

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 19 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23656245

研究課題名(和文)モンテカルロ法・分子動力学法融合型次世代電子線リソグラフィシミュレーションの開発

研究課題名(英文)Molecular simulation of pattern formation in electron beam lithography

研究代表者

安田 雅昭 (YASUDA, Masaaki)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：30264807

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円、(間接経費) 900,000円

研究成果の概要(和文)：電子散乱のモンテカルロ法と分子動力学法を組み合わせることにより、分子レベルでパターン形成過程を再現できる電子線リソグラフィシミュレーションを開発した。電子線露光過程はモンテカルロ法により求めたレジスト中の吸収エネルギー分布に基づきレジスト分子の主鎖を切断することで再現した。現像過程は電子線露光により切断された分子切片を小さなものより順に表面から除去して行くことで再現した。開発したシミュレーションにより、パターンの形成過程、ラインエッジラフネス、有機高分子試料の電子線照射損傷を解析することが出来た。

研究成果の概要(英文)：We developed molecular simulation to investigate the pattern formation in electron beam lithography. We introduced the effect of electron exposure by the chain scission of the polymer molecules. The breaking positions in the polymer chain are randomly selected. The chain scission rate is set proportional to the absorbed energy distribution in the polymer materials calculated by the Monte Carlo simulation of the electron scattering. In the development process, the small segments of polymer molecules are removed from the resist structure. Our present simulation revealed the typical structure of atomic scale line edge roughness and electron irradiation damage of the sample.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子デバイス・電子機器

キーワード：電子線リソグラフィ モンテカルロ法 分子動力学法 電子線露光 現像 レジスト

1. 研究開始当初の背景

(1) 従来の電子線リソグラフィシミュレーションは、連続体としての試料中における電子散乱の軌跡を計算し、それより求まる試料中の吸収エネルギー分布から現像後の加工パターン形状を予測するものであった。

(2) 加工パターンの微細化にともない、加工形状予測には被加工材料である有機高分子試料を構成する分子挙動を考慮に入れたシミュレーションの必要性が高まっている。

2. 研究の目的

(1) 電子散乱のモンテカルロ法と分子動力学法を組み合わせることにより、電子線照射下の有機高分子の挙動を解析し、有機高分子薄膜の構造変化よりパターン形成を再現する新奇な電子線リソグラフィシミュレーションを開発する。

(2) 開発するシミュレーションにより、パターン形状やラインエッジラフネスの加速電圧依存性や露光量依存性に関するデータを蓄積する。

(3) 開発するシミュレーションを応用し、電子顕微鏡観察下の有機高分子試料の電子線照射損傷に関する知見を得る。

3. 研究の方法

(1) 電子線照射効果を導入した分子動力学シミュレーションにより有機高分子試料の電子線照射による構造変化を理論解析した。分子動力学法の原子間ポテンシャルは、有機高分子内の共有結合には結合距離、結合角、捻れ角に依存する力を表したポテンシャル関数を、また、有機高分子間と、有機高分子と基板の原子間にはファン・デル・ワールス力とクーロン力の非共有結合力に対応したポテンシャル関数を用いた。

(2) 電子線照射効果の中で、弾性衝突による効果は微分衝突断面積を用いて電子の散乱角度を確率的に決定し、二体衝突理論により衝突を受けた有機高分子への運動量移行を計算することにより導入した。

(3) 電子線照射効果の中で、非弾性衝突による効果は電子散乱のモンテカルロ法を用いて求めた有機高分子試料中の吸収エネルギー分布に基づいて有機高分子の主鎖や側鎖を切断することにより導入した。

(4) 電子線リソグラフィの露光シミュレーションでは、電子線露光領域に対して上記の非弾性衝突効果としての主鎖切断を導入することで被加工高分子試料(レジスト)の化学変化を再現した。分子動力学シミュレーションでは主鎖切断と構造緩和を交互に行った。

(5) 電子線リソグラフィの現像シミュレーションでは、電子線露光を受けたレジストに対し分子量の小さなものから順に構成高分子を試料表面から除去していくことによりパターンの形成過程を再現した。分子動力学シミュレーションでは分子切片除去と構造緩和を交互に行った。

4. 研究成果

(1) 電子線露光のシミュレーションによるレジスト分子の構造変化の解析：

電子線露光されたレジスト分子の構造変化を解析した。レジスト分子はポリメタクリル酸メチル(PMMA)とした。図1に一つのPMMA分子をマーカー分子として選んで構造変化の過程を示している。PMMA分子は電子の非弾性衝突の結果として主鎖が切断され、多数の分子切片に分断される。分断された分子切片は初期位置から移動するため、分断後の構造からは元の分子の構造を認識することが難しくなっている。

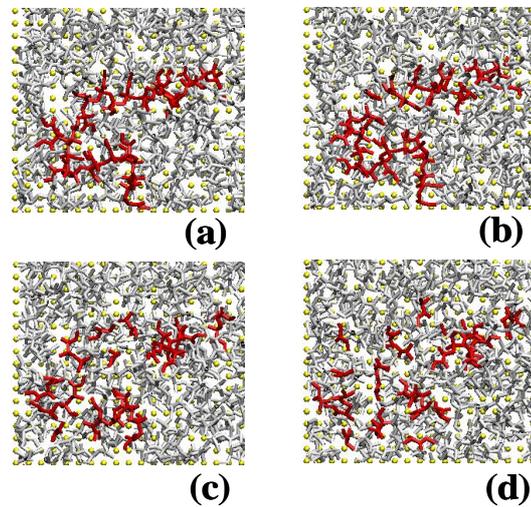


図1 電子線露光によるPMMA分子の構造変化の解析結果。電子線露光開始より(a)0、(b)1、(c)3、(d)7ピコ秒後の構造を示している。

(2) 電子線リソグラフィの現像過程のシミュレーション解析：

電子線露光により分断された分子切片を小さなものより順に表面から除去して行くことにより、電子線リソグラフィの現像過程の解析を行った。試料はシリコン基板上のPMMAレジスト薄膜とした。電子散乱のモンテカルロ法を用いて求めたレジスト薄膜中の吸収エネルギー分布に比例させてレジスト分子の主鎖を切断した後、現像シミュレーションを実施した。図2は加速電圧100kVで露光した2nm幅のラインパターンの現像過程のシミュレーション結果の一例である。現像の進行に伴い、レジスト薄膜が分子単位で表面から除去されて行き、パターンが形成されて行く過程が再現されている。パターンの側壁は分子レベルの乱れ(ラフネス)が見られる。

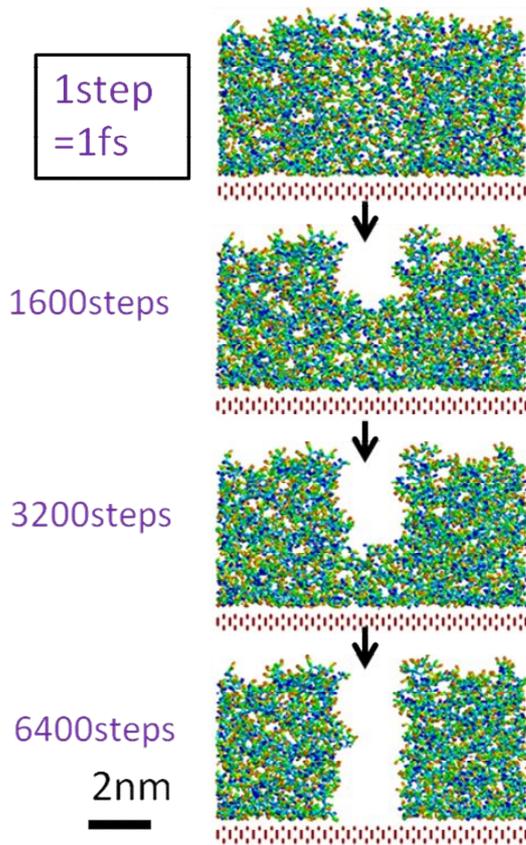


図 2 加速電圧 100kV で電子線露光された 2nm パターンの現像過程のシミュレーション結果。

(3) 電子線リソグラフィにより形成されたパターンのラインエッジラフネスの解析：
上記で開発したシミュレーション手法により形成されたレジストパターンの構造を解析し、ラインパターンのエッジに見られるラフネス(ラインエッジラフネス)を評価した。図 3 に結果の一例を示す。加速電圧 1kV で露光されたラインパターンのエッジ構造であり、分子鎖の突出のような分子レベルのラフネスが見られた。

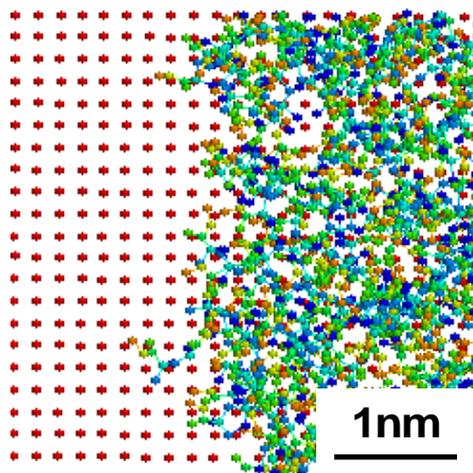


図 3 加速電圧 1kV で電子線露光されたパターンのラインエッジラフネスの解析結果。

(4) ラインエッジラフネスの露光および現像条件依存性の解析：

開発したシミュレーション手法により露光および現像条件を変えて形成されたレジストパターンの構造を解析し、ラインエッジラフネスの加工条件依存性を評価した。図 4 に一例として加速電圧依存性の解析結果を示す。加速電圧が大きくなるほど電子の散乱の影響が抑制され、ラインエッジラフネスは小さくなった。また、現像により除去する分子切片の重合数 (n) が大きくなるほどラインエッジラフネスは大きくなった。これは、現像時間が長くなるほど、また、より強い現像液で現像するほどラフネスが大きくなることに対応する。また、露光量を変えた解析結果では露光量が大きくなるほどラインエッジラフネスは小さくなった。

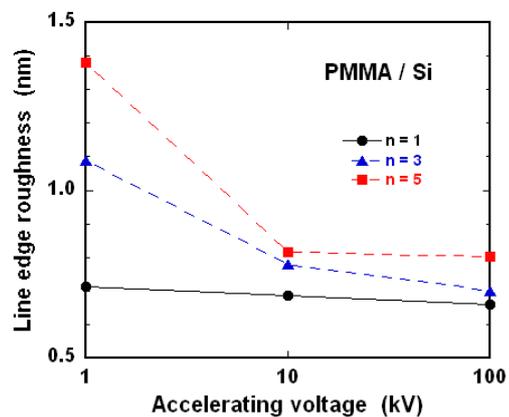


図 4 ラインエッジラフネスの加速電圧依存性の解析結果。

(5) 有機高分子試料の電子線照射損傷の解析 (弾性衝突効果)：

本課題で開発したシミュレーション手法を応用し、有機高分子試料の電子線照射損傷の解析を行った。まず、弾性衝突のみ導入し、PMMA レジスト試料の損傷を解析した。図 5 に結果の一例を示す。加速電圧 10kV で電子線照射される前後の PMMA レジストの構造であり、電子線照射によりレジスト試料が高さ方向には圧縮され、横方向には延伸されていることが分かる。実験に見られるようなレジスト試料の収縮は見られていない。また、分子動力学解析では解析時間が短いため、実際よりも電子衝突量を多くして構造変化を再現しており、実際の構造変化はずっと小さいことが予測される。このことから照射損傷における弾性衝突の寄与は小さいと考えられる。

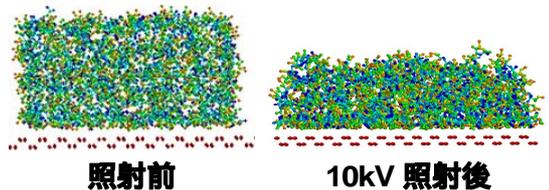


図 5 有機高分子試料の電子線照射損傷の解析結果。弾性衝突のみ導入した場合。

(6) 有機高分子試料の電子線照射損傷の解析(非弾性衝突効果):

次に、非弾性衝突の効果として、PMMA 分子の側鎖除去を導入し、PMMA レジスト試料の損傷を解析した。図5に示したようにレジスト試料の収縮が再現された。このことから実験に見られるレジスト試料の収縮は側鎖の分解と生成ガスの放出によるものと考えられる。

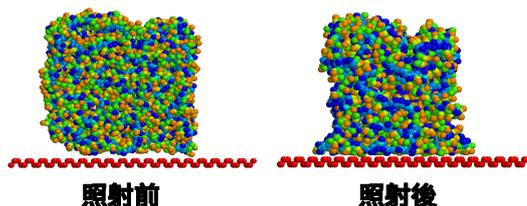


図6 有機高分子試料の電子線照射損傷の解析結果。非弾性衝突のみ導入した場合

(7)まとめ:

電子散乱のモンテカルロ法と分子動力学法を組み合わせることにより、分子レベルでパターン形成過程を再現できる電子線リソグラフィシミュレーションを開発し、パターンの形成過程、ラインエッジラフネス、電子線照射損傷を解析することが出来た。開発したシミュレーションはナノスケールのパターン形状評価において有力な解析ツールとなることが期待できる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計2件)

- 1 安田雅昭、多田和広、平井義彦、トップダウンナノ加工のシミュレーションとナノ空間創生、機能材料、査読無、Vol.34、2014、41-49.
- 2 M. Yasuda, H. Sakai, R. Takai, H. Kawata, Y. Hirai, Molecular Simulation of Pattern Formation in Electron Beam Lithography, Microelectronic Engineering, 査読有、Vol.112、2013、287-290.

[学会発表](計11件)

- 1 道下勝司、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、電子線リソグラフィの分子シミュレーション(2)、第61回応用物理学会春季学術講演会、相模原、2014年03月18日.
- 2 K. Michishita, M. Yasuda, H. Kawata and Y. Hirai, Electron Beam Lithography Simulation for Nanometer-scale Patterning, 2013 International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, Japan, November 6, 2013.
- 3 道下勝司、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、電子線リソグラフィにおけるライン

エッジラフネスの分子動力学解析(2)、第18回分子動力学シンポジウム、東京都、2013年05月17日.

- 4 道下勝司、高井里奈、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、電子線リソグラフィの分子シミュレーション、第60回応用物理学会春季学術講演会、厚木、2013年03月28日.
- 5 高井里奈、酒井裕史、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、電子線リソグラフィにおけるパターン形成の分子シミュレーション、第53回真空に関する連合講演会、神戸、2012年11月15日.
- 6 M. Yasuda, H. Sakai, H. Kawata, Y. Hirai, Molecular Dynamics Study of Pattern Formation in Electron Beam Lithography, 38th International Conference on Micro- and Nano-Engineering 2012, Toulouse, France, September 17, 2012.
- 7 酒井裕史、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、電子線リソグラフィにおけるラインエッジラフネスの分子動力学解析、第17回分子動力学シンポジウム、東京都、2012年06月05日.
- 8 M. Yasuda, K. Araki, H. Sakai, H. Kawata, Y. Hirai, Molecular Simulation of Electron-Irradiation Damages in Resist Materials (招待講演)、Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication, Hawaii, USA, MAY 30, 2012.
- 9 安田雅昭、荒木康誠、酒井裕史、川田博昭、平井義彦、SEM観察における有機高分子試料の構造変化解析、日本顕微鏡学会第68回学術講演会、つくば、2012年05月14日.
- 10 荒木康誠、酒井裕史、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、分子動力学法による有機高分子材料の電子線照射損傷の解析、第58回応用物理学会関係連合講演会、東京都、2012年03月16日.
- 11 荒木康誠、酒井裕史、安田雅昭、川田博昭、平井義彦、有機高分子試料への電子ビーム照射の分子シミュレーション(2)、第52回真空に関する連合講演会、東京都、2011年11月16日.

[図書](計0件)

[産業財産権]
出願状況(計0件)

[その他]

6. 研究組織

(1)研究代表者

安田 雅昭 (YASUDA MASA AKI)
大阪府立大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 30264807