

令和元年6月13日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06035

研究課題名（和文）ナノインプリント領域全域での高速充填と均一残膜を実現するモールド設計技術の研究

研究課題名（英文）A study on process and mold design to obtain quick bubble removal and residual layer uniformity on whole imprinting area

研究代表者

Youn Sung-Won (Youn, Sung-Won)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・主任研究員

研究者番号：80510065

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,700,000円

研究成果の概要（和文）：凝縮性ガスを用いる光ナノインプリント（UV-NIL）において、成形領域全域での高速充填や残膜均一化を可能にするリソグラフィ用モールドの設計技術の高度化を図った。リアルタイム観察システムを併用し、異なるサイズを有するマイクロ/ナノドットパターンに対しての充填挙動を調べ、1秒以内の高速充填を実証した。モールドパターンの容積均一化用補正パターンジェネレータモジュールを試作し、テストパターンに対して、パターン補正による容積均一化、チップスケール数値解析、実証実験を行い、残膜分布の標準偏差を1/3-1/5低減できることを示した。本研究で得られた結果をもとに、配線基板およびホログラムパターンを作製した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

リソグラフィ用モールドの設計技術が確立されていないことはUV-NILのデバイス作製への適用において大きな障害になっており、UV-NILの産業利用の観点から、適用範囲を拡張する本技術の重要性は非常に高い。本研究で得られた知見は、適用容積均一化モールドの設計に汎用的に用いることができ、産業界での適用が期待される。

研究成果の概要（英文）：A design method of a mold that enables to obtain quick bubble removal and uniform distribution of residual layer thickness (RLT) was studied in UV-nanoimprint lithography (UV-NIL) using a condensable gas. Through UV-NIL experiments with a real-time monitoring system, a quick bubble removal (< 1 s) was demonstrated for micro/nano square patterns with the different cavity sizes. A software module for modifying a mold design to obtain uniform RLT distribution has been developed, and the effect of the modified pattern designs on the RLT distribution and filling characteristics were investigated. The feasibility of the proposed method was verified by chip-scale UV-NIL simulation and experiments, and the results for modified mold designs showed a marked improvement (standard deviation decrease in the range from 1/3 to 1/5) in RLT uniformity. Based on the results obtained, some test patterns such as an interconnection substrate and a holographic pattern were fabricated successfully.

研究分野：工学

キーワード：ナノインプリントリソグラフィ モールド設計 残膜均一化 凝縮性ガス

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 近年、多種多様なデバイス(特定用途向けLSI、フォトリソグラフィデバイス、MEMS実装配線、ホログラムパターン、バイオセンサー等)において、低コスト・高スループットのナノ加工技術の必要性が高まっており、光ナノインプリント(UV-NIL)の適用が検討されている。その実現のためには、スループットの向上や欠陥(バブル欠陥や不均一残膜分布)の低減が不可欠である。

(2) スループットにおいては、装置のクラスタ化による生産性の向上を考慮した場合、1秒以下充填速度が必要であることが知られている。製造コストの増大を防ぐために、大気中のプロセスが望まれているが、パターンキャビティへの大気の捕獲により、高速プロセスが損なわれてしまう問題があった。応募者らは、常温で飽和蒸気圧が1気圧より少し大きい凝縮性ガス(PFP: 1,1,1,3,3-Pentafluoropropane, HFC-245fa)雰囲気中でのUV-NILプロセスを提案し、高速プロセスとしての有効性を示した。また、粘度低下による充填速度の向上、モールド離型性の向上効果が明らかになり、2万回/モールドの量産離型が実証されている。

(3) UV-NIL装置では、モールドのパターン密度が不均一な場合には、理想的な装置を使用しても残膜(パターン形成時に基板に残る樹脂層)が不均一化する。このことは、インプリントパターンをマスクとして下層をエッチング加工する際に、パターン寸法のばらつきや欠陥発生の原因になるため、成形領域全域での残膜を薄く均一に形成する必要がある。これまでは、作製された素子の機能に影響しないように、パターンの再配置やダミーパターンの追加等により、モールド面内のパターンの均一性を一定にする手法が取られていたが、設計上、許容できない場合が多かった。そこで、応募者らは、パターン密度に応じてモールドの溝の深さを調整することで単位面積あたりの容積をモールドの領域によらず均一化する容積均一化手法を提案した。さらに、モールドの深さを単純にパターン密度の種類と同じ数に多階調化する方式に比べて、より簡便で信頼性のある手法として、2段階深さモールドによる容積均一化手法やその作製プロセスを構築した。本手法は、2段階の深さの割合をパターン密度に合わせて調整してモールドを作り込むことにより、モールドの溝の容積を一定にする方式であり、パターン密度の種類に関わらず、2段階の深さを適当な比率で混在させることによって容積の均一化が行える。本手法により、幅50-150nm、密度0.25-0.75の混在パターンにおいて、従来型モールドを使用した場合の約1/3(標準偏差3nm)に低減できた。この手法の有効性は検証したものの、パターン密度が異なる単純なライン形状以外への適用は検討されておらず、さらに深く検討する余地が残されている。例えば、リソグラフィ用のドライエッチング耐性が高いレジストは、一般的に炭素含有量が高く、粘度も高い。補正パターンにより影響を受ける領域は樹脂の粘度に依存するため、粘度を考慮してモールド設計を行うべきである。また、実際のデバイスでは密度や形状が不均一なパターンが混在しており、充填時間にばらつきがあるため、実用化のためには、パターン外周部のレイアウトを含め、モールド領域全域を研究対象にする必要がある。一般の顕微鏡を用いてモールド領域全域での充填挙動を観察するには大変な手間と時間を要する。その対策として、応募者らは、暗視野観察システムを試作し、これまではできなかったモールド全域の実時間観察に成功している。

(4) 一方、モールド設計技術の構築のためには、多種多様なモールドにおける充填挙動を解明する必要があるため、数値シミュレーション手法はモールド作製費用の削減や研究の効率化を可能にする有望な手段である。PFPガス雰囲気中でのUV-NILにおいて、スピンコートレジストの充填シミュレーションによる高速充填プロセスのメカニズム解析が行われており、大気、真空、PFPガス中でのレジスト充填率、充填時間のパターンライン幅依存性等が明らかになっている。しかし、これまでの解析研究はモールドの局所領域における比較的単純パターンに対する現象解明に限られており、モールド全域を対象にした解析が必要である。

2. 研究の目的

光ナノインプリント(UV-NIL)技術を多種多様なデバイスに適用するため、1秒以下の高速充填や欠陥(バブル欠陥や不均一残膜分布)の低減による高スループット、低コスト化が求められている。本研究では、凝縮性ガスを用いるUV-NILに応募者らが開発した容積均一化による残膜均一化手法やチップスケール数値シミュレーション手法を適用することによって、モールド全領域に対しての高速充填(1秒以下)や残膜均一化を可能にするリソグラフィ用モールドの設計技術の高度化を図る。

3. 研究の方法

(1) 平成28年度には、容積均一化設計手法の自動化アルゴリズムを提案した。それを基に、補正パターンジェネレータモジュールを試作し、数値シミュレーション結果や理論・従来実験結果との比較を通してその妥当性を検証した。また、凝縮性ガスを用いるUV-NIL装置や実時間観察システムの構築や整備を行った。

(2) 平成29年度には、前年度に試作した補正パターンジェネレータとUV-NILシミュレーション

ン手法を併用し、容積均一化効果の粒度等、異なる補正パターン形状および粘度条件に対しての成形特性の依存性を調べ、充填時間と粒度サイズの関係、粘度 充填時間 残膜均一化効果の関係等を明らかにした。また、凝縮性ガスを用いる UV-NIL 実験を通してマイクロ/ナノドットパターン (100 nm - 5 μm 角) に対しての充填挙動を明らかにした。

(3) 平成 30 年度には、平成 28、平成 29 年度に得られた結果をもとに、テスト配線パターンに対し、チップスケール数値シミュレーションによる補正パターンの最適化、容積均一化補正および作製、凝縮性ガスを用いた UV-NIL による検証実験を行った。その結果得られたサンプルを評価することにより、本研究で開発した手法の有効性を実証した。

4. 研究成果

(1) 残膜均一化を可能にするリソグラフィ用モールドの設計技術の高度化

容積均一化モールド設計の自動化アルゴリズムの提案と基礎検証

UV-NIL において、所望パターン密度分布が不均一であっても残膜分布を均一にすることが可能である容積均一化モールドを研究対象に取り上げ、その設計手法の自動化アルゴリズムを提案した。その有効性を検証するため、CAD ソフトウェア上で駆動する補正パターンジェネレータを試作した。パターン密度 0.2 - 0.75 で形成された元モールドパターンに対して、2 段階補正パターンを生成させ、容積均一化を行った例を図 1 に示す。元モールドと容積均一化モールドの 3D 密度分布を可視化し、比較した。ここで、2 段階補正パターンの深さは、容積均一化を目的に、元モールドパターン深さと、セル内のパターン面積比の最大値や最大値の比との関係から求められる。補正後の 3D パターン密度の誤差ユーザー指定値であり、0.02 に設定した。

モールドパターンの補正による残膜均一化効果を調べるため、UV-NIL シミュレーションを行った。図 2 では元モールドと容積均一化モールドを用いてインプリント成形を行った後の残膜分布を比較している。残膜分布の標準偏差 (SD) は元モールドが 12.7 nm であるのに対し、容積均一化モールドでは 2.47 nm と約 1/5 に低減できた。一方、完全充填に必要な成形時間は容積均一化モールドの方が長かった。このことは、成形時間は残膜厚に大きく依存するため、最終残膜厚が異なることが原因だと思われる。

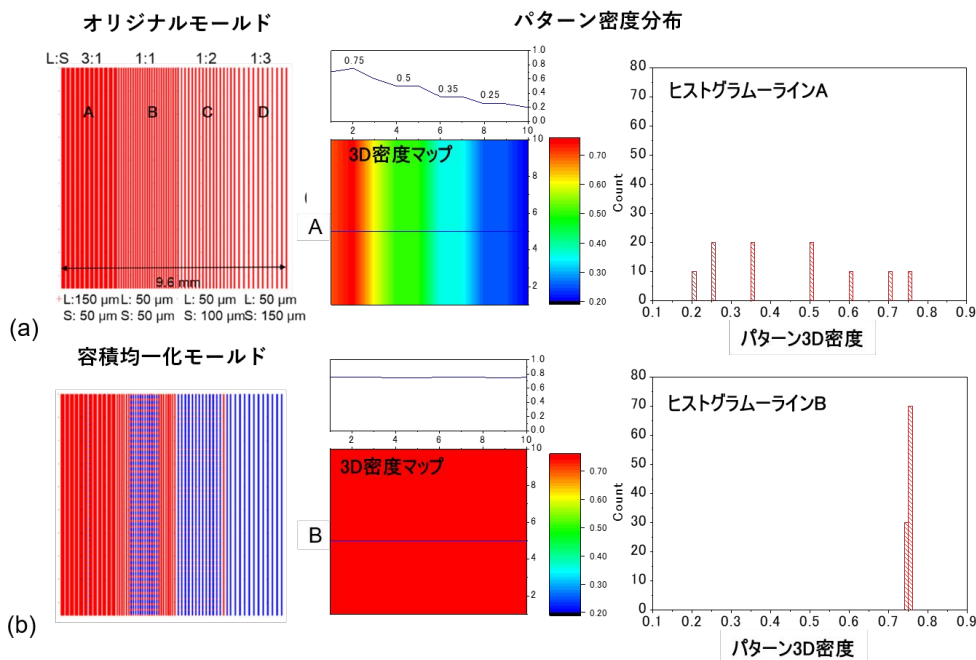


図 1 パターン補正例: (a)元パターン、(b)容積均一化パターン

(2) 数値シミュレーションを併用したモールド設計の最適化

容積均一化モールドの設計手法では、モールドの表面を指定サイズの領域に分割し、各分割領域 (粒度) 内の容積を均一化するための 2 段階補正パターンを生成する。ここで、粒度の形状やサイズは残膜厚分布と充填時間に大きい影響を及ぼす因子である。

そのため、補正パターンジェネレータと UV-NIL 解析ソフトウェアを併用し、容積均一化効果の分割領域 (粒度) 等、異なる補正パターン形状および粘度条件に対しての成形特性の依存性を調べ、充填時間と粒度サイズの関係、粘度 充填時間 残膜均一化効果の関係等を明らかにした。粘度の増加に伴い、充填時間は増加したが、残膜均一化効果の変化はなかった。UV-NIL シミュレーションの結果で得られた粒度と充填時間の関係を図 3 に示す。容積均一化の原理を考慮し、完全充填時の成形全域の膜厚分布の比較を行った。ここで、P = 1 は全ての領域において充填率が 99.9%以上になった時点を示す。充填時間は、粒度 (G) > 500 μm の場合には粒度サイズに比例する傾向を示した。また、元パターンより粒度が一定以上大きくないと残膜均一化効

果が十分に得られないことが観察された。一方、残膜均一化効果の粒度サイズ依存性は観察されなかった。

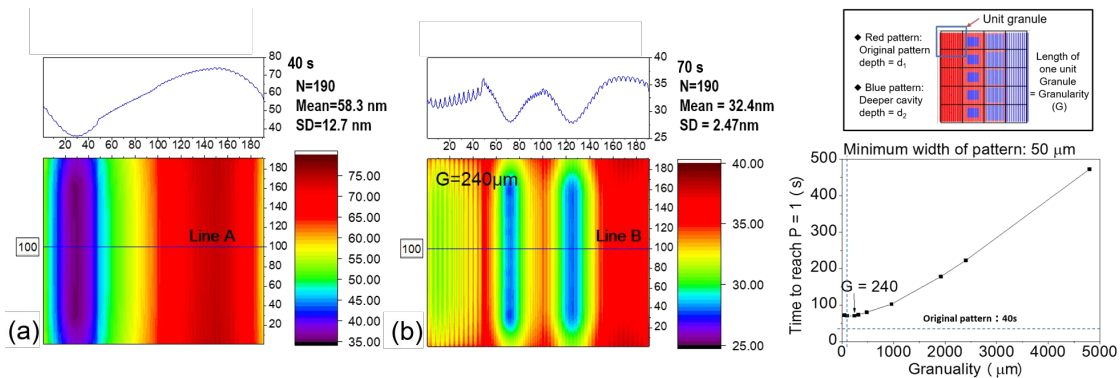


図2 容積均一化補正前後の残膜厚分布の比較（解析結果）

図3 充填時間→粒度

(3) モールド全領域に対しての高速充填

凝縮性ガスを用いた UV-NIL ステッパと充填挙動のリアルタイム観察システムを併用し、マイクロ/ナノドットパターンに対しての充填挙動を調べ、100 nm - 5 μm サイズのパターンに対しては、1 秒以内の充填ができることを明らかにした（図4）。その結果で得られた条件により、ホログラムパターン（最小線幅：300nm）サンプルの作製を実証した（図5）。

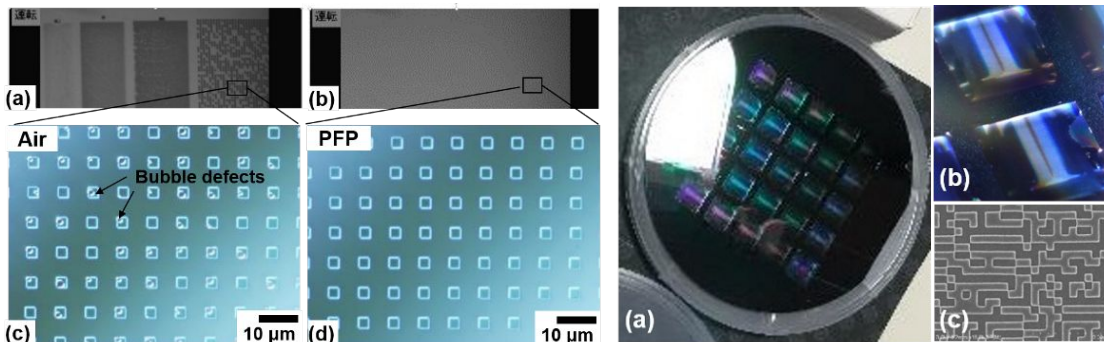


図4 雰囲気ガスが充填挙動に及ぼす影響：

(a, c)大気中、(b, d) PFP ガス中

図5 PFP ガスを用いた UV-NIL によるホログラムパターン作製例

(4) 実装配線基板作製への適用による有効性の検証

平成 28 年度と 29 年度に得られた技術をもとに、任意テスト配線パターンに対して、補正パターンジェネレータによる容積均一化補正、チップスケール数値シミュレーションによる残膜均一化効果の予測（図6）、マスクレス描画やドライエッチング技術を併用した容積均一化モールドの作製、凝縮性ガスを用いた UV-NIL 実験（図7）を行った。UV-NIL シミュレーション手法を用いて容積均一化補正による残膜均一化効果を予測した結果例を図6に示す。残膜分布の標準偏差（SD）は元モールドが 8.3 nm であるのに対し、容積均一化モールドでは 1.6 nm と約 1/5 に低減できることが観察される。図7には凝縮性ガスを用いた UV-NIL による検証実験結果例を示す。成形素材としてはアクリル系の UV 硬化樹脂の回転塗布膜を用いた。図7(c)において、紫色の四角い領域は、容積均一化のために局所的に2段構造のパターンになっている。残膜の評価は、分光膜厚計を用いて、配線パターンの中央の位置の縦の赤線に沿って行った。残膜分布の標準偏差（SD）は元モールドが 13.2 nm であるのに対し、容積均一化モールドでは 4.3 nm と約 1/3 に低減できることから、本研究で開発した手法の有効性が検証された。残膜均一化効果において、解析結果と実験結果の間に差がある原因として、モールドの欠陥（特に外周）、モールドと素材の接触面の均一性、等が考えられており、今後対策を工夫する考えである。

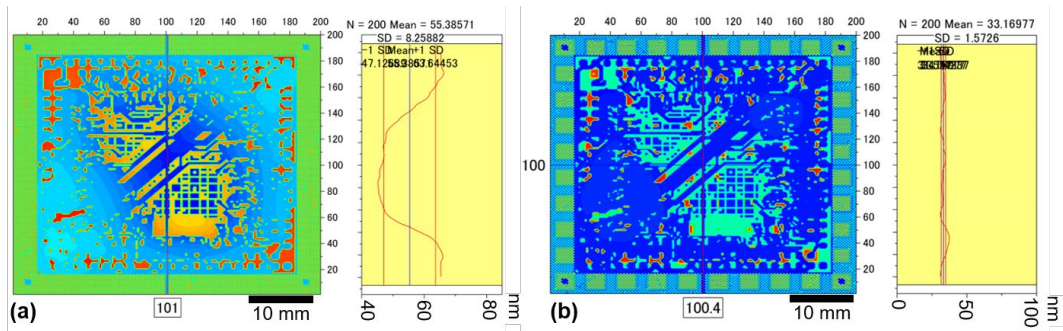


図6 UV-NIL シミュレーションによる容積均一化補正前後の残膜厚分布の比較: (a) 元モールド、(b)容積均一化モールド

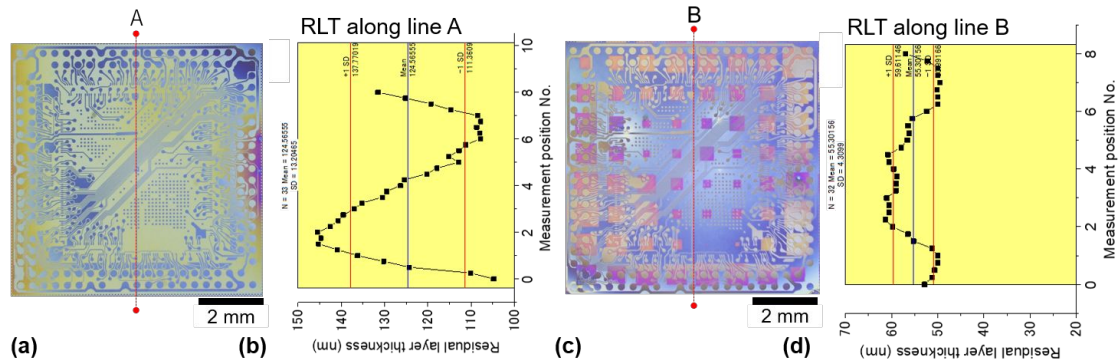


図7 凝縮性ガスを用いた UV ナノインプリント基板の顕微鏡画像及び残膜分布: (a,b) 元モールド、(c,d) 容積均一化モールド

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 7 件)

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Chip-scale pattern modification method for equalizing residual layer thickness in nanoimprint lithography, Japanese Journal of Applied Physics, 57, 2018, 06HG03

DOI : <https://doi.org/10.7567/JJAP.57.06HG03>

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Basic Verification of Method for Automated Design of Capacity-Equalized Mold for Nanoimprint Lithography, Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 17, 2017, 8475-8479

DOI : <https://doi.org/10.1166/jnn.2017.15153>

K. Suzuki, S. W. Youn, H. Hiroshima, Filling Behavior and Mold Release Force in UV Nanoimprinting Using PDMS Mold in Different Atmosphere, Journal of Photopolymer Science and Technology, 31, 2018, 295-300

DOI : https://www.jstage.jst.go.jp/article/photopolymer/31/2/31_295/_article

尹成圓、鈴木 健太、廣島 洋、ナノインプリント技術の配線応用に向けたプロセスとモールド設計、エレクトロニクス実装学会誌、22、2019、158-163

DOI : https://www.jstage.jst.go.jp/article/jiep/22/2/22_158/_article/-char/ja/

[学会発表](計 21 件)

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Basic Verification of Method for Automated Design of Capacity-Equalized Mold for Nanoimprint Lithography, International Conference Electronic materials and Nanotechnology for Green Environment 2016 (ENGE 2016)

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Fabrication of a Holographic Pattern by UV-NIL Using PFP Gas, 8th Japan-China-Korea MEMS/NEMS 2017

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Automated Pattern Modification Method to Equalize Residual Layer Thickness in Nanoimprint Lithography, The 16th International Conference on Nanoimprint and Nanoprint Technology (NNT2017)

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Chip-scale pattern modification method for equalizing residual layer thickness in nanoimprint lithography, 30st International Microprocesses and Nanotechnology Conferences, 2017

尹成圓、ナノインプリント技術の配線応用に向けたプロセスとモールド設計、エレクトロニクス実装学会公開研究会(招待講演)2017

尹成圓、ナノインプリントリソグラフィ用パターン補正プログラム、Next Generation

Lithography (NGL) workshop 2018 (招待講演)

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Control of pattern capacity in nanoimprint mold by adding 2D/2.5D patterns to obtain uniform residual layer, The 5th International Conference & Exhibition for Nanotechnology (NANOPIA2018)

K. Suzuki, S. W. Youn, H. Hiroshima, Filling Behavior and Mold Release Force in UV Nanoimprinting Using PDMS Mold in Different Atmosphere, The 35th International Conference of Photopolymer Science and Technology 2018

尹成圓、鈴木健太、廣島洋、ナノインプリントリソグラフィ用パターン補正プログラム、次世代リソグラフィワークショップ NGL2018 (招待講演)

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Fabrication of wafer-level mold for nanoimprint lithography using STAMP program and self-alignment etching process, International Symposium on Precision and Engineering and Sustainable Manufacturing 2018

S. W. Youn, K. Suzuki, H. Hiroshima, Fabrication of Flexible Replica Mold with 2D and 2.5D Structures Designed by STAMP Program, 9th Japan-China-Korea Joint Conf. on MEMS/NEMS 2018

鈴木健太、倉島優一、尹成圓、高木秀樹、廣島洋、大島清志、小林英樹、Fabrication of Radio-frequency Identification Antenna Patterns on an IC Chip by Ultraviolet Nanoimprint Lithography, 31st International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2018)

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年:

国内外の別:

取得状況(計 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 鈴木 健太

ローマ字氏名: Suzuki, Kenta

所属研究機関名: 国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名: エレクトロニクス・製造領域

職名: 主任研究員

研究者番号(8桁): 60709509

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 廣島 洋

ローマ字氏名: Hiroshima, Hiroshi

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。