

平成 30 年 5 月 18 日現在

機関番号：24403

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13978

研究課題名(和文)スケール境界領域におけるパターン形成技術に関する理論的研究

研究課題名(英文)Computational study of pattern formation process in scale-boundary region

研究代表者

安田 雅昭 (YASUDA, MASAOKI)

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

研究成果の概要(和文)：ナノとマクロをつなぐスケール境界領域のパターン形成過程を支配する物理的および化学的要因を明らかにすることを目的に、多種のパターン形成技術を対象にマルチスケール解析を実施した。電子線や極端紫外線リソグラフィでは、レジスト分子のサイズよりパターンサイズが十分大きなときは、露光や現像条件がパターン形状の決定に対して支配的であるが、分子サイズと同程度あるいはそれより小さなサイズのパターンでは、レジスト分子の構造と挙動がパターン形状の決定に大きな影響を及ぼすことが示された。ナノインプリントについても、レジスト分子のサイズとパターンサイズの相関により形成されるパターン形状が決定されることが示された。

研究成果の概要(英文)：Multiscale simulations are performed to clarify the factors to determine the pattern formation process in scale-boundary region. In the electron beam and extreme ultraviolet lithography, when the pattern size is enough large compared to the resist molecular size, the exposure and development conditions becomes dominant in the pattern formation process. However, the pattern size becomes smaller than the resist molecular size, the structure and behavior of the resist molecules largely affect the pattern formation process. In the nanoimprint lithography, the formed pattern structures are also determined by the relation between the pattern and resist molecular sizes.

研究分野：微細プロセス科学

キーワード：パターン形成 電子線リソグラフィ 極端紫外線リソグラフィ ナノインプリント マルチスケールシミュレーション スケール境界領域

1. 研究開始当初の背景

(1) 半導体微細加工における各種パターン形成技術では、加工形状の予測や最適加工条件の探索のためのプロセスシミュレーションとして、被加工材料であるレジストを連続体として取り扱う解析手法が主流であった。

(2) パターンの微細化にともない、分子レベルの解析が実施され始めているが、ナノとマクロをつなぐスケール境界領域の学理が十分に確立されておらず、ナノとマクロのスケールでの理論解析が乖離した状態にあった。

2. 研究の目的

(1) 被加工材料の解析モデルの階層化を行い、連続体解析から分子動力学法に及ぶ手法を用いることにより、パターン形成過程のマルチスケール解析を実施する。

(2) 電子線リソグラフィ、極端紫外線(EUV)リソグラフィ、ナノインプリントなど多種のパターン形成技術を対象にマルチスケール解析を実施し、ナノとマクロをつなぐスケール境界領域のパターン形成過程を支配する物理的および化学的要因を明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 解析対象となる現象やパターンサイズに応じて被加工材料(レジスト)のモデルを階層化し、連続体(セルモデル)解析、確率論的(ランダムウォーク)解析、分子動力学解析を使い分けることによりナノからマクロスケールに至るマルチスケール解析を実施した。

(2) 連続体(セルモデル)解析ではレジストを構成するポリマーの分子構造を考慮せず、レジストを一定サイズの微小なセルに分割し、露光の効果を各セルにおけるエネルギー蓄積の形で導入し、蓄積エネルギー量に応じたセル除去により現像過程をモデル化した。

(3) 確率論的(ランダムウォーク)解析では、レジストを構成するモノマーを単位粒子とし、空間中にランダムに配置した。単位粒子間をランダムウォークの手法によりつなぐことで分子鎖を形成し、レジストの初期構造モデルを作成した。露光によりレジスト分子鎖内にランダムな切断を導入することによりポジ型のリソグラフィ過程を、レジスト分子鎖間にランダムな架橋結合を導入することによりネガ型のリソグラフィ過程を再現した。閾値となる分子量以下の分子鎖を除去することにより現像をモデル化した。

(4) 分子動力学解析では、レジストを構成する原子間に力場を導入することにより、確率論的モデルと同様の過程における分子挙動を時間発展的に追跡した。原子間ポテンシャルは、分子鎖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、分子鎖間にはファン・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。

(5) 電子線およびEUVリソグラフィにおける露光の効果は、すべての解析モデルにおいて電子散乱のモンテカルロシミュレーションにより求められたレジスト中のエネルギー蓄積を用いて導入した。この際、レジストは連続体として扱い、レジストを構成するポリマーの分子構造は考慮していない。

4. 研究成果

(1) 電子線リソグラフィにおけるパターン形成のマルチスケール解析:

電子線リソグラフィを例に、本研究で実施したマルチスケール解析の結果を示す。図1は連続体解析によるポジ型レジスト中の20nm幅のラインパターンの現像過程である。加速電圧は5kV。比較的大きなサイズであるが、計算負荷が小さく、短時間でパターン全体の形状を解析することが出来た。

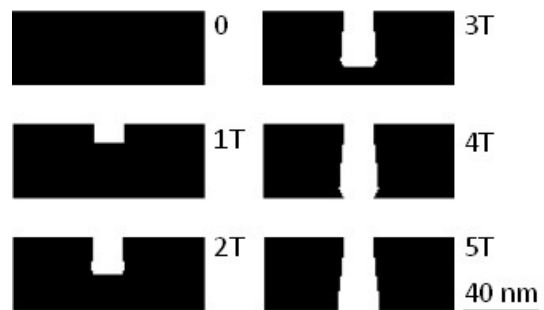


図1 セルモデルによるレジスト現像過程の解析結果。加速電圧5kV。時間のTは0.1秒。

図2は確率論的モデルにより得られたポジ型レジスト中のパターンエッジの形状であり、露光量によるラフネスの違いを示している。加速電圧は4kVであり、過多露光の場合、電子散乱による基板界面でのパターンの広がりが見られる。また、確率論的モデルの場合では、レジストを構成するポリマーの分子構造を反映したラフネスが見られた。

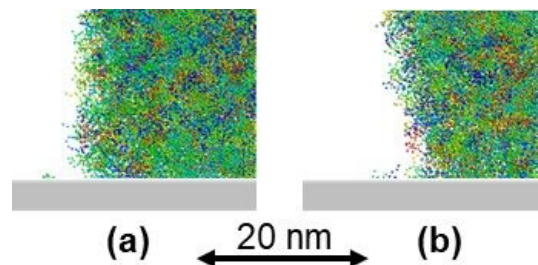


図2 確率論的モデルによるレジストエッジ形状の解析結果。加速電圧4kV。(a)適正露光と(b)過多露光の比較。

図3は分子動力学法によるポジ型レジストの現像過程の解析結果である。レジスト(PMMA)

中に現像液分子（IPA）が浸潤した後、レジスト分子の一部が現像液中に拡散して行く現像の初期過程が再現されている。

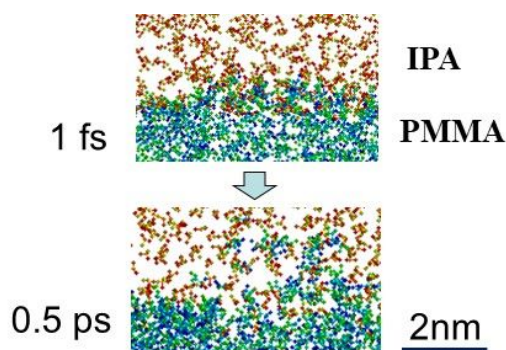


図 3 分子動力学法によるポジ型レジストの初期現像過程の解析結果。

(2) 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：電子線リソグラフィにより形成されたラインパターンのエッジラフネスを確率論的モデルおよび分子動力学法により解析した結果、レジスト分子のサイズよりパターンサイズが十分大きなときは、電子散乱などの影響による露光強度のバラツキなどがパターン形状の決定に対して支配的であるが、分子サイズと同程度あるいはそれより小さな数 10 ナノメートル以下のパターンでは、露光や現像条件を最適化しても、レジスト分子の構造と挙動がパターン形状の決定に大きな影響を及ぼすことが示された。図 4 はネガ型レジストを対象に 10nm 幅のラインパターンのエッジラフネスを確率論的モデルにより解析した結果であるが、初期レジストの平均分子量が大きいほど、形成されたパターンのラフネスが大きくなり、ラフネスの分子サイズ依存性が示されている。

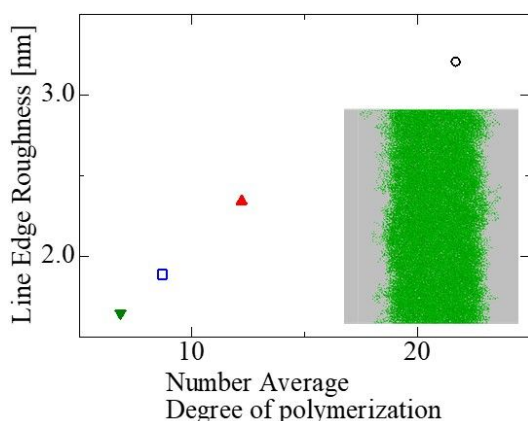


図 4 電子線リソグラフィにより形成されたパターンのラインエッジラフネスの確率論的モデルによる解析結果。

(3) EUV 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：本課題では EUV リソグラフィに関しても分子動力学法によりモデル化し、パターン形成を

解析した。図 5 にラインエッジラフネスの分子動力学解析の結果の一例を示す。露光量が大きくなるほど吸収エネルギーが大きくなり、ラインエッジラフネスが抑制される結果が再現されている。

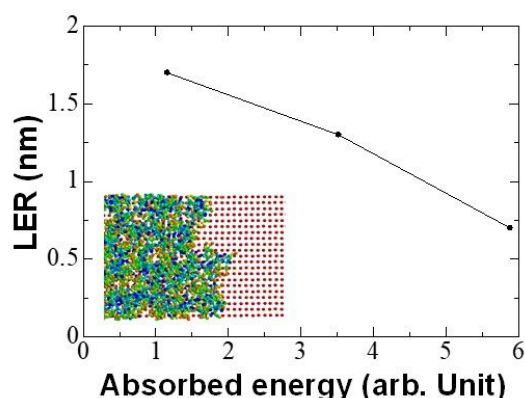


図 5 EUV リソグラフィにより形成されたパターンのラインエッジラフネスの分子動力学法による解析結果。

(4) 光ナノインプリントにおけるレジスト中分子量分布の重合開始剤濃度依存性の解析：確率論的モデルにおけるレジストの初期構造形成を重合過程と捉え、光ナノインプリントにおける光硬化過程を再現することが出来る。すなわち、重合開始剤を出発点としてランダムウォーク法により近傍の粒子を順次結合することによりレジストの光硬化過程における分子鎖形成が再現される。図 6 は確率論的モデルにより光硬化過程を再現したレジスト内ポリマー分子の分子量分布である。実験に見られるものと同様な分布形状が再現されている。また、重合開始剤濃度が増加するほど、分布のピークが低分子側にシフトする結果が得られている。比較的簡単なシミュレーション手法であるが、光ナノインプリントにおける光硬化特性の多くを分子挙動より説明することが出来た。

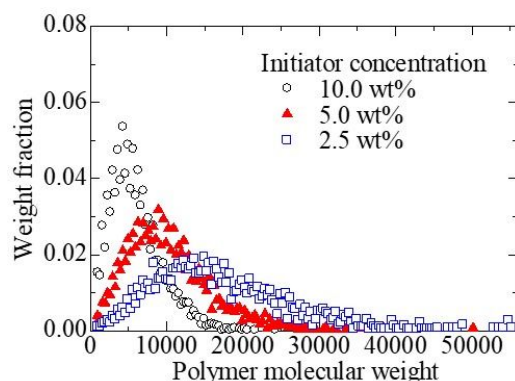


図 6 光ナノインプリントにおけるレジスト中分子量分布の確率論的モデルによる解析結果。

(5) 熱ナノインプリント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：熱ナノインプリントにおけるパターン形成



においても、レジストの分子サイズと形成されるパターンサイズの相関によりパターン形状が支配されることが示された。図7に熱ナノインプリントにより形成されたパターンのラインエッジラフネスを分子動力学法により解析した結果の一例を示す。レジストの分子量が小さく、分子サイズがモールドのキャビティサイズよりも小さいときは、キャビティサイズが小さくなるほど成型性が悪くなり、ラインエッジラフネスは大きくなった。一方、分子量が大きく、分子サイズがキャビティサイズより大きいときは、ラインエッジラフネスはキャビティサイズに依存しないことが分かった。また、キャビティから離型するのに必要な力はレジストの分子サイズとキャビティサイズが近いときに大きくなることが分かった。

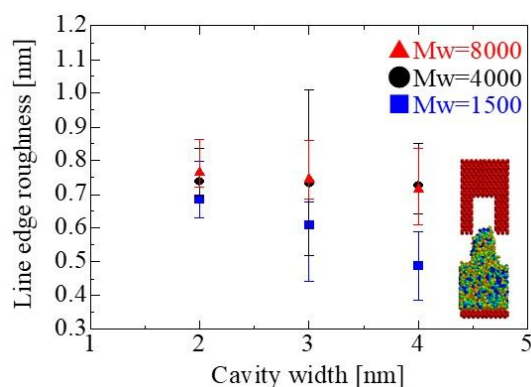


図7 熱ナノインプリントにより形成されたパターンのラインエッジラフネスの分子動力学法による解析結果。

#### (6)まとめ：

多種のパターン形成技術を対象にマルチスケール解析を実施した。電子線や EUV リソグラフィについてはレジスト分子のサイズよりパターンサイズが十分大きくなるときは、電子散乱などの影響による露光強度のバラツキなどがパターン形状の決定に対して支配的であるが、分子サイズと同程度あるいはそれより小さな数 10 ナノメートル以下のパターンでは、露光や現像条件を最適化しても、レジスト分子の構造と挙動がパターン形状の決定に大きな影響を及ぼすことが示された。また、ナノインプリントについても、レジスト分子のサイズとパターンサイズの相関により形成されるパターン形状が決定されることが示された。

#### 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5件)

- 1 M. Yasuda, S. Hitomi, H. Kawata and Y. Hirai, Multiscale Simulation of the Development Process in Electron Beam Lithography, Journal of Photopolymer

Science and Technology, 査読有、Vol.30、2017、205-209.

- 2 M. Koyama, M. Shirai, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda, Stochastic Simulation of the UV Curing Process in Nanoimprint Lithography: Pattern Size and Shape Effects in Sub-50 nm Lithography, Journal of Vacuum Science and Technology B, 査読有、Vol.35、2017、06G307-1-6.
- 3 M. Yasuda, K. Tada and M. Kotera, Multiphysics Simulation of Nanopatterning in Electron Beam Lithography, Journal of Photopolymer Science and Technology, 査読有、Vol.29、2016、725-730.
- 4 M. Koyama, M. Shirai, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda, Computational Study on UV Curing Characteristics in Nanoimprint Lithography: Stochastic Simulation, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、Vol.56、2017、06GL03-1-5.
- 5 M. Yasuda, Y. Furukawa, H. Kawata and Y. Hirai, Multiscale simulation of resist pattern shrinkage during scanning electron microscope observations, Journal of Vacuum Science and Technology B, 査読有、Vol.33、2015、06FH02-1-7.

##### [学会発表](計21件)

- 1 香山真範、白井正充、川田博昭、平井義彦、安田雅昭、電子線リソグラフィにおけるパターン形成の確率論的シミュレーション、第65回応用物理学会春季学術講演会、東京都、2018年03月20日。
- 2 R. Sakata, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda, Impact of Mold Cavity Size on Resist Pattern Shape in Nanoimprint Lithography: Molecular Dynamics Study, 16th International Conference on Nanoimprint and Nanoprint Technology, Gyeongnam, Korea, November 9, 2017.
- 3 M. Yasuda, M. Koyama, M. Shirai, H. Kawata and Y. Hirai, Computational study of pattern formation in electron beam lithography for negative type resists, 43rd Int. Conf. on Micro- and Nano-Engineering 2017, Braga, Portugal, September 20, 2017.
- 4 安田雅昭、香山真範、白井正充、川田博昭、平井義彦、UV ナノインプリントにおけるレジスト硬化の確率論的シミュレーション、次世代リソグラフィワークショップ 2017、東京都、2017年07月18日。
- 5 M. Yasuda, S. Hitomi, H. Kawata and Y. Hirai, Multiscale Simulation of Development Process in Electron Beam Lithography (招待講演)、34th

- International Conference of Photopolymer Science and Technology、千葉、2017年06月28日。
- 6 M. Koyama, M. Shirai, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda、Stochastic simulation of UV-curing process in nanoimprint lithography: Pattern size and shape effects in sub-50 nm、61st Int. Conf. on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication、Orlando, USA、May 31、2017.
  - 7 安田雅昭、平井義彦、ナノインプリントにおけるレジスト分子挙動の理論解析 (招待講演)、第64回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017年03月15日。
  - 8 S. Hitomi, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda、Early Stages of Development Process in Electron-Exposed Resists: A Molecular Dynamics Study、2016 Int. Microprocesses and Nanotechnology Conf.、Kyoto, Japan、November 10、2016.
  - 9 A. Iwai, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda、Molecular Dynamics Study of Pattern Edge Structures in Extreme Ultraviolet Lithography、2016 Int. Symp. on Extreme Ultraviolet Lithography、Hiroshima, Japan、October 24、2016.
  - 10 M. Yasuda、A. Iwai, H. Kawata and Y. Hirai、Molecular Dynamics Study of Pattern Formation in Extreme Ultraviolet Lithography、42nd Int. Conf. on Micro- and Nano-Engineering、Wien, Austria、September 20、2016.
  - 11 M. Yasuda、K. Tada and M. Kotera、Multiphysics Simulation of Nanopatterning in Electron Beam Lithography (招待講演)、33rd International Conference of Photopolymer Science and Technology、Chiba, Japan、June 24、2016.
  - 12 人見洋、川田博昭、平井義彦、安田雅昭、電子線リソグラフィにおけるパターン形成のマルチスケール解析、マルチスケール材料力学シンポジウム、富山、2017年05月27日。
  - 13 S. Hitomi, H. Kawata, M. Yasuda and Y. Hirai、Multiscale Simulation of Pattern Formation in Electron Beam Lithography、23rd Symposium on Photomask and NGL Mask Technology、Yokohama, Japan、April 07、2016.
  - 14 岩井瑛規、川田博昭、平井義彦、安田雅昭、EUV リソグラフィの分子シミュレーション、第63回応用物理学会春季学術講演会、東京都、2016年03月20日。
  - 15 香山真範、古川雄基、川田博昭、平井義彦、安田雅昭、SEM 観察における有機高分子レジスト収縮の理論解析、第63回応用物理学会春季学術講演会、東京都、2016年03月19日。
  - 16 M. Yasuda、A. Iwai, S. Hitomi, H. Kawata and Y. Hirai、Computational Study of Pattern Formation in Extreme Ultra Violet Lithography、2015 Int. Microprocesses and Nanotechnology Conf.、Toyama, Japan、November 13、2015.
  - 17 N. Iwata, M. Yasuda、H. Kawata and Y. Hirai、Molecular Dynamics Study on Line Width Roughness and Critical Dimensional Error in Nanoimprint Lithography、2015 Int. Microprocesses and Nanotechnology Conf.、Toyama, Japan、November 12、2015.
  - 18 M. Yasuda、Molecular dynamics simulation of pattern formation in electron beam lithography(招待講演)、Electron Beam Scattering Simulation Workshop、京都、2017年11月09日。
  - 19 N. Iwata, H. Kawata, Y. Hirai and M. Yasuda、Computational Study on Line Edge Roughness in Nanoimprint Lithography、13th International Conference on Nanoimprint and Nanoprint Technology、Napa、USA、October 23、2015.
  - 20 T. Tochino, T. Iida, M. Yasuda、H. Kawata and Y. Hirai、Computational study on template release process for peeling (rotating) release method、41st Int. Conf. on Micro- and Nano-Engineering、Hague, Netherlands、September 22、2015.
  - 21 安田雅昭、電子線リソグラフィにおける Sub-10nm パターン形成の分子動力学解析、次世代リソグラフィワークショップ 2015、東京都、2015年07月07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
  - (2)研究分担者  
小寺 正敏 (KOTERA MASATOSHI)  
大阪工業大学・工学部・教授  
研究者番号：40170279
  - (3)連携研究者  
平井 義彦 (HIRAI YOSHIHIKO)  
大阪府立大学・工学研究科・教授  
研究者番号：50285300