

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6607607号  
(P6607607)

(45) 発行日 令和1年11月20日(2019.11.20)

(24) 登録日 令和1年11月1日(2019.11.1)

(51) Int.Cl.		F I			
<b>GO 1 B</b>	<b>11/00</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>GO 1 B</b>	<b>11/00</b>	<b>H</b>
<b>GO 1 B</b>	<b>11/08</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>GO 1 B</b>	<b>11/08</b>	<b>H</b>
<b>GO 1 B</b>	<b>11/30</b>	<b>(2006.01)</b>	<b>GO 1 B</b>	<b>11/30</b>	<b>P</b>

請求項の数 10 (全 16 頁)

<p>(21) 出願番号 特願2016-47872 (P2016-47872)</p> <p>(22) 出願日 平成28年3月11日 (2016. 3. 11)</p> <p>(65) 公開番号 特開2017-161436 (P2017-161436A)</p> <p>(43) 公開日 平成29年9月14日 (2017. 9. 14)</p> <p>審査請求日 平成30年11月26日 (2018. 11. 26)</p> <p>特許法第30条第2項適用 2016年3月15日に東京理科大学 野田キャンパスで開催された、公益社団法人精密工学会主催の、2016年度精密工学会春季大会学術講演会において、文書をもって発表した。</p>	<p>(73) 特許権者 504174135 国立大学法人九州工業大学 福岡県北九州市戸畑区仙水町1番1号</p> <p>(74) 代理人 100149711 弁理士 服部 耕市</p> <p>(72) 発明者 カチョーンルンルアン パナート 福岡県北九州市戸畑区仙水町1番1号 国立大学法人九州工業大学内</p> <p>(72) 発明者 鈴木 恵友 福岡県北九州市戸畑区仙水町1番1号 国立大学法人九州工業大学内</p> <p>(72) 発明者 白川 裕晃 福岡県北九州市戸畑区仙水町1番1号 国立大学法人九州工業大学内</p> <p style="text-align: right;">最終頁に続く</p>
--	--

(54) 【発明の名称】 微粒子の3D位置特定装置及び特定方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

レーザー光源より入射したレーザー光を屈折率の大きい媒質n1と小さい媒質n2の境界面で全反射させることにより、該境界面の外側近傍に発生させた近接場光を前記小さい媒質n2の中に存在する微粒子に照射し、かつ、該微粒子からの散乱光を検出する散乱光検出手段を備えた微粒子の3D位置特定装置において、

前記レーザー光源を、第1の波長 1を有する第1のレーザー光源と、第1の波長 1とは異なる第2の波長 2を有する第2のレーザー光源によって構成し、

前記散乱光検出手段は、発生した散乱光を第1の波長 1と第2の波長 2の波長毎に分離して検出するイメージセンサを備え、

前記イメージセンサによって検出した波長毎の3次元散乱光強度分布を波長毎に記憶する記憶媒体を備え、

波長毎に記憶されている前記3次元散乱光強度分布より、波長毎に最大強度値を検出する検出手段を備え、かつ、少なくともいずれか一方の波長について検出した最大強度値のx、y座標位置を、微粒子のx、y座標位置として出力し、

波長毎に検出した前記最大強度値を用いて演算する演算手段を備えて、該演算手段は、演算結果を微粒子のz座標位置として出力することからなる微粒子の3D位置特定装置。

【請求項2】

前記屈折率の大きい媒質n1としてレンズ或いはプリズムを用い、或いは該屈折率の大きい

媒質n1'の上に、この媒質n1'と屈折率の略等しいレンズ或いはプリズムを載置した請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

【請求項3】

前記屈折率の大きい媒質n1としてレンズ或いはプリズムを用い、かつ、前記屈折率の小さい媒質n2として用いる流体の下側に被加工材を配置した請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

【請求項4】

前記散乱光検出手段は、発生した散乱光を集光する対物レンズを備えて、該対物レンズは、発生した散乱光を検出可能な任意の位置に配置して、レンズ開口数NAによって決まる所定範囲内の散乱光を集光する請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

10

【請求項5】

前記散乱光検出手段は、散乱光を波長毎に分離する波長分離手段を備えて、前記イメージセンサは、前記波長分離手段により波長毎に分離した散乱光を検出する請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

【請求項6】

前記演算手段による演算は、波長1の最大強度値と、波長2の最大強度値の比 $I_{\lambda 1} / I_{\lambda 2}$ を演算して、微粒子のz座標値を算出する請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

【請求項7】

前記最大強度値の比 $I_{\lambda 1} / I_{\lambda 2}$ の演算は、  
全反射照明条件定数 $\xi_2 > \xi_1$ であり、かつ、 $I_{0, \lambda 1}$ 、 $I_{0, \lambda 2}$ は、照明光強度定数として、

20

【数12】

$$z = \frac{\ln \left( \frac{I_{0, \lambda 2} \cdot I_{\lambda 1}}{I_{0, \lambda 1} \cdot I_{\lambda 2}} \right)}{\xi_2 - \xi_1}$$

によって微粒子のz座標値を算出する請求項6に記載の微粒子の3D位置特定装置。

【請求項8】

第1のレーザー光源に対して、第2のレーザー光源は、逆方向から、屈折率の大きい媒質n1と小さい媒質n2の境界面に入射させた請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

30

【請求項9】

Dは粒径、kは、顕微鏡光学系の定数であるとして、

$$I(D) = D[1 - \exp(-kD)] \cdot D^2$$

の関係式に基づき、微粒子の3次元座標位置情報に加えて、微粒子からの散乱光強度から微粒子の粒径を求める請求項1に記載の微粒子の3D位置特定装置。

【請求項10】

レーザー光源より入射したレーザー光を屈折率の大きい媒質n1と小さい媒質n2の境界面で全反射させることにより、該境界面の外側近傍に発生させた近接場光を前記小さい媒質n2の中に存在する微粒子に照射し、かつ、該微粒子からの散乱光を検出する微粒子の3D位置特定方法において、

40

前記レーザー光源を、第1の波長 $\lambda_1$ を有する第1のレーザー光源と、第1の波長 $\lambda_1$ とは異なる第2の波長 $\lambda_2$ を有する第2のレーザー光源によって構成し、

発生した散乱光を第1の波長 $\lambda_1$ と第2の波長 $\lambda_2$ の波長毎に分離して検出するイメージセンサを備え、

前記イメージセンサによって検出した波長毎の3次元散乱光強度分布を波長毎に記憶し、

波長毎に記憶されている前記3次元散乱光強度分布より、波長毎に最大強度値を検出し、かつ、少なくともいずれか一方の波長について検出した最大強度値のx、y座標位置を、微粒子のx、y座標位置として出力し、

50

波長毎に検出した前記最大強度値を用いて演算した演算結果を、微粒子のz座標位置として出力する、  
ことからなる微粒子の3D位置特定方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、レーザー光を境界面で全反射させることにより発生させた近接場光を液体中の微粒子に照射して、その散乱光を検出することにより微粒子の3次元位置を特定する3D位置特定装置及び特定方法に関する。

10

【背景技術】

【0002】

半導体製造分野、ドラッグデリバリー、バイオマーカー等の分野では、ナノ粒子が多様に用いられており、近年では、光学部品の性能向上及びナノ粒子を用いた新たな測定手法の発展により、電子顕微鏡に頼らず、ナノスケールにおける現象を光学的かつ動的に観察するようになってきている。

【0003】

ナノスケールにおける加工現象を、例えば、ポリシング加工の場合を例として説明する。図13は、ポリシングパッド（マイクロパターンパッド）を用いた化学的機械的研磨装置の動作を説明する図である。平坦化プロセスとして、CMP（Chemical Mechanical Polishing; 化学的機械的ポリシング）技術が採用されている。ウエハは、キャリアにより保持され、回転しているプラテンに貼り付けたポリシングパッド表面上に対して荷重を受けながら回転する。同時に研磨液であるスラリー（研磨粒子が含まれる化学溶液）がポリシングパッド上に供給されることにより研磨が進行する。

20

【0004】

図14は、CMPプロセスによる材料除去現象を説明する図である。材料除去現象は、被ポリシング面に形成された水和分子層に微粒子（粒径数100 nm以下）が凝着した後離れることにより、材料除去が進行すると考えられている。微粒子とスラリー流れがポリシングの微視的挙動に直接影響するが、従来、それらの現象が十分に解明されているとは言い難い。

30

【0005】

本発明者らは、全反射顕微鏡法「非特許文献1」の応用により、単ナノ粒子（粒径50nm以下）を自作装置で動的に追跡することができた「非特許文献2、3」。次に、全反射表面に在るナノ粒子からの（エバネッセント光の）散乱光とその粒子径の特性（関係性）を導いた「非特許文献4」。

【0006】

図15は、非特許文献2に開示の被ポリシング面近傍の現象を可視化する手法を説明する図である。この可視化手法は、単波長のレーザー光を照射した際に発生する近接場光（別名；エバネッセント光）を利用する。近接場光は通常、屈折率の大きい媒質 $n_1$ （本事例では、被加工表面内部）から小さい媒質 $n_2$ （本事例では、加工溶液）にレーザー光が入射する際、入射角が臨界角を超えると全反射が生じる。この反射発生面において、発生したエバネッセント光は発生面垂直方向（加工溶液）へは指数関数的に減衰するが、そこに微小散乱体（ポリシング加工では、ポリシング液中微粒子、場合によっては、ポリシングパッドアスペリティも含める）が侵入すると、伝搬光に変換されるため、その散乱体（微粒子）の挙動が観察可能となる。すなわち、ナノ粒子が被加工界面領域に入るとき（加工に関わるナノ粒子）だけ、散乱光を発生させ、被加工面近傍のみの現象観察が可能になる。

40

【0007】

これによって導かれた散乱光とその粒子径の関係は、該境界面に滞在する粒子径が凡そ散乱光強度の二乗に比例することがわかった「非特許文献4」。しかし、実用上動的観察するためには、単ナノ粒子が常に動いているため、全反射表面にとどまるのではなく、上

50

下（深さ方向にも）運動している点および、任意の粒径により、散乱光からの情報では、いずれも特定することが不可能である。

【 0 0 0 8 】

図 1 6 は、従来提案されていた技術に基づくウェハ上の表面異物検出を説明する図である（非特許文献 5 参照）。図 1 6 は、図 1 5 における屈折率の小さい媒質  $n_2$ （例えば、加工溶液）の下面にウェハを位置させたものに相当する。屈折率の大きい媒質  $n_1$ （例えば、半球レンズ）と小さい媒質  $n_2$ （例えば、加工溶液）の境界面（図示の基準面）に単波長のレーザー光を照射する。これにより発生したエバネッセント光を、ウェハ上の加工溶液中微粒子に照射すると、ある適切な基準面からの深さにより、各微粒子の 2 次元平面内位置（ $x$ 、 $y$  座標）をリング状のフーリエ変換された散乱光パターンにより、特定することができる。

10

【 0 0 0 9 】

2 次元画像平面だけでなく、奥行き又は深さ方向を含めた 3 次元情報を動的に観察するには、深さ方向における走査が必要である。現状は、動的に観察することは可能であるものの、必然的にフレームレートを向上させることが困難である。また、点強度分布の考え方から、一般的に縦（深さ）分解能が 50nm より大きいという問題もある。

【 0 0 1 0 】

なお、特許文献 1 ~ 3 には、エバネッセント光を発生させるために全反射させる種々の手段が開示されている。また、特許文献 4 には、プリズムとか波長選択ミラーを用いる波長分離手段が開示されている。

20

【先行技術文献】

【特許文献】

【 0 0 1 1 】

【特許文献 1】特開 2001-108600

【特許文献 2】特開平 11-211990

【特許文献 3】特開平 09-159922

【特許文献 4】特開 2009-205442

【非特許文献】

【 0 0 1 2 】

【非特許文献 1】P. A. Temple, Total internal reflection microscopy. a surface inspection technique. Applied Optics, 20 (1981) pp. 2656-2664.

30

【非特許文献 2】Panart Khajornrungruang, Patrick J. Dean, and S. V. Babu; Study on Sub 50 nm sized particle dynamic observation in water using evanescent field with mobile apparatus. Proc. of the 29th Annual Meeting of the American Society for Precision Engineering (2014) pp.73-77.

【非特許文献 3】カチョーンルンルアン パナート, 木村景一, S. V. Babu, 鈴木恵友, ナノスケールにおける加工現象可視化に関する研究: 装置の開発, 2015年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集 (2015) pp. 85-86.

【非特許文献 4】Panart Khajornrungruang, Sevim Korkmas, Angshuman Pal, Keisuke Suzuki, Keiichi Kimura and S. V. Babu, Determination of Individual Sub 100 nm Nano-Particle Size in an Evanescent Field using Scattering Light Intensity, Proc. of ADMETA plus 2015 (2015) pp.134-135.

40

【非特許文献 5】吉岡 淑江, 三好 隆志, 高谷 裕浩, 高橋 哲, 輪帯エバネッセント照明による回路パターン付き Si ウエハの表面異物欠陥検出法に関する研究 (第 1 報) - 欠陥検出原理とその検証実験 -, 精密工学会誌論文集, 72, (2006) pp. 878-883.

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 1 3 】

これまで近接場光を用いたナノスケール加工現象可視化により、観察した平面上の 2 次元追跡が可能であるものの、各単ナノ粒子の 3 次元位置情報を高分解能 (10nm 以下)

50

で求めることができていない。

【0014】

そこで、本発明は、係る問題点を解決して、走査せず、ワンショットで各単ナノ粒子の深さ位置  $z$  の情報を得ることにより、3次元位置情報を高分解能 (10nm以下) で求めることを目的としている。これによって、その深さ情報からその各単粒子径情報を得ることも可能になる。

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明の微粒子の3D位置特定装置及び特定方法は、レーザー光源より入射したレーザー光を屈折率の大きい媒質  $n_1$  と小さい媒質  $n_2$  の境界面で全反射させることにより、該境界面の外側近傍に発生させた近接場光を小さい媒質  $n_2$  の中に存在する微粒子に照射し、かつ、該微粒子からの散乱光を検出する散乱光検出手段を備える。

10

【0016】

レーザー光源を、第1の波長  $\lambda_1$  を有する第1のレーザー光源と、第1の波長  $\lambda_1$  とは異なる第2の波長  $\lambda_2$  を有する第2のレーザー光源によって構成する。散乱光検出手段は、発生した散乱光を第1の波長  $\lambda_1$  と第2の波長  $\lambda_2$  の波長毎に分離して検出するイメージセンサを備える。イメージセンサによって検出した波長毎の3次元散乱光強度分布を波長毎に記憶する記憶媒体を備える。波長毎に記憶されている3次元散乱光強度分布より、波長毎に最大強度値を検出する検出手段を備え、かつ、少なくともいずれか一方の波長について検出した最大強度値の  $x$ 、 $y$  座標位置を、微粒子の  $x$ 、 $y$  座標位置として出力する。波長毎に検出した最大強度値を用いて演算する演算手段を備えて、該演算手段は、演算結果を微粒子の  $z$  座標位置として出力する。

20

【0017】

屈折率の大きい媒質  $n_1$  としてレンズ或いはプリズムを用い、或いは該屈折率の大きい媒質  $n_1'$  の上に、この媒質  $n_1'$  と屈折率の略等しいレンズ或いはプリズムを載置して、屈折率の大きい媒質  $n_1$  と小さい媒質  $n_2$  の境界面に入射したレーザー光を全反射させることができる。また、屈折率の大きい媒質  $n_1$  としてレンズ或いはプリズムを用い、かつ、屈折率の小さい媒質  $n_2$  として用いる流体の下側に被検査ウェハを配置することができる。散乱光検出手段は、発生した散乱光を集光する対物レンズを備えて、該対物レンズは、発生した散乱光を検出可能な位置であれば、任意の位置に配置して、レンズ開口数  $NA$  によって決まる所定範囲内の散乱光を集光する。散乱光検出手段は、散乱光を波長毎に分離する波長分離手段を備えて、イメージセンサは、波長分離手段により波長毎に分離した散乱光を検出する。

30

【0018】

演算手段による演算は、波長  $\lambda_1$  の最大強度値と、波長  $\lambda_2$  の最大強度値の比  $I_{\lambda_1} / I_{\lambda_2}$  を演算して、微粒子の  $z$  座標値を算出する。この最大強度値の比  $I_{\lambda_1} / I_{\lambda_2}$  の演算は、全反射照明条件定数  $2 > 1$  であり、かつ、 $I_{\lambda_1}$ 、 $I_{\lambda_2}$  は、照明光強度定数として、

【数1】

$$z = \frac{\ln \left( \frac{I_{0,\lambda_2} \cdot I_{\lambda_1}}{I_{0,\lambda_1} \cdot I_{\lambda_2}} \right)}{\xi_2 - \xi_1}$$

40

によって微粒子の  $z$  座標値を算出する。

【0019】

第1のレーザー光源に対して、第2のレーザー光源は、逆方向から、屈折率の大きい媒質  $n_1$  と小さい媒質  $n_2$  の境界面に入射させることができる。

$D$  は粒径、 $k$  は、顕微鏡光学系の定数であるとして、

$$\text{散乱光強度 } I(D) = D[1 - \exp(-kD)] \cdot D^2$$

50

の関係式に基づき、微粒子の3次元座標位置情報に加えて、微粒子からの散乱光強度から微粒子の粒径を求める。

【発明の効果】

【0020】

本発明によれば、二波長のエバネッセント光を用いることにより、ナノ粒子の奥行き方向（深さ）位置を測定することが可能になった。また、各単粒子の深さ位置 $z$ の情報を得ることにより、点強度分布の限界によらず、ナノスケールにおける高分解能のナノ粒子3次元位置測定（3D追跡）することが可能になった。また、この深さの情報により、単粒子の粒径を同時に測定することができる。

【0021】

これによって、例えば、ナノスケール現象であるポリシング加工における研磨微粒子の挙動（3D追跡および被加工面接触前後の粒子系の変化）を観察し、その微粒子とスラリー流れがポリシングの微視的挙動にどのように直接影響するかなどを解明し、その現象の微粒子による加工現象の機能を解析することができる。

【図面の簡単な説明】

【0022】

【図1】本発明の微粒子の3D位置特定装置の第1の例を示す概念図である。

【図2】図1に例示の半球レンズに代えて、ダブリズムを用いた例を示す図である。

【図3】本発明をポリシング現象観察に適用した例を説明する図である。

【図4】本発明を微粒子検出に適用した例を説明する図である。

【図5】フィルタを用いた波長分離手段の例を説明する図である。

【図6】記憶媒体に記憶されている散乱光分布を説明する図であり、（A）は各波長成分の散乱光分布を示し、また、（B）は散乱光分布の内の一つのピークを例にとり、波長1と波長2の強度値の相違を説明する図である。

【図7】本発明の微粒子の3D位置特定装置の第2の例を示す概念図である。

【図8】微粒子の3D位置特定方法を説明する図である。

【図9】単ナノ粒子からの散乱光量を求めるモデルを示す図である。

【図10】散乱光強度と粒径の関係性を導いた実験結果を示すグラフである。

【図11】二波長エバネッセント光を用いたナノ粒子の散乱光の解析条件を説明する図である。

【図12】図11に示す解析条件で解析した解析結果を示すグラフである。

【図13】ポリシングパッド（マイクロパターンパッド）を用いた化学的機械的研磨装置の動作を説明する図である。

【図14】CMPプロセスによる材料除去現象を説明する図である。

【図15】非特許文献4に開示の被ポリシング面近傍の現象を可視化する手法を説明する図である。

【図16】従来技術に基づくウェハ上の表面異物検出を説明する図である（非特許文献5参照）。

【発明を実施するための形態】

【0023】

図1は、本発明の微粒子の3D位置特定装置の第1の例を示す概念図である。図示の3D位置特定装置において、レーザー光源として、波長1を有する第1のレーザー光源と、波長1とは異なる波長2を有する第2のレーザー光源を用いる。第1及び第2のレーザー光源から発せられたレーザー光は、例えば、ビームスプリッターで合流させたり、或いは多波長ファイバカップリングレーザーを用いる。屈折率の大きい媒質 $n_1$ と小さい媒質 $n_2$ （例えば、加工溶液）の境界面に載置した半球レンズに投射される。入射したレーザー光は当該レンズの下面で全反射させられて、媒質 $n_1$ と媒質 $n_2$ の境界面の外側（例示の場合では下側）の近傍には、近接場光（別名；エバネッセント光）が発生する。3次元（3D）位置特定のために、本発明は近接場光を利用するが、レーザー反射光は使用しない。なお、レーザー光と、それによって発生した近接場光は周波数が同一であり、異なる媒体

10

20

30

40

50

の中で考えると、周波数は変化しないものの波長は変わるというのが厳密な表現である。しかし、検出器として考えた場合、空气中媒体での波長となるので、本明細書において、レーザー光の波長  $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ と、それによって発生した近接場光の波長  $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ は同一であるとして扱う。

#### 【0024】

屈折率の大きい媒質 $n_1$ と小さい媒質 $n_2$ の境界面で全反射させることにより、近接場光が発生することが知られている。全反射させるために、図2は、図1に例示の半球レンズに代えて、ダブリズムを用いた例を示している。ダブリズムは、頂点部分を取り除いた直角プリズムに相当するので、プリズム高さを抑えることが可能である。このため、散乱光検出手段を、プリズムのより近くに配置することが可能となる。また、例示の半球レンズとか、ダブリズムに限らず、全反射させるための種々の手段（特許文献1～3参照）が知られている。本発明は、全反射条件で、レーザー光を入射できるものであれば、従来より公知のどのような手段も用いることができる。

10

#### 【0025】

本発明は、2波長近接場光を用いることによって、ポリシング現象観察をはじめ、現在の使用している半導体製造に使用する液体の不純物ナノ粒子、ナノバブル検出、また、医療分野に全反射顕微鏡に適用することにより、ワンショットで、深さ情報をもとめ、粒径の変化、測定などに寄与することができる。図3は、本発明をポリシング現象観察に適用した例を説明する図である。例えば、ポリシング現象観察に適用する場合、屈折率の大きい媒質 $n_1'$ は、例えばSiCウェハであり、小さい媒質 $n_2$ は流体、例えば加工溶液であり、かつ、ウェハの上に、例えば凸レンズを載置する。凸レンズをウェハ上に設置することにより、全反射境界面は屈折率の大きい媒質（ウェハ） $n_1'$ になる。媒質 $n_1'$ は、媒質 $n_1$ と屈折率が略等しい。これにより、入射レーザー光は、ウェハと流体の境界面で全反射することになる。

20

#### 【0026】

図4は、本発明をウェハ上の微粒子検出に適用した例を説明する図である。図16を参照して説明した従来技術と同様に、屈折率の大きい媒質 $n_1$ は例えば、半球レンズであり、小さい媒質 $n_2$ は空気や液体などの流体であり、かつ、この流体の下面に、被加工材（ウェハ）を位置させる。即ち、半球レンズと被加工材の間に流体を挟むように配置する。このように構成することにより、入射レーザー光は、半球レンズと流体の境界面で全反射することになる。これによって発生した近接場光を、流体内部微粒子の3次元（3D）位置特定のために利用する。この際、被加工材表面からの散乱光も検出されることになるが、背景の情報として予め取得できるため、検出光から被加工材表面の散乱光を差し引くことにより、流体内部微粒子からの散乱光のみを取得することが可能になる。

30

#### 【0027】

なお、図1とか図2においては、半球レンズ或いはダブリズムの直上方向で散乱光を検出するものとして説明したが、散乱光検出手段は、散乱光が放射し、かつ検出可能の位置であれば、例えば、図示のような配置であれば、斜め上方とか、場合によっては下方のような任意の位置に配置することが可能である。また、図1、図2に例示した配置は、いずれも上下反転して、下方より所定の入射角でレーザー光を入射して、下方に散乱した散乱光を検出する散乱光検出手段を下方に配置することも可能である。

40

#### 【0028】

近接場光は発生面垂直方向（例示の場合では下側）へは指数関数的に減衰するが、そこに微小散乱体（加工液中のナノ粒子）が侵入すると、伝搬光に変換されるため、その散乱体（ナノ粒子）の挙動が観察可能となる。すなわち、ナノ粒子が被加工界面領域に入るとき、加工に関わるナノ粒子のみが、散乱光を発生させ、被加工面近傍の現象観察が可能になる。ナノ粒子が被加工面に接触する際（深さ位置 $z=0$ ）、粒子からの光散乱強度が最大となる。発生した散乱光は、散乱光検出手段によって検出される。

#### 【0029】

図1に示すように、散乱光検出手段は、発生した散乱光を集光する対物レンズと、結像

50

レンズと、散乱光を波長毎に分離する波長分離手段と、波長毎に分離した散乱光を検出するCMOSイメージセンサとから構成する。対物レンズは、レンズ開口数NAによって決まる所定範囲内の散乱光を集光する。結像レンズは、イメージセンサの所定領域に散乱光を入射させる。その際、波長分離手段は、波長毎に分離してイメージセンサ上に入射させる。CMOSイメージセンサは、x方向及びy方向にそれぞれ複数ピクセルを2次的に配置して、その上に照射された画像情報を検出するそれ自体周知のものである。波長分離手段は、プリズムとか波長選択ミラー（特許文献4参照）などを用いて波長毎に分離したり、或いは、フィルタを用いて分離するそれ自体周知のものを用いることができる。

【0030】

図5は、フィルタを用いた波長分離手段の例を説明する図である。イメージセンサの各ピクセル毎に、そのピクセルの前面にフィルタAとフィルタBが交互に配置されている。フィルタAは、波長1の入射光を阻止するが、波長2の入射光を透過する。逆に、フィルタBは、波長1の入射光を透過するが、波長2の入射光を阻止する。このようなフィルタAとフィルタBを、x方向とy方向のそれぞれの方向に、交互に配置する。これによって、x方向とy方向のそれぞれ交互のピクセルが、それぞれ波長1の入射光と波長2の入射光を検出する。

【0031】

図1において、イメージセンサで検出された画像データは、波長毎に記憶媒体に記憶される。記憶媒体には、波長1と波長2のそれぞれの散乱光分布が記憶されることになる。図6は、記憶媒体に記憶されている散乱光分布を説明する図であり、(A)は各波長成分の散乱光分布を示し、また、(B)は散乱光分布の内の一つのピークを例にとり、波長1と波長2の強度値の相違を説明する図である。図6(B)の横軸はx座標を、また、縦軸は散乱光強度 $I_m$ を表している。図6(A)に示すような散乱光分布が、波長1と波長2のそれぞれについて記憶されている。図6(A)中に複数個示されているピーク位置は、微小散乱体（加工液中のナノ粒子）の位置に対応している。それ故に、そのピークのx, y座標位置は、微小散乱体のx, y座標位置に対応する。このx, y座標位置は、波長が相違しても、同一である。それ故に、微小散乱体のx, y座標位置は、波長1と波長2の散乱光分布のいずれから取得しても良い。図6(B)に示すように、波長1と波長2のそれぞれのピーク値（最大強度値） $I_1$ と $I_2$ は、深さ位置（z座標）に応じて相互に異なる値となる。この最大強度値 $I_1$ 、 $I_2$ は、図1に示すように、波長1と波長2のそれぞれのために設けた最大強度値検出手段によって検出される。

【0032】

図1に示す演算手段は、詳細は後述するように、波長1の最大強度値と、波長2の最大強度値の比 $I_1/I_2$ を演算して、微小散乱体のz座標値（深さ位置）を算出する。

【0033】

図7は、本発明の微粒子の3D位置特定装置の第2の例を示す概念図である。図1に示した第1の例とは、波長2を有する第2のレーザー光源の配置及び入射方向のみが異なっている。波長1を有する第1のレーザー光源に対して、波長1とは異なる波長2を有する第2のレーザー光源は、逆方向から、屈折率の大きい媒質 $n_1$ と小さい媒質 $n_2$ の境界面に載置した半球レンズに投射される。第1と第2のレーザー光源は、光源内に相手側のレーザー光が入射しないように、それぞれの入射角度を互いに異なる値に設定することも対応可能である。これによって、図1を参照して説明したのと同様に、媒質 $n_1$ と媒質 $n_2$ の境界面の外側（例示の場合では下側）の近傍には、近接場光が発生する。そして、そこに微小散乱体が侵入すると、その散乱体（ナノ粒子）の3次元位置が特定されることになるが、その動作は、図1と同様であるので、その詳細な説明は省略する。

【0034】

図8は、微粒子の3D位置特定方法を説明する図である。図8は、異なる波長1、2を有する2つのレーザー光を用いる点で、1つのみの波長を有するレーザー光を用いる上述した図15とは異なっている。

【0035】

10

20

30

40

50



本発明の3D位置特定方法は、それぞれ波長 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ を有する照射光強度 $I_{0,\lambda_1}$ 、 $I_{0,\lambda_2}$ の入射光が、屈折率の大きい媒質 $n_1$ から小さい媒質 $n_2$ に入射する。この際、入射角が臨界角を超えると全反射が生じる。この反射発生面において、自由空間伝搬をしない表面近傍のみに局在する近接場光が発生する。ナノ粒子が被加工界面領域に入るとき（加工に関わるナノ粒子）だけ、散乱光が発生させ、被加工面近傍のみの現象観察が可能になる。ナノ粒子が被加工面に接触する際（深さ位置 $z=0$ ）、粒子からの光散乱強度が最大となる。発生した散乱光は、散乱光検出手段によって検出される。

【0036】

図8の下方に、3次元の3つの位置 $(x_1, y_1, z_1)$ 、 $(x_2, y_2, z_2)$ 、 $(x_3, y_3, z_3)$ にある粒子を例として、それぞれの粒子から発生した散乱光を、2つの波長 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ のそれぞれについて例示している。2次元平面上の位置 $(x, y)$ は、上述したように、散乱光の発生した位置から特定する。深さ位置 $z$ は、2次元平面上の位置 $(x, y)$ 毎に、かつ2つの波長 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ 毎に検出した散乱光強度分布の最大値を求め、下記式(数2)に示すように、その最大値の比 $I_{\lambda_1}/I_{\lambda_2}$ を演算することにより求める。

10

【数2】

$$z = \frac{\ln\left(\frac{I_{0,\lambda_2} \cdot I_{\lambda_1}}{I_{0,\lambda_1} \cdot I_{\lambda_2}}\right)}{\xi_2 - \xi_1}$$

20

但し、全反射照明条件定数 $\xi_2 > \xi_1$ であり、 $I_0$ は、照明光強度定数である。

【0037】

(数1の根拠)

次に、深さ位置 $z$ が、上記[数1]に基づき、散乱光強度分布の最大値の比 $I_{\lambda_1}/I_{\lambda_2}$ から求められることの根拠について、さらに説明する。

【0038】

1. 作用表面におけるナノ粒子からの散乱光強度

図9は、作用表面に在る単ナノ粒子からの散乱光量を求めるモデルを示す。ナノ粒子径を $D$ とする。深さ位置 $z$ からの散乱光強度 $I(z)$ は、以下の式で表すことができる。

30

【数3】

$$I(z) = I_0 \times \exp\left[-\frac{4\pi z \sqrt{n_1^2 \sin^2 i - n_2^2}}{\lambda}\right]$$

図示のように、水平右方向を $\theta = 0$ とする角度 $\theta$ を定義すると、粒子表面上の深さ位置 $z(\theta)$ は、 $\theta$ の関数として、以下のように表すことができる。

$$z(\theta) = D/2 \times (1 - \sin \theta)$$

【0039】

粒子表面上 $z(\theta)$ の位置からの散乱光量は、以下のように表すことができる。

40

【数4】

$$\pi D \cos \theta \times \frac{D}{2} d\theta \times I(z)$$

【0040】

この $z(\theta)$ の位置からの散乱光量は、上部にある開口数NAの対物レンズにより、集められる。集めた量は、以下の積分式(1)で示される。式(2)に示すように、単ナノ粒子からの散乱光分布を検出した際の最大値 $I_{peak}$ は直径の二乗に比例することを意味する。ただし、 $i$ は照射光の入射角で、 $I_0$ は、照射光強度であり、入射条件は次式で表される。

50

【数 5】

$$\xi = \frac{4\pi\sqrt{n_1^2 \sin^2 i - n_2^2}}{\lambda}$$

【数 6】

$$\begin{aligned} I_{ac,\lambda}(D) &= \int_{\theta=\arcsin NA}^{\theta=\frac{\pi}{2}} I_{\lambda}[z(\theta)] \times \pi D \cos \theta \times \frac{D}{2} d\theta \\ &= I_{0,\lambda} \frac{\pi D}{\xi} \left[ 1 - \exp\left(-\xi \frac{(1-NA)D}{2}\right) \right] \approx I_{0,\lambda} \frac{(1-NA)\pi}{2} D^2 \end{aligned} \quad (1)$$

【数 7】

$$I_{\text{peak},\lambda}(D; \text{at } z = 0) \equiv I_{\lambda}(D) \propto I_{0,\lambda} D^2 \quad (2)$$

【0041】

2. 任意深さ位置におけるナノ粒子からの散乱光強度

次に式(1)を任意の深さzに拡張すると式(3)のように展開し、示すことができる。式(4)は任意の深さにある単ナノ粒子の散乱光分布の最大値を示す。

【数 8】

$$\begin{aligned} I_{ac,\lambda}(D, z) &= \int_{\theta=\arcsin NA}^{\theta=\frac{\pi}{2}} I_{\lambda}\left[z + \frac{D}{2} \times (1 - \sin \theta)\right] \times \pi D \cos \theta \times \frac{D}{2} d\theta \\ &\approx I_{0,\lambda} \exp(-\xi z) \frac{(1-NA)\pi}{2} D^2 \end{aligned} \quad (3)$$

【数 9】

$$I_{\lambda}(D, z) \propto I_{0,\lambda} \exp(-\xi z) D^2 \quad (4)$$

【0042】

3. 二波長エバネッセント光による粒子の深さ位置測定

上述したように、図8は、二波長のエバネッセント光を発生させた際に異なる深さ位置における二波長それぞれの強度分布の形態を示すが、それらの関係式は、式(5)によって表される。

【数 10】

$$\begin{aligned} I_{\lambda 1}(D, z) &\propto I_{0,\lambda 1} \exp(-\xi_1 z) D^2 \\ I_{\lambda 2}(D, z) &\propto I_{0,\lambda 2} \exp(-\xi_2 z) D^2 \end{aligned} \quad (5)$$

## 【0043】

実際の現象では、未知のナノ粒子径Dの作用表面近傍の挙動を観察する。そこで、式(5)において、入射光強度  $I_{o1}$ 、 $I_{o2}$  および入射条件定数  $1$ 、 $2$  が既知であるため、二波長散乱光強度分布の最大値の比  $I_{1} / I_{2}$  をとり、上述した式(数1)に代入すると、ナノ粒子深さ  $z$  を求めることが可能になる。これにより、従来では平面上の2次元的な追跡に、深さの位置情報が加わることにより、ナノ単粒子の3次元空間追跡が実現される。

## 【0044】

(ナノ粒子径の特定)

本発明者らは、散乱光強度とナノ粒子粒径の関係を導いた式を既に開示した(非特許文献4参照)。本発明は、複数波長のレーザー照射光を用いることにより、上述したように、ナノ粒子の深さ位置を求めて、3D(3次元)ナノ粒子の追跡が可能となるが、さらに、非特許文献4に開示の関係式を組み合わせることにより、同時に粒径も特定することもできる。

10

## 【0045】

図10は、散乱光強度と粒径の関係性を導いた実験結果を示すグラフである。図10に示すグラフは、深さ位置  $z$  を、ナノ粒子が表面に停まった場合に固定して、横軸に粒子サイズをとって、縦軸に散乱光強度の明るさをグレー表示で示したグラフである。グラフに示すように、粒子サイズが、大きくなる程に、散乱光強度の明るさが増すことが分かる。即ち、散乱光強度情報が分かると、粒径情報を得ることが可能になる。

20

## 【0046】

エバネッセント場が及ぼす表面に在るナノ粒子からの散乱光強度と粒径の関係性は、以下の式で表されることが実験により確かめられた。

$$\text{散乱光強度 } I(D) = D[1 - \exp(-kD)] D^2$$

ただし、 $k$ は、顕微鏡光学系の定数である。

## 【0047】

本発明によれば、二波長のエバネッセント光を用いることにより、ナノ粒子の奥行き方向(深さ)位置を測定することが可能になった。また、各単粒子の深さ位置  $z$  の情報を得ることにより、点強度分布の限界によらず、ナノスケールにおける高分解能のナノ粒子3次元位置測定(3D追跡)することが可能になった。また、この深さ  $z$  の情報により、式(6)へ代入すると、単粒子の粒径を同時に測定することができる。は上述した入射条件である。

30

## 【数11】

$$D = \sqrt{\frac{I_{\lambda} K}{I_{0,\lambda}} \exp(\xi z)} \quad \text{ただし、} K \text{ は光学系条件定数である... (6)}$$

## 【実施例】

## 【0048】

図11は、二波長エバネッセント光を用いたナノ粒子の散乱光の解析条件を説明する図である。入射角  $i$  を  $70^\circ$  に固定して、波長  $\lambda$  を  $450\text{nm}$ 、 $520\text{nm}$ 、 $650\text{nm}$  の組み合わせで解析した。

40

## 【0049】

図12は、図11に示す解析条件で解析した解析結果を示すグラフである。このグラフは、深さ位置  $z$  を横軸にして、2つの波長  $1$ 、 $2$  毎に算出した散乱光強度分布の最大値の比  $I_{1} / I_{2}$  を縦軸に示している。このグラフによれば、2波長の差が比較的小さいとき、より深い位置の粒子を観察することができ、また、2波長の差が比較的大きいとき、感度が高くなることが分かる。

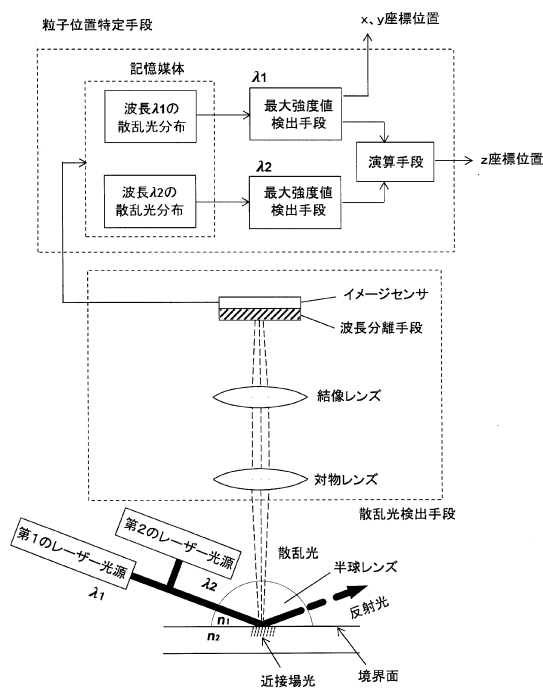
## 【0050】

最良条件は、16ビットの受光素子アレイを用いた際に、全反射照射波長  $450\text{nm}$  および  $650$

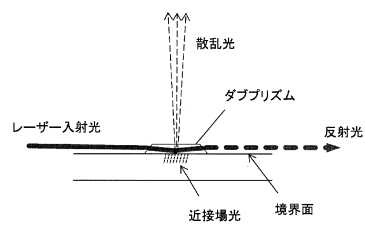
50

nmの場合で、入射角80度で、50nmのナノ粒子を観測した際に、深さ400nmまで10nmの分解能で測定することができた。

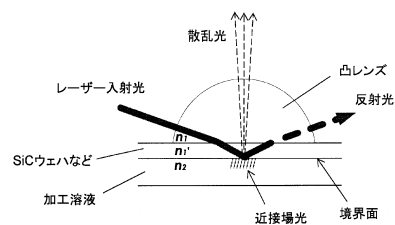
【図1】



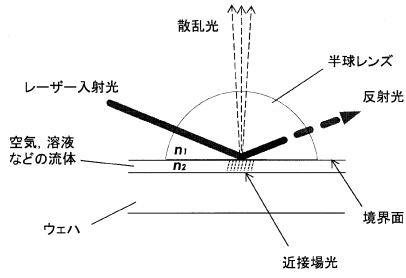
【図2】



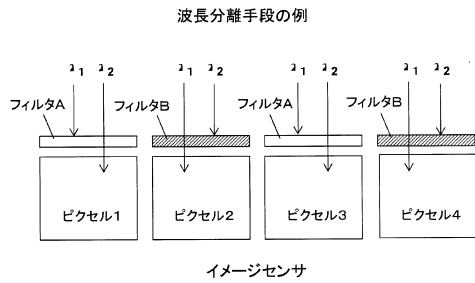
【図3】



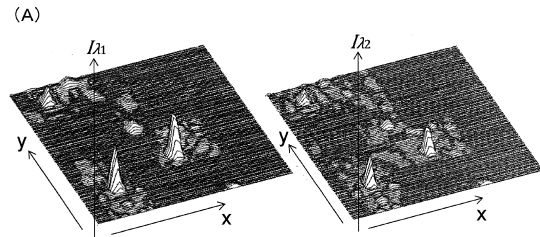
【図4】



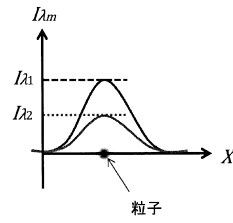
【図5】



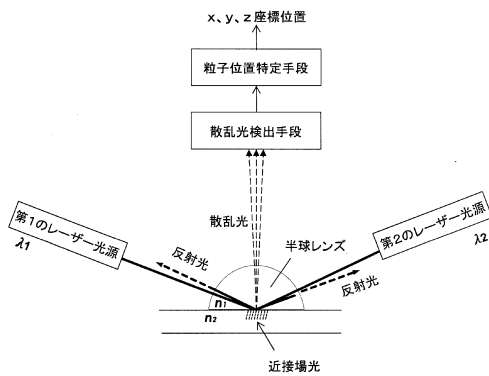
【図6】



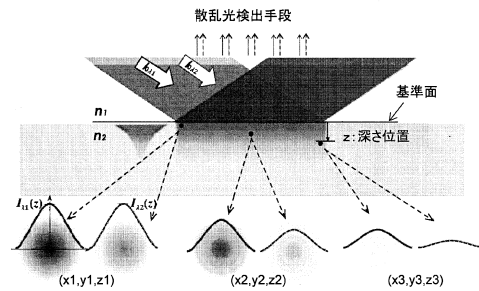
(B)



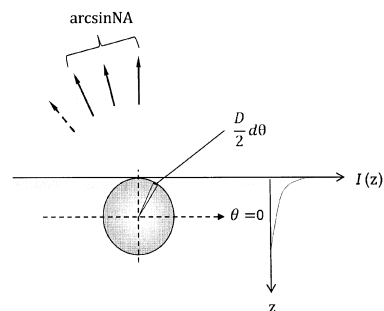
【図7】



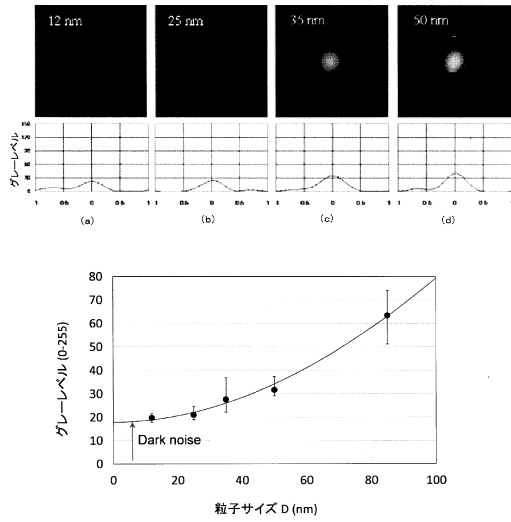
【図8】



【図9】



【図 1 0】

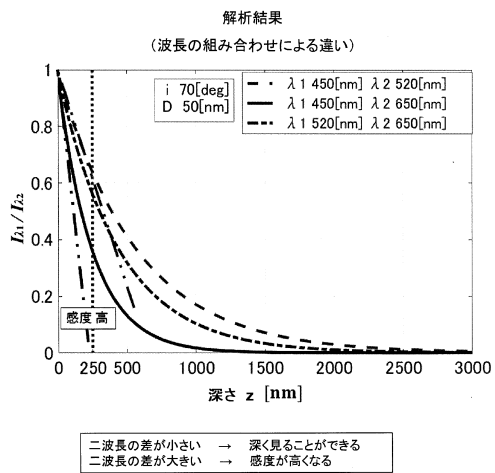


【図 1 1】

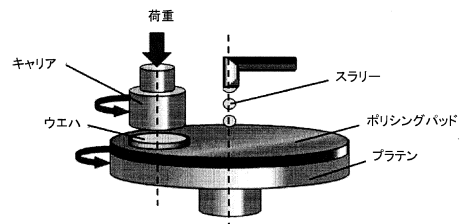
二波長エバネッセント光を用いたナノ粒子の散乱光の解析

粒子サイズ D	[nm]	50
レーザー照射		
- 波長 $\lambda$	[nm]	450, 520, 650
- 照射光強度 $I_0$	[a.u]	0.1
- 入射角 $i$	[deg]	70
対物レンズ開口数 (NA)		0.5
屈折率		
- $n_1$ (glass)		1.5
- $n_2$ (water)		1.33

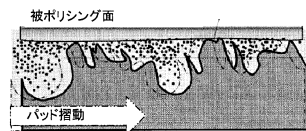
【図 1 2】



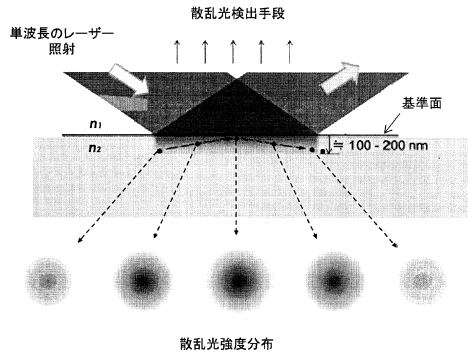
【図 1 3】



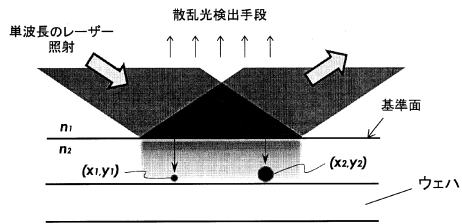
【図 1 4】



【図15】



【図16】



---

フロントページの続き

(72)発明者 堺 航也

福岡県北九州市戸畑区仙水町1番1号 国立大学法人九州工業大学内

審査官 櫻井 仁

(56)参考文献 特表2016-516194(JP,A)

特開2008-14832(JP,A)

米国特許出願公開第2010/0259254(US,A1)

特開2001-108600(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G01B 11/00 - 11/30

G01N 21/17