突破分辨力极限,主要适用于直写光刻或压缩线条宽度等情形,无法拓展到成像模式和任意图形光刻加工.也有科学家大胆提出利用2个或多个量子纠缠态光子,实现光学光刻分辨能力呈倍数提升^[7],但技术过于复杂,同时存在效率低、材料受限等一系列实际技术困难.因此,寻求一种能够突破分辨力衍射极限的光刻原理方法,实现在传统长波长光刻光源条件下,单次曝光即可获得纳米尺度光刻分辨力,同时具有与传统光学光刻技术兼容性,成为科研人员梦寐以求的研究目标.2000年左右兴起的表面等离子体(surface plasmon, SP)光学前沿研究,为超衍射光学光刻提供了物理思路和研究途径^[8].经过国内外科研人员的多年研究和努力,成功验证了SP超衍射光学光刻的原理和方法可行性,光刻分辨力和光刻图形质量逐步提升,逐步发展为一种高分辨力、低成本的纳米光学加工新技术.

本文从SP光学特性入手,阐述了SP引入到光学光刻领域的发展历程,从SP干涉光刻、SP超分辨成像光刻、SP直写光刻3个发展方向,分别介绍了相应的

SP光刻技术原理、代表性研究成果和进展,分析了各种SP光刻方法的优劣势,最后总结了SP光刻技术发展现状、存在的问题和未来展望.

1 SP及超衍射光学特性

1.1 SP模式

SP是由电磁波驱动金属表面自由电子相干共振,形成与电磁波耦合在一起传输的电子密度波(图1)^[9].位于金属表面的自由电子在外界电磁场的作用下会产生表面电子集群运动.对于1束由介质射向金属交界面的横磁(transverse magnetic, TM)偏振态的电磁波来说,由于其在交界面上垂直于金属表面两侧的电场分量不连续,那么自由电子便会在金属表面处积累形成表面感应电荷密度.如果此时这些感应电荷受到外加电磁场平行于交界面的电场驱动,其就会沿金属表面产生振荡从而形成表面等离子体.

在半无限大的金属和介质界面上,SP传输色散方程由光子频率 ω 、金属介电常数 ϵ_m 和介质介电常数 ϵ_d 共同决定^[11]:

$$k_{SP} = \frac{\omega}{c} \left(\frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_d + \epsilon_m} \right)^{1/2}. \quad (1)$$

SP电磁场主要束缚在金属介质界面处,在界面两侧金属和介质空间表现出倏逝场形式.另外,SP是一种慢波,其色散曲线位于介质光锥线右侧,因此其传输波长可以小于相同振荡频率下介质中光波长.如图2所示,常用SP激发方法包括光栅耦合法、棱镜耦

图1 (网络版彩色)(a) 金属介质半无限大界面上SP示意图(磁场 H 在 y 方向); (b) SP在介质和金属中分布, δ_d 和 δ_m 分别为SPs在介质和金属中的衰减长度; (c) SP色散关系图, ω 为光波在自由空间的角频率^[10]. Copyright © 2013, Nature Publishing Group

Figure 1 (Color online) (a) SP at a dielectric-metal interface (H is in the y direction); (b) distribution of SP in the dielectric and metal material, δ_d and δ_m are the decay length of the field in the dielectric and metal material, respectively; (c) dispersion curve for a SP mode, ω is angular frequency in vacuum^[10]. Copyright © 2013, Nature Publishing Group

图2 (网络版彩色)典型SP激发方法原理示意图。(a) Kretschmann棱镜激发;(b) 双层Kretschmann棱镜;(c) Otto棱镜激发;(d) 近场光纤探针激发;(e) 光栅激发;(f) 纳米粒子或缺陷激发^[12]。Copyright © 2005, Elsevier

Figure 2 (Color online) Typical configurations for SPP excitation. (a) Kretschmann prism geometry; (b) two-layer Kretschmann prism geometry; (c) Otto prism geometry; (d) excitation with a SNOM probe; (e) excitation by a grating; (f) excitation by a surface features^[12]. Copyright © 2005, Elsevier

合法、表面缺陷和随机粗糙表面等^[12]。各种SP光学光刻结构设计均与其SP激发方式密切相关。

1.2 体等离子体激元模式

相比束缚在金属表面传输的SP模式,体等离子体激元(bulk plasmon polaritons, BPPs)可以在三维空间传输。BPPs是一种SP超模模式,来源于交替排布金属和介质膜层之间SP相互耦合。基于等效介质理论,金属介质膜层结构可以实现不同符号介电常数的各向异性人工结构材料,具有双曲函数形式的色散方程,因此该材料通常被称为双曲色散材料^[13,14]。由于双曲色散方程,该人工材料表现出一些独特光学行为,包括支持倏逝波传输、超衍射定向传输现象、负折射现象等。例如,在材料两侧引入亚波长激发光栅和检测光栅,照明光激发倏逝波和BPPs模式,并传递到另一侧与检测光栅相互作用,形成远场可观测的特定周期莫尔条纹^[15];另外,激光照明人工材料表面纳米狭缝,光场在材料内部2个特定方向上传输,并在表面形成狭缝双像^[16]。双曲色散材料不仅具有独特的超衍射光学特性规律,而且结构简单,加工方便,为设计和构建超分辨成像器件提供了重要基础^[17-20]。

1.3 局域表面等离子体模式

除了传输型的SP, BPPs模式外,纳米金属粒子、金属小孔等亚波长结构中存在着非传输的、局域的

SP模式,称之为局域表面等离子体(local surface plasmon, LSP)。与SP不同, LSP模式一般仅靠自身亚波长结构就可以激发。LSP模场分布复杂,其共振模式取决于金属结构形状、尺寸、材料色散特性等因素。由于LSP模式束缚在亚波长空间,在损耗不严重和模式共振情形下, LSP表现出显著的局域场增强特性,其局域场强往往是激发光场的几十甚至上百倍^[11]。LSP超衍射空间局域和场增强特性对于设计和实现纳米尺度聚焦光刻结构至关重要。

2 SP引入到光学光刻研究领域

需要指出的是, SP并不是近年来才发现的物理现象。早在1902年, Wood^[21]发现在金属光栅反射光谱中存在无法解释的异常吸收峰(也称Wood异常共振)。约40年后, Fano^[22]研究认为, Wood异常共振现象是金属光栅表面共振激发的电磁波引起的。1968年, Otto^[23]利用棱镜内全内反射方法(attenuated total reflection, ATR)实现了棱镜表面金属薄膜SP模式激发,而Kretschm和Raether^[24]提出了改进的激发结构。逐渐地,“表面等离子体”这一概念被接受,并用来描述这些极化的金属表面波。LSP共振(LSPR)现象的发现则要早得多,甚至可以追溯到古罗马时代。1900年左右, Mie^[25]研究了纳米金属粒子LSP模式的基本电磁特性。然而,由于当时缺乏微纳尺度的光学加工、检测方法和技术, SP作为一种特殊电磁场模式,其科学意义和价值并没有引起科学家足够的重视。

2000年左右,科学家研究发现,当电磁波入射到金属亚波长微纳结构上,出现了一系列传统光学理论无法解释的奇异现象.例如,1998年美国NEC研究所Ebbesen等人^[26]偶然发现,金属薄膜上亚波长周期小孔阵列透射谱,在某些特定波长位置表现出奇异透射增强效应,其透射率与经典金属小孔衍射理论预期结果相差很大.研究表明,金属亚波长结构中存在各种SP模式,并对操控电磁场异常行为发挥了重要作用.这些新奇现象不仅激发了科研人员对SP研究的浓厚兴趣,而且预示着SP有望突破传统衍射极限的能力.

2003年左右,科研人员报道了一些具有里程碑式的研究工作,在研究和验证了SP在亚波长尺度下局域、传输、超分辨成像等物理特性的同时,也开拓性地将SP引入到纳米光学光刻技术研究领域.如图3所示,本课题组^[27~30]设计和制备了光栅形式SP激发结构,利用g线汞灯光源(波长436 nm),将SP局域在光刻胶表面曝光,得到了30 nm特征尺寸曝光点、线结构,观测到50 nm线宽(约1/9波长)的SP干涉光刻胶图案,从而在实验上验证了SP短波长传输、局域等超衍射光学特性;在金属薄膜上下两侧观测到SP耦合干涉条纹和成像效应,并预测在一定共振条件下光频段激发SP波长可以达到软X射线水平.

在动量和能量匹配条件下,通过与金属薄膜上短波长传输SP耦合,携带亚波长空间信息的倏逝波得到增强,从而为弥补传统成像倏逝波信息的缺失、实现超分辨成像提供了物理基础.2000年,英国帝国大学Pendry^[31]在理论上指出,负折射率材料平板不仅具有成像能力,而且具有无限大分辨率,因此称之为完美透镜(perfect lens).在光频段,由于负折射率材料难以实现,可以利用共振激发SP模式实现超分辨成像,一般称之为超透镜(super lens)成像.2005年,

图3 (网络版彩色)(a) SP干涉条纹的光刻胶记录结果; (b) SP干涉光场模拟结果^[29]. Copyright © 2004, American Institute of Physics

Figure 3 (Color online) (a) Resist recording results of SP interference fringes; (b) simulated electric field intensity distribution of SP interference^[29]. Copyright © 2004, American Institute of Physics

Fang等人^[32]给出了光频超透镜成像实验结果,采用光刻胶记录方式,在365 nm波长下获得了大约1/6波长成像分辨力(图4).

科研人员逐渐意识到,SP有望在长波长光源条件下,例如汞灯i线365 nm, g线光源436 nm等,实现超分辨光学光刻.相比传统光学光刻,SP光刻不仅可以突破分辨力衍射极限,而且无须引入复杂光刻镜头和昂贵短波长光源,与传统光刻材料和工艺兼容^[33,34].自此以后,基于SP的各种超衍射光学光刻方法研究逐渐增多,主要包括SP干涉光刻、SP成像光刻、SP直写光刻等.下面将分别予以阐述.

3 SP超衍射干涉光刻

SP具有短波长传输特性,通过设计合适结构,激发2束或多束SP波相互干涉,在SP波重叠区域,实现纳米尺度分辨力周期图形的干涉光刻.根据SP激发方式不同,主要分为亚波长狭缝结构、光栅结构、棱镜结构的SP干涉光刻方法.另外,科研人员还提出了BPPs干涉、双SPP吸收干涉等新方法.

3.1 光栅和亚波长结构激发SP干涉

光照明亚波长光栅产生倏逝波衍射级次,在满足位相匹配条件下,可以有效激发2束或多束SP发生干涉.早期研究中,本课题组^[29]利用周期300 nm,厚度和缝宽均为60 nm的金属Ag狭缝结构,在Ag膜下方非透光光刻胶区域激发SP干涉,在436 nm波长下获得50 nm线宽(约1/9波长)SP干涉图形,并在理论上预测了25 nm光刻分辨力结果.为进一步提高干涉光场强度和减少非干涉区域干扰,提出利用不同宽度

图4 (网络版彩色)(a) 银膜超透镜成像结构示意图; (b) 65 nm线宽密集线条图形成像光刻结果^[32]. Copyright © 2005, AAAS

Figure 4 (Color online) (a) Schematic of Ag superlens for subwavelength imaging; (b) image for 65 nm half-pitch feature through Ag superlens^[32]. Copyright © 2005, AAAS

或不同填充材料金属狭缝SP波相长相消思路,实现了SP定向激发干涉,SP干涉场强度提高约1倍^[35,36]. Liu等人^[37]提出在SP干涉区域两侧或四周引入光栅结构,在金属Al膜和光刻胶界面实现SP干涉光刻,在365和266 nm波长下分别获得了周期100 nm一维线条和周期90 nm二维点阵干涉模拟.

由于SP干涉光场在光刻介质层中以指数规律衰减,制约着干涉图形曝光深度.另外,SP光场横向和纵向电场分量位相差 $\pi/2$,导致二者干涉光场相互错位半个周期,从而降低了干涉条纹对比度^[38].为解决该问题,本课题组^[39,40]提出金属/介质/金属(MIM)的SP共振干涉光刻方法,利用上下金属膜层SP相互耦合,增加电场分量之间强度差异,从而大幅度提高了SP干涉光场的对比度(从0.33提高到0.7),有效增加焦深(提高约1倍).另外,采用MIM结构还可进一步压缩SP波长和提高分辨力. Wang课题组^[41]在436 nm光源下获得了最小分辨力~16.5 nm的干涉模拟结果,22 nm分辨力的模拟曝光深度可达~20 nm. Dong等人^[42]通过MIM结构优化设计,利用193 nm深紫外波长和厚度25 nm光刻胶,得到线宽12.9 nm的干涉模拟结果.

除了光栅结构,也可以利用非周期亚波长结构(利用单个金属狭缝、图形边缘等),有效激发SP干涉,实现多束SP干涉、金属圆缝激发SP干涉聚焦等^[43,44].例如, Liu等人^[45]在实验上制备了不同形状金属图形(三角形、正方形、正五边形等),获得三束、四束、五束SP干涉光场,在365 nm光源下获得了~60 nm线宽(1/6波长)的干涉光刻结果.

3.2 棱镜激发SP干涉

利用光栅或亚波长结构激发SP,由于SP传输损耗和激发光场杂散级次的影响,SP干涉区域较小或者均匀性受限.相比之下,借助高折射率棱镜则易于实现大面积、均匀的SP干涉光场.例如, Guo等人^[46]利用Kretschmann棱镜结构激发SP,模拟得到了441 nm波长下周期120 nm干涉结果;新加坡南洋理工大学Sreekanth和Murukeshan^[47,48]利用棱镜激发四路SP,实现了二维纳米图形干涉光刻;中国科学技术大学Wang等人^[49]在442 nm的照明波长下,采用偶氮苯薄膜感光材料,得到了周期187 nm的大面积SP干涉光刻结果.需要指出的是,棱镜激发SP的波长受限于棱镜折射率,难以获得深亚波长SP干涉光刻.

3.3 BPPs干涉光刻

对于光栅或亚波长结构激发SP干涉光刻,存在条纹均匀性差、图形面积有限等问题.而棱镜激发SP干涉则面临材料折射率有限,分辨力难以提高的问题.为此,本课题组^[15]提出易于实现高分辨力、均匀和大面积BPPs干涉光刻方法,即利用光栅或其他亚波长结构,激发多层金属介质薄膜材料中BPPs模式,而杂散级次或干扰光场在膜层材料中逐步被滤出,从而在膜层材料另一侧获得均匀、大面积的BPPs干涉光场^[38].通过优化薄膜材料参数,可实现深亚波长BPPs激发和更高光刻分辨力.另外,相比光栅结构激发SP干涉方法,BPPs激发可选择大周期尺寸结构,采用低成本方法即可加工,从而避免了对昂贵电子束直写、聚焦离子束直写等设备的依赖.利用上述方法,采用激光干涉光刻和磁控溅射,制备了基于Al/SiO₂膜层材料的BPPs干涉光刻结构,在363.8 nm波长下,得到线宽45 nm($\sim\lambda/8$)的双束和四束BPPs干涉光刻图形,图形周期为激发光栅周期的4倍,图形区域大于10 mm×10 mm.进一步研究结果表明(图5),该方法可实现22.5 nm($\sim\lambda/16$)线宽的BPPs干涉图形^[50],采用193 nm波长可得到~16.5 nm线宽分辨力^[51~53]. Xiong等人^[54]也得到了类似的二维设计模拟结果.

3.4 双SPP吸收干涉光刻

双SPP吸收(TSPPA)与双光子吸收物理过程类似,均是通过吸收2个“量子”实现分子内部电子的跃迁.当光子耦合为SP时,模场体积被压缩,场强得到增强,非线性吸收几率得到了提高,从而在突破光学衍射极限的尺度范围内实现非线性吸收.另一方面,由于双SPP吸收光刻依赖于电场强度平方,有助于提高干涉光刻对比度.2013年,清华大学黄翊东课题组^[55]设计和制备了周期480 nm(占空比1:1)金膜光栅,在侧面激发SP干涉,利用中心波长800 nm,脉宽<120 fs,平均功率630 mW,光斑直径约7 mm的飞秒激光照射10 s后,得到了线宽~120 nm双SPP吸收干涉光刻条纹.2014年, Li等人^[56]进一步设计并加工了金属Al膜上纳米狭缝结构,在400 nm飞秒激光波长下,获得了70 nm线宽分辨力的双SPP吸收干涉光刻结果.

4 SP超分辨成像光刻

对于传统投影成像光学光刻系统,携带掩模图

图5 (网络版彩色)双束BPPs干涉光刻结构示意图(a)和干涉光刻扫描透射电子显微镜(SEM)图片(b). 四束BPPs干涉光刻结构(c)和原子力显微镜(AFM)图片(d). 特征尺寸 45 nm^[50]. Copyright © 2015, Wiley

Figure 5 (Color online) Schematic configuration of two-BPPs interference (a) and SEM image of exposed photoresist (b). Schematic configuration of four-BPPs (c) and AFM image (d). Feature size of results is 45 nm^[50]. Copyright © 2015, Wiley

形亚波长信息的倏逝波无法参与成像,导致其分辨力存在1/4波长线宽分辨力极限. SP超分辨成像光刻的主要原理在于,利用超透镜等纳米金属成像膜层结构,激发宽空间频谱范围的SP模式和增强携带高频空间信息的倏逝波强度,并借助负折射成像效应,实现掩模图形传递到光刻胶空间和超分辨成像光刻. 如何有效激发和操控SP,实现更宽波矢范围、更强倏逝波参与超分辨成像,在很大程度上决定了SP成像光刻分辨力、图形保真度、焦深、工作距、效率等关键性能,成为设计SP成像光刻器件结构需考虑的关键因素.

4.1 超透镜(super lens)成像光刻

超透镜工作过程如下:当金属薄膜介电常数与周围介质介电常数满足匹配条件时(即符号相反、大小近似相等),紫外光照明掩模图形,在临近金属薄膜两侧共振激发相互耦合的SP光场,在薄膜另一侧

光刻胶空间实现1:1倍率掩模图形的超分辨成像光刻^[31].

超透镜成像光刻前期研究主要有美国加州大学伯克利分校Zhang研究组^[32,57]和新西兰坎特伯雷大学Melville和Blaikie^[58],他们在2005年左右完成SP超透镜成像光刻实验验证. 前者在汞灯365 nm波长照明下,携带掩模图形的倏逝波光场经过40 nm厚度PMMA介质层衰减,以及35 nm厚度Ag薄膜透镜增强后,被光刻胶感光记录,显影后获得半周期60 nm (~1/6波长)深度~7 nm的密集线条光刻图形,以及特征线宽~89 nm “NANO”字符成像光刻结果. 同年, Melville和Blaikie^[58]也获得了类似的实验结果,相同光源波长条件下,线宽分辨力约70 nm.

为进一步提高SP超透镜光刻分辨力,研究人员改进了结构参数、制备工艺. Fang课题组^[59]采用压印方法将介质层厚度减小到6 nm,并使用1 nm厚度Ge作为浸润层,制备出15 nm厚“光滑”银膜超透镜,实

现了半周期30 nm(1/12波长)、深度~6 nm的SP成像光刻结果. Teng课题组^[60]将PMMA介质层减小到20 nm, 同样在35 nm厚度Ag超透镜结构下, 实现了半周期50 nm, 深度~45 nm的超分辨成像光刻结果.

针对超透镜成像光刻影响因素, 科研人员也做了大量研究. 例如, Fang和Zhang^[61]从光学传函角度出发, 研究分析了超透镜金属薄膜厚度、材料参数不匹配对成像分辨力的影响规律. 另一方面, 金属薄膜损耗和表面粗糙度对成像性能影响, 得到了大家特别关注和研究, 给出了一些有趣甚至貌似相反的结论. Huang等人^[62]和Bagley等人^[63]通过数学建模和模拟分析指出, 表面粗糙度可以在一定程度上抑制共振SP模式激发, 有利于获得平坦光学传函曲线和减少对成像的干扰. Wang等人^[64]利用规则正弦表面形貌模拟表面粗糙度, 与理想平滑表面相比, 模拟光刻线宽分辨力压缩了86%. 本课题组^[65]利用AFM测试样品表面粗糙形貌作为模拟分析依据, 结果发现, 从提高像场均匀性和综合质量方面而言, 粗糙度并没有对成像性能提升有实质性贡献, 但引入合适损耗, 则可以有效抑制粗糙度带来的成像噪声影响, 提高成像均匀性. Liu等人^[66]通过光刻对照实验, 研究对比分析了Ag膜、以Ni为浸润层的光滑Ag膜、以Ge为浸润层的光滑Ag膜3种超透镜膜层的成像光刻性能. 他们认为, 虽然低粗糙度表面是高质量超透镜成像光刻的关键因素, 但当粗糙度低于2 nm时, 由于Ni和Ge材料在紫外波段都存在吸收, 将对成像光刻质量产生严重影响.

SP成像结构可以从单层金属介质薄膜扩展到多层金属介质薄膜结构. 例如, Pendry等人^[67]通过计算分析指出, 将超透镜结构划分为更薄厚度的金属介质交替薄膜, 在总厚度相同条件下, 多层交替膜层结构可以减少SP传输损耗, 从而获得更高成像分辨力. 从金属介质膜层等效介电常数和透射率函数出发, 利用其双曲色散和定向传输特性, 系统研究和给出了不同膜层介电常数、膜层厚度比例下的超分辨成像条件^[17]. 另外, 利用多层金属薄膜等效材料, 得到了各向异性超透镜结构SP共振激发和成像条件^[68]. 尽管多层薄膜结构为超透镜设计提供了更多自由度和材料选择范围, 但SP成像光刻性能更多取决于结构加工误差、损耗、粗糙度等因素. Melville和Blaikie^[69]的对照实验结果表明, 相对单层薄膜超透镜, 两层金属薄膜超透镜结构并没有带来明显的成像光刻性能

提升. 另一方面, 基于多层膜双曲色散材料, 可以构建负折射成像、SP缩小超分辨成像, 如弯曲超透镜(hyperlens)等. 这些成像结构分辨力有限、视场小, 在纳米光学光刻中应用研究较少, 这里不再赘述.

4.2 反射式SP成像光刻

在SP超透镜成像光刻过程中, 像场严重束缚在金属薄膜表面, 带来了2个方面的难题. (1) 像场对比度低、焦深浅, 成像光刻深度非常有限; (2) 光刻过程中有明显展宽效应, 成像图形畸变大. 反射式SP成像则另辟蹊径, 将金属膜层透镜放置在光刻胶后方, 以SP反射共振放大方式, 在掩模和反射成像膜层之间的光刻胶区域成像, 从而有效提高了成像焦深、对比度和保真度.

2005年, Shao和Chen^[70,71]通过模拟计算和实验指出, 将Ti金属层放置于光刻胶后方, 有利于减小掩模透射光场发散效应, 并提高近场成像光刻分辨力. 但Ti金属损耗大, 且不满足SP共振激发条件, 因此分辨力和对比度提升效果有限. 本课题组^[72]从反射式光学成像传函角度出发, 研究发现SP反射透镜成像效果主要取决于介电常数匹配下SP共振激发效果, 成像传函增强来自于掩模透射衰减函数和SP反射增强函数的叠加. 满足SP共振激发和有限光刻胶膜层厚度条件下, 可显著提升SP成像分辨力、对比度和焦深. 另外, 在反射成像模式下, 像场切向电场分量得到抑制, 降低了其对于成像对比度的负面影响, 提高了成像保真度. 基于此, 本课题组^[72]在365 nm汞灯光源下获得了~50 nm特征尺寸、40 nm深度“OPEN”离散字符的超分辨成像光刻图形(图6), 以及32 nm线宽密集线条光刻图形, 相比传统近场成像光刻, 光刻分辨力和质量均显著提高. Arnold和Blaikie^[73]也研究分析了SP反射镜成像结构, 并进行了相关数理模型分析. 他们将其应用于吸收调制干涉光刻技术(absorbance-modulation interference lithography, AMIL), 结果表明可提高约34%的光刻工艺宽容度^[74].

4.3 SP共振腔结构成像光刻

将SP超透镜结构与SP反射成像结构结合, 形成金属-介质-金属形式的SP共振腔成像结构, 有助于进一步提高SP激发效率、压缩SP波长、并抑制腔内电场纵向分量和减少对成像性能负面影响, 获得更高分辨力和对比度的SP成像光刻效果.

图6 (网络版彩色)反射式SP成像(a)和传统近场成像光刻结果(b), 特征尺寸~50 nm^[72]. Copyright © 2013, Optical Society of America

Figure 6 (Color online) Reflective SP imaging (a) and conventional near-field imaging lithography (b). Feature size of pattern is approximately 50 nm^[72]. Copyright © 2013, Optical Society of America

本课题组^[39]首次利用Ag-PR-Ag共振腔SP耦合成像模式, 实现深亚波长图形光刻, 在442 nm波长下获得了线宽分辨率~31 nm($\lambda/14$)设计结果. 进一步研究表明, 相比于反射共振结构, 共振腔SP透镜结构可将曝光深度拓展约2倍. 基于该方法, 在实验上获得了深度~23 nm, 线宽32 nm的SP成像光刻胶图形, 并首次得到了22 nm($\sim 1/17$ 波长)线宽光刻分辨率实验结果(图7)^[75]. Wang课题组^[76]通过数值建模和模拟分析指出, 如果光刻胶厚度压缩到10 nm水平, 该结构有望获得~15 nm($\lambda/24$)线宽的分辨率结果.

4.4 结构光场照明的SP成像光刻

对于以倏逝波操控为核心的SP超分辨成像方法而言, 成像面临近场衍射极限问题, 即分辨力受限于离开掩模图形的工作距离和所用光源波长. 这导致光刻分辨力和工作距离、焦深的矛盾关系, 图形线宽越小, 工作距离就越短. 另一方面, 从应用角度而言, 迫切需要增加掩模图形与SP成像透镜之间的空气间隙, 达到减少接触损伤、保护掩模图形的目的.

本课题组^[77]提出离轴结构光场照明的SP共振成像光刻方法. 通过高数值孔径离轴照明, 将携带物体高频信息的倏逝波光场平移到低频范围, 从而增强

图7 (网络版彩色)32 nm线宽光刻SEM图(a)和截面图(b); 线宽 22 nm密集线条AFM图(c)和截面轮廓(d); (c)中的插图为傅立叶频谱图^[75]. Copyright © 2015, AIP

Figure 7 (Color online) SEM pictures (a) and cross profile (b) of resist pattern for half pitch 32 nm; AFM pictures (c) and cross profile (d) for half pitch 22 nm^[75]. Inset in (c) is Fourier spectrum distribution. Copyright © 2015, AIP

高频信息在成像过程中传递强度, 另外在像场空间采用金属-光刻胶-金属形式的SP共振成像光刻结构, 进一步增强了倏逝波强度, 减少了纵向电场分量对

成像图形的畸变影响,在延伸成像工作距情形下,获得高对比度SP成像图形.例如,利用数值孔径 $NA=1.5$ 离轴照明光场,理论计算结果表明线宽 60 nm ($\sim\lambda/6$)的SP成像工作距离提高到 120 nm ,相比于传统近场成像增强了6倍以上.SP光刻实验结果证明了该方法的有效性,将SP成像光刻的近场空气间隙拓展到 100 nm 以上,与传统近场成像光刻(约 10 nm)相比,而超透镜光刻只有约 40 nm (图8)^[78].

对于深亚波长图形结构而言,成像距离受近场衍射极限问题影响更为严重.例如,对于 365 nm 光源波长, 32 nm 线宽密集线条图形的近场成像距离不到 10 nm .因此,选择具有更高空间波失的SP照明光场与掩模图形相互作用,提升光刻分辨力和拓展成像空间范围.利用双曲色散材料对BPPs耦合传输和裁剪特性,实现了均匀强度分布的SP照明结构光场,并作用于SP成像光刻结构.数值模拟结果显示, 32 nm ($\lambda/11$)线宽图形的SP共振成像的空气间隙距离提高到 60 nm 以上,相比于传统超透镜成像距离增强了4倍以上,而同等距离下成像分辨力提高近3倍(图9)^[79].

4.5 SP成像光刻工艺

一般来说,包括集成电路在内的各种微纳结构

器件制造,对光刻胶图形质量要求是比较高的,主要体现在线条线宽均匀性和边缘粗糙度、图形保真度、深宽比和陡直度等方面.SP成像光刻图形质量不仅取决于成像过程中各种影响因素,例如透镜传函、像差、膜层粗糙度等,而且受限于掩模图形加工质量、光刻胶分辨力和伽马值、显影和传递工艺等.对于前者,利用上述SP成像改进方法,并控制超分辨结构加工过程中的膜层参数、表面粗糙度等各种误差,可以有效提高像场质量.与此同时,在掩模制备、光刻胶改性、工艺优化等环节也做了大量工艺研究,SP成像光刻胶图形质量得到明显改进,获得了均匀一致、边缘光滑的SP成像光刻线条图形^[72],例如光刻线条边缘粗糙度从30%以上下降到10%左右,如图10所示.另一方面,SP成像光刻面临焦深浅的原理性难题,难以获得高深宽比光刻结果.在SP共振成像等焦深提升方法基础上,进一步研究和建立了多层胶图形传递工艺,将SP光刻胶图形深度从 20 nm 左右拓展到 100 nm 左右,深宽比达到2:1以上,陡直度 70° 以上(图11)^[75,80].相对国内外同类报道,SP光刻线条均匀性、对比度、深度等均显著提升.在此基础上,制备了叉指线电路、超构表面聚焦器件^[81]、偏振检测器件、存储电路等功能结构图形,初步验证了SP成像

图8 (网络版彩色)离轴结构光场照明SP成像光刻实验对照结果^[78]. Copyright © 2015, Nature Publishing Group

Figure 8 (Color online) Experimental results of SP cavity lens imaging with off-axis structured illumination (OAI) and the control results^[78]. Copyright © 2015, Nature Publishing Group

图9 (网络版彩色)(a) SP照明共振成像结构示意图; (b)~(e) 40 nm成像距离下, 不同SP成像方法 32 nm线宽密集线条和L型图形的模拟结果^[79]. Copyright © 2015, Springer

Figure 9 (Color online) (a) Schematic structure of SP cavity lens imaging under surface plasmon illumination (SPI); (b)~(e) simulated imaging results of dense lines and L-shape feature under different imaging condition and 40 nm working distance^[79]. Copyright © 2015, Springer

图10 线宽 22~100 nm的SP成像光刻工艺优化结果^[78]. Copyright © 2015, Nature Publishing Group

Figure 10 Exposed resist patterns obtained by SP imaging lithography with half pitch from 22 to 100 nm^[78]. Copyright © 2015, Nature Publishing Group

图11 高深宽比SP成像光刻SEM图片^[69,80]. Copyright © 2006, Optical Society of America. Copyright © 2013, Elsevier

Figure 11 SEM pictures of SP imaging lithography with high aspect profile patterns^[69,80]. Copyright © 2006, Optical Society of America. Copyright © 2013, Elsevier

光刻用于微纳结构器件制备方面的可行性(图12).

5 SP直写光刻

SP直写光刻主要利用特殊设计的亚波长金属结构, 激发局域SP模式或者操控SP传输汇聚, 实现横向尺寸远小于波长的聚焦光斑, 并结合近场扫描光学显微镜(NSOM)、磁头飞行等技术, 以扫描方式实现纳米光刻图形制备. 目前, 研究集中在SP局域聚焦结构设计、制备方法, 获得高分辨力和高效的聚焦光斑, 以及改进直写操控方式, 实现快速、高效、大面积SP直写光刻加工.

5.1 SP局域聚焦结构

利用激发局域SP模式, 实现纳米尺度聚焦光斑的功能结构形式多样, 典型结构有纳米金属粒子、纳米金属小孔、Bowtie天线结构、环形牛眼结构等. 这里简单举例介绍. 纳米金属粒子结构简单, 易于化学方法合成, 但可操作性低. 在合适激发波长下, 实现局部SP光场共振和获得纳米尺度局域光场, 与光刻胶作用即可实现纳米光刻. 例如, Heltzel等人^[82]利用532 nm波长激光照射金纳米粒子LSP共振, 获得了特征尺寸小于40 nm的纳米结构. Wang等人^[83]报道了高透过率SP近场扫描探针, 通过在圆锥形的探针端面集成等离子透镜, 利用光栅结构激发SPs, 在探针中心得到约100 nm的SP汇聚光斑, 实验结果表明焦

图12 功能结构图形SP成像光刻结果. (a) 叉指线路; (b) 超构表面聚焦器件; (c) 偏振检测器件; (d) 存储电路图形. 特征尺寸 30~60 nm

Figure 12 SEM pictures of SP imaging lithography for nanostructure employed in integrated circuit (a); nanofocusing optical lens based on metasurface (b); surface plasmon polariton couplers (c); data recording circuit (d). Feature size of patterns ranges from 30 to 60 nm

斑强度增加了1个数量级. Bowtie是一种领结形的光天线结构, 在领结中心尖端位置附近, 可实现局域SP共振和形成纳米焦斑, 焦斑横向尺寸主要依赖于领结中心间隙大小. 美国普渡大学Xu课题组^[84]首先将Bowtie天线结构应用到纳米光刻研究, 利用30 nm间隙的Bowtie天线结构聚焦能力, 得到最小为40 nm×50 nm的纳米孔结构光刻图形.

5.2 SP直写光刻实验

Zhang课题组^[85]提出采用磁头结构的SP飞行直写光刻系统. 紫外照明光在圆环透镜结构中心圆孔附近, 形成<100 nm直径的聚焦光斑, 采用磁头飞行技术控制透镜与光刻胶之间的纳米空气间隙, 在实验上获得了~80 nm线宽分辨力的直写光刻结果. 在此基础上, 将SP聚焦结构改进为金属圆环和哑铃结构, 实现传播型SP和LSP的耦合, 将聚焦光斑直径压缩到~45 nm, 进一步利用热敏材料阈值效应, 在355 nm皮秒激光作用下, 将直写线条尺寸减小到22 nm (图形深度~2 nm)^[86]. 本课题组^[87]提出了基于Bowtie孔径结构的Bowtie-Metal-Insulator-Metal(BMIM)光

刻结构, 通过对BMIM光刻结构的理论仿真, 获得了最小线宽28 nm, 曝光深度30 nm的仿真结果, 实验观测到了31 nm宽度光刻斑点.

另外, Xu课题组^[88]采用NSOM系统, 在NSOM探针尖端制备Bowtie光天线结构, 并利用双光子激发过程, 获得了最小线宽为24 nm的直写光刻线条. Uppuluri等人^[89]和Wen等人^[90,91]研究了阵列化Bowtie光天线并行直写技术, 得到了最小特征尺寸22 nm的直写光刻结果. 韩国延世大学Kim等人^[92]将Bowtie结构集成于固体浸没透镜锥形探头上, 最小间隙20 nm, 在405 nm入射光源下, 获得50 nm光刻分辨率. 进一步利用MEMS加工工艺, 制备了悬空Si₃N₄薄膜Bowtie直写结构, 获得了最小线宽22 nm(图形深度~2 nm)的光刻结果^[93].

6 总结和展望

SP具有独特的超衍射光学特性, 包括小于介质内波长的超衍射传输特性、束缚在表面的场分布、亚波长尺度结构下的电磁局域等. 利用这些特性, 可以突破传统光学成像、聚焦分辨力的衍射极限限制, 在单次曝光条件下, 实现光学分辨力远小于波长的纳米干涉光刻、直写光刻和成像光刻, 并初步展示了功能结构图形的加工能力. 例如, 采用传统廉价的i线汞灯光源, 获得了22 nm线宽最高SP成像光刻分辨力水平, 相比传统衍射极限分辨能力提升4倍以上. 由于从光学层面上突破分辨力极限, 无需引入特殊非线性光学效应, 如双光子、受激发射损耗、光吸收调制等, 在材料和工艺上保持了与传统光学光刻技术的兼容性, 为研究低成本、大面积、高效的纳米光刻加工技术, 提供了一条可靠技术途径.

另一方面, 现有SP光学光刻研究进展表明, 仍然有一些问题需要进一步研究. 例如, 在原理方法上, 需要研究探索SP超分辨成像光刻新方法, 特别是远场、缩小成像等; 技术层面需要发展配套的SP光刻控制技术, 例如近场精密检焦、对准和集成光刻装置; 在工艺和材料方面, 则要进一步研究光刻分辨力增强技术, 提升光刻图形质量, 完善SP光刻工艺和后续传递工艺.

参考文献

- 1 International Technology Roadmap Committee. The international technology roadmap for semiconductors, 2007 Ed. 2009
- 2 Sun H B, Tanaka T, Kawata S. Three-dimensional focal spots related to two-photon excitation. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 3673–3675

- 3 Dong X Z, Chen W Q, Zhao Z S, et al. Femtosecond laser two-photon micro- and nano-fabrication technique and application (in Chinese). *Chin Sci Bull (Chin Ver)*, 2008, 53: 2–13 [董贤子, 陈卫强, 赵震声, 等. 飞秒脉冲激光双光子微纳加工技术及其应用. 科学通报, 2008, 53: 2–13]
- 4 Menon R, Tsai H, Thomas III S W. Far-field generation of localized light fields using absorbance modulation. *Phys Rev Lett*, 2007, 98: 043905
- 5 Brimhall N, Andrew T L, Manthana R V, et al. Breaking the far-field diffraction limit in optical nanopatterning via repeated photochemical and electrochemical transitions in photochromic molecules. *Phys Rev Lett*, 2011, 107: 205501
- 6 Andrew T L, Tsai H, Menon R. Confining light to deep subwavelength dimensions to enable optical nanopatterning. *Science*, 2009, 324: 917–921
- 7 Boto A N, Kok P, Abrams D S, et al. Quantum interferometric optical lithography: Exploiting entanglement to beat the diffraction limit. *Phys Rev Lett*, 2000, 85: 2733–2736
- 8 Guo L J. Recent progress in nanoimprint technology and its applications. *J Phys D Appl Phys*, 2004, 37: R123–R141
- 9 Raether H. Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings. Heidelberg: Springer, 1988
- 10 Barnes W L, Dereux A, Ebbesen T W. Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 2013, 424: 824–830
- 11 Stefan A M. Plasmonics Fundamentals and Applications. Heidelberg: Springer, 2007
- 12 Zayats A V, Smolyaninov I I, Maradudin A A. Nano-optics of surface plasmon polaritons. *Phys Rep*, 2005, 408: 131–314
- 13 Smith D R, Schurig D. Electromagnetic wave propagation in media with indefinite permittivity and permeability tensors. *Phys Rev Lett*, 2003, 90: 077405
- 14 Wood B, Pendry J B, Tsai D P. Directed subwavelength imaging using a layered metal-dielectric system. *Phys Rev B*, 2006, 74: 115116
- 15 Guo Z, Zhao Z Y, Yan L S, et al. Moiré fringes characterization of surface plasmon transmission and filtering in multi metal-dielectric films. *Appl Phys Lett*, 2014, 105: 141107
- 16 Wang C, Gao P, Tao X, et al. Far field observation and theoretical analyses of light directional imaging in metamaterial with stacked metal-dielectric films. *Appl Phys Lett*, 2013, 103: 031911
- 17 Wang C, Zhao Y, Gan D, et al. Subwavelength imaging with anisotropic structure comprising alternately layered metal and dielectric films. *Opt Express*, 2008, 16: 4217–4227
- 18 Jacob Z, Alekseyev L V, Narimanov E. Optical hyperlens: Far-field imaging beyond the diffraction limit. *Opt Express*, 2006, 14: 8247–8256
- 19 Feng S, Elson J M. Diffraction-suppressed high-resolution imaging through metallo-dielectric nanofilms. *Opt Express*, 2006, 14: 216–221
- 20 Scalora M, D'Aguanno G, Mattiucci N, et al. Negative refraction and sub-wavelength focusing in the visible range using transparent metallodielectric stacks. *Opt Express*, 2007, 15: 508–523
- 21 Wood R W. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. *Philos Mag*, 1902, 4: 396–402
- 22 Fano U. The theory of anomalous diffraction gratings and of quasi-stationary waves on metallic surfaces (Sommerfeld's waves). *J Opt Soc A*, 1941, 31: 213–222
- 23 Otto A. Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by method of frustrated total reflection. *Z Phys*, 1968, 216: 398
- 24 Kretschm E, Raether H. Radiative decay of non radiative surface plasmons excited by light. *Z Nat A*, 1968, 23: 2135–2136
- 25 Mie G. Beitrage zur optik truber medien speziell kolloidaler metallösungen. *Ann Phys*, 1908, 25: 377–445
- 26 Ebbesen T W, Lezec H J, Ghaemi H F, et al. Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays. *Nature*, 1998, 391: 667–669
- 27 Yao H, Yu G, Yan P, et al. Patterning sub 100 nm isolated patterns with 436 nm lithography. In: *Digest of Papers Microprocesses and Nanotechnology 2003*. Tokyo: Japan Society of Applied Physics, 2003. 130
- 28 Luo X, Ishihara T. Sub 100 nm lithography based on plasmon polariton resonance. In: *Digest of Papers Microprocesses and Nanotechnology 2003*. Tokyo: Japan Society of Applied Physics, 2003. 138–139
- 29 Luo X G, Ishihara T. Surface plasmon resonant interference nanolithography technique. *Appl Phys Lett*, 2004, 84: 4780–4782
- 30 Luo X G, Ishihara T. Subwavelength photolithography based on surface-plasmon polariton resonance. *Opt Express*, 2004, 12: 3055–3065
- 31 Pendry J B. Negative refraction makes a perfect lens. *Phys Rev Lett*, 2000, 85: 3966–3969
- 32 Fang N, Lee H, Sun C, et al. Sub-diffraction-limited optical imaging with a silver superlens. *Science*, 2005, 308: 534–537
- 33 Ozbay E. Plasmonics: Merging photonics and electronics at nanoscale dimensions. *Science*, 2006, 311: 189–193
- 34 Luo X, Yan L S. Surface plasmon polaritons and its applications. *IEEE Photonics J*, 2012, 4: 590–595
- 35 Xu T, Zhao Y H, Gan D, et al. Directional excitation of surface plasmons with subwavelength slits. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 101501
- 36 Xu T, Fang L, Zeng B B, et al. Subwavelength nanolithography based on unidirectional excitation of surface plasmons. *J Opt A Pure Appl Opt*, 2009, 11: 085003

- 37 Liu Z, Wei Q, Zhang X. Surface plasmon interference nanolithography. *Nano Lett*, 2005, 5: 957–961
- 38 Xu T, Zhao Y H, Ma J, et al. Sub-diffraction-limited interference photolithography with metamaterials. *Opt Express*, 2008, 16: 13579–13584
- 39 Xu T, Fang L, Ma J, et al. Localizing surface plasmons with a metal-cladding superlens for projecting deep-subwavelength patterns. *Appl Phys B*, 2009, 97: 175–179
- 40 Yang X F, Fang L, Zeng B B, et al. Deep subwavelength photolithography based on surface plasmon polaritons resonance with metallic grating waveguide heterostructure. *J Opt*, 2010, 12: 045001
- 41 Ge W H, Wang C H, Xue Y F, et al. Tunable ultra-deep subwavelength photolithography using a surface plasmon resonant cavity. *Opt Express*, 2011, 19: 6714–6723
- 42 Dong J J, Liu J, Kang G, et al. Pushing the resolution of photolithography down to 15 nm by surface plasmon interference. *Sci Rep*, 2014, 4: 5618
- 43 Liu Z W, Steele J M, Srituravanich W, et al. Focusing surface plasmons with a plasmonic lens. *Nano Lett*, 2005, 5: 1726–1729
- 44 Liu Z W, Steele J M, Srituravanich W, et al. Tuning the focus of a plasmonic lens by the incident angle. *Appl Phys Lett*, 2006, 88: 171108
- 45 Liu Z W, Wang Y, Yao J, et al. Broad band two-dimensional manipulation of surface plasmons. *Nano Lett*, 2009, 9: 462–466
- 46 Guo X W, Du J L, Yao J. Large-area surface-plasmon polariton interference lithography. *Opt Lett*, 2006, 31: 2613–2615
- 47 Sreekanth K V, Murukeshan V M. Large-area maskless surface plasmon interference for one- and two-dimensional periodic nanoscale feature patterning. *J Opt Soc Am A*, 2010, 27: 95
- 48 Sreekanth K V, Murukeshan V M. Four beams surface plasmon interference nanoscale lithography for patterning of two-dimensional periodic features. *J Vac Sci Technol B*, 2010, 28: 128–130
- 49 Wang X X, Zhang D G, Chen Y, et al. Large area sub-wavelength azo-polymer gratings by waveguide modes interference lithography. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 031103
- 50 Liang G F, Wang C T, Zhao Z Y, et al. Squeezing bulk plasmon polaritons through hyperbolic metamaterials for large area deep sub-wavelength interference lithography. *Adv Optical Mater*, 2015, 3: 1248
- 51 Yang X F, Zeng B B, Wang C T, et al. Breaking the feature sizes down to sub-22 nm by plasmonic interference lithography using dielectric-metal multilayer. *Opt Express*, 2009, 17: 21560–21565
- 52 Zeng B B, Yang X F, Wang C T, et al. Plasmonic interference nanolithography with a double-layer planar silver lens structure. *Opt Express*, 2009, 17: 16783–16791
- 53 Zhu P, Shi H F, Guo L J. SPPs coupling induced interference in metal/dielectric multilayer waveguide and its application for plasmonic lithography. *Opt Express*, 2012, 20: 12521–12529
- 54 Xiong Y, Liu Z W, Zhang X. Projecting deep-subwavelength patterns from diffraction-limited masks using metal-dielectric multilayers. *Appl Phys Lett*, 2008, 93: 111116
- 55 Li Y X, Liu F, Xiao L, et al. Two-surface-plasmon-polariton-absorption based nanolithography. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 063113
- 56 Li Y X, Liu F, Ye Y, et al. Two-surface-plasmon-polariton-absorption based lithography using 400 nm femtosecond laser. *Appl Phys Lett*, 2014, 104: 081115
- 57 Lee H, Xiong Y, Fang N, et al. Realization of optical superlens imaging below the diffraction limit. *New J Phys*, 2005, 7: 255
- 58 Melville D O S, Blaikie R J. Super-resolution imaging through a planar silver layer. *Opt Express*, 2005, 13: 2127–2134
- 59 Chaturvedi P, Wu W, Logeeswaran V J, et al. A smooth optical superlens. *Appl Phys Lett*, 2010, 96: 043102
- 60 Liu H, Wang B, Ke L, et al. High aspect subdiffraction-limit photolithography via a silver superlens. *Nano Lett*, 2012, 12: 1549–1554
- 61 Fang N, Zhang X. Imaging properties of a metamaterial superlens. *Appl Phys Lett*, 2003, 82: 161–163
- 62 Huang S, Wang H, Ding K H, et al. Subwavelength imaging enhancement through a three-dimensional plasmon surface with rough surface. *Opt Lett*, 2012, 37: 1295–1297
- 63 Bagley J Q, Tsang L, Ding K H, et al. Optical transmission through a plasmon film lens with small roughness: Enhanced spatial resolution of images of single source and multiple sources. *J Opt Soc Am B*, 2011, 28: 1766–1777
- 64 Wang H, Bagley J Q, Tsang L, et al. Image enhancement for flat and rough film Plasmon superlenses by adding loss. *J Opt Soc Am B*, 2011, 28: 2499–2509
- 65 Guo Z, Huang Q, Wang C, et al. Negative and positive impact of roughness and loss on subwavelength imaging for superlens structures. *Plasmonics*, 2014, 9: 1003–1010
- 66 Liu H, Wang B, Ke L, et al. High contrast superlens lithography engineered by loss reduction. *Adv Funct Mater*, 2012, 22: 3777–3783
- 67 Pendry J B, Ramakrishna S A, Wiltshire M C K, et al. Imaging the near field. *J Mod Optics*, 2003, 50: 1419–1430
- 68 Wang C T, Du C L, Luo X G. Surface plasmon resonance and super-resolution imaging by anisotropic superlens. *J Appl Phys*, 2009, 106: 1–4

- 69 Melville D O S, Blaikie R J. Experimental comparison of resolution and pattern fidelity in single- and double-layer planar lens lithography. *J Opt Soc Am B*, 2006, 23: 461–467
- 70 Shao D B, Chen S C. Surface-plasmon-assisted nanoscale photolithography by polarized light. *Appl Phys Lett*, 2005, 86: 253107
- 71 Shao D B, Chen S C. Numerical simulation of surface-plasmon-assisted nanolithography. *Opt Express*, 2005, 13: 6964–6973
- 72 Wang C T, Gao P, Zhao Z Y, et al. Deep sub-wavelength imaging lithography by a reflective plasmonics slab. *Opt Express*, 2013, 21: 20683–20691
- 73 Arnold M D, Blaikie R J. Subwavelength optical imaging of evanescent fields using reflections from plasmonic slabs. *Opt Express*, 2007, 15: 11542–11552
- 74 Holzwarth C W, Foulkes J E, Blaikie R J. Increased process latitude in absorbance-modulated lithography via a plasmonic reflector. *Opt Express*, 2011, 19: 17790–17798
- 75 Gao P, Yao N, Wang C T, et al. Enhancing aspect profile of half-pitch 32 and 22 nm lithography with plasmonic cavity lens. *Appl Phys Lett*, 2015, 106: 093110
- 76 Xu F Y, Chen G H, Wang C H, et al. Superlens imaging with a surface plasmon polariton cavity in imaging space. *Opt Lett*, 2013, 38: 3819–3822
- 77 Huang Q Z, Wang C T, Yao N, et al. Improving imaging contrast of non-contacted plasmonic lens by off-axis illumination with high numerical aperture. *Plasmonics*, 2014, 9: 699–706
- 78 Zhao Z Y, Luo Y F, Zhang W, et al. Going far beyond the near-field diffraction limit via plasmonic cavity lens with high spatial frequency spectrum off-axis illumination. *Sci Rep*, 2015, 5: 1320
- 79 Zhang W, Wang H, Wang C T, et al. Elongating the air working distance of near-field plasmonic lens by surface Plasmon illumination. *Plasmonics*, 2015, 10: 51–56
- 80 Fang L, Pan L, Wang C, et al. Superlens imaging lithography for high aspect ratio sub-wavelength pattern employing trilayer resist process. *Microelectron Eng*, 2013, 110: 35–39
- 81 Luo J, Zeng B, Wang C, et al. Fabrication of anisotropically arrayed nano-slots metasurfaces using reflective plasmonic lithography. *Nanoscale*, 2015, 7: 18805–18812
- 82 Heltzel A, Theppakuttai S, Chen S V C, et al. Surface plasmon-based nanopatterning assisted by gold nanospheres. *Nanotechnology*, 2008, 19: 025305
- 83 Wang Y, Srituravanich W, Sun C, et al. Plasmonic near-field scanning probe with high transmission. *Nano Lett*, 2008, 8: 3041–3045
- 84 Wang L, Uppuluri S M, Jin E X, et al. Nanolithography using high transmission nanoscale bowtie apertures. *Nano Lett*, 2006, 6: 361–364
- 85 Srituravanich W, Pan L, Wang Y, et al. Flying plasmonic lens in the near field for high-speed nanolithography. *Nat Nanotechnol*, 2008, 3: 733–737
- 86 Pan L, Park Y, Xiong Y, et al. Maskless plasmonic lithography at 22 nm resolution. *Sci Rep*, 2011, 1: 175
- 87 Wang Y H, Yao N, Zhang W, et al. Forming sub-32-nm high aspect plasmonic spot via bowtie aperture combined with metal-insulator-metal scheme. *Plasmonics*, 2015, 10: 1607–1613
- 88 Murphy-DuBay N, Wang L, Kinzel E C, et al. Nanopatterning using NSOM probes integrated with high transmission nanoscale bowtie aperture. *Opt Express*, 2008, 16: 2584–2589
- 89 Uppuluri S M V, Kinzel E C, Li Y, et al. Parallel optical nanolithography using nano scale bowtie aperture array. *Opt Express*, 2010, 18: 7369–7375
- 90 Wen X L, Traverso L M, Srisungsithisunti P, et al. High precision dynamic alignment and gap control for optical near-field nanolithography. *J Vac Sci Technol B*, 2013, 31: 041601
- 91 Wen X L, Traverso L M, Srisungsithisunti P, et al. Optical nanolithography with $\lambda/15$ resolution using bowtie aperture array. *Appl Phys A*, 2014, 117: 307–311
- 92 Kim Y, Kim S, Jung H, et al. Plasmonic nano lithography with a high scan speed contact probe. *Opt Express*, 2009, 17: 19476–19485
- 93 Kim S, Jung H, Kim Y, et al. Resolution limit in plasmonic lithography for practical applications beyond 2x-nm half pitch. *Adv Mater*, 2012, 24: OP337–OP344

Surface plasmon lithography beyond the diffraction limit

WANG ChangTao, ZHAO ZeYu, GAO Ping, LUO YunFei & LUO XianGang

State Key Laboratory of Optical Technologies on Nano-fabrication and Micro-engineering, Institute of Optics and Electronics, Chinese Academy of Sciences, Chengdu 610209, China

Due to the light's diffraction feature, conventional optical lithography methods have been suffering from the diffraction limit of resolution, which imposes great obstacles for obtaining nano patterns with ultra-violet and deep ultra-violet light source. Surface plasmons (SPs) are the free electron density waves confined at the interface of metal and dielectric medium, which exhibits unique sub-diffraction optical characteristic in SP propagation, focusing and imaging performances. In recent years, benefiting from SPs' features beyond the diffraction limit, researchers have proposed a variety of SP lithography methods in the manner of interference, imaging and direct writing, demonstrating both in theoretical simulations and experiments that the sub-diffraction resolution could be readily obtained in SP lithography just using ultra-violet light source and single exposure process. The SPs interference lithography is simple and easy to realize nano periodic patterns with short wavelength of SPs, but usually deliver some shortcomings, like greatly restricted interference area size and complex fabrications of exciting structures. Bulk plasmon polaritons formed by greatly coupled SPs was proposed and demonstrated in our work for deep subwavelength large area interference lithography without the necessity of subwavelength exciting structures. SPs lithography in direct writing manner mainly originates from localized surface plasmon resonance behaviors of nano particles or metallic tips, further investigations of bow-tie structure and SP focusing lens with specific nano structures deliver enhanced resolution and intensity efficiency and help to realize point to point writing lithography with much more flexibility. Plasmonic lens imaging lithography seems to be particular interesting for applications as projecting nano irregular patterns in one exposure step. Superlens, as a simplified version of perfect lens, provides the physical prototype of SP imaging lithography. Further, the contributions of metal-dielectric-metal cavity lens and SP wave front engineering methods, like off axis illumination and near field proximity corrections, deliver great quality improvement of lithography patterns, including resolution, aspect ratio and fidelity. Half pitch resolution down to 22 nm ($\sim 1/17$ light wavelength) has been obtained in SP imaging lithography experiments. Also some functional devices, like meta-lens and polarizer, have been successfully fabricated by plasmonic lens imaging lithography. It shows that SP helps to give a potentially promising access for high resolution, efficient, large area and low cost nano lithography tools. Besides the review and analysis of research progress, representative achievements of SP lithography, the remained problems and outlook of further developments are presented as well in this review.

surface plasmon, optical lithography, super resolution, diffraction limit

doi: 10.1360/N972015-01038