

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02046

研究課題名（和文）混合凝縮性ガスと微小液滴を用いた超高速光ナノインプリントに関する研究

研究課題名（英文）Research on ultra-high-speed UV nanoimprint using mixed condensable gas and droplet dispensing

研究代表者

鈴木 健太（Kenta, Suzuki）

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：60709509

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：微小液滴を利用した光ナノインプリントリソグラフィ（UV-NIL）は次世代リソグラフィとして期待されているが、スループットが課題である。トランス-1-クロロ-3,3,3-トリフルオロプロペン（CTFP）とトランス-1,3,3,3-テトラフルオロプロペン（TFP）ガスを導入するUV-NILは、高スループット化の可能性を秘めている。本研究では、微小液滴を利用したUV-NILに対して混合凝縮性ガスを導入するプロセスを試みた。局所的な樹脂充填の評価では、従来のヘリウムガス下に比べて1/30の充填時間を示した。また、線幅12nmの微細パターンの解像を実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題は、次世代半導体のリソグラフィ技術の一つであるナノインプリントリソグラフィに係わる研究内容である。ナノインプリントの課題である樹脂充填の高速化に着目し、混合凝縮性ガスを導入するナノインプリント技術を開発し、課題解決の糸口を示した。本研究成果は、半導体分野のみならず、ナノ加工技術の発展につながると期待される。

研究成果の概要（英文）：Droplet-dispensed ultraviolet nanoimprint lithography (UV-NIL) has expected to a next generation lithography technology for semiconductor devices, but process throughput is an issue. UV-NIL in trans-1,3,3,3-tetrafluoro-propene (TFP) and 1-chloro-3,3,3-trifluoropropene (CTFP) gases has enabled bubble-free and high-throughput processes. This study investigated the applicability of a mixed condensable TFP/CTFP gas to droplet-dispensed UV-NIL. The filling time in a local area of the mold in a mixed condensable gas atmosphere was as low as 1/30th that in helium. Fine line patterns with a width of 12 nm were obtained by droplet-dispensed UV-NIL in the TFP/CTFP mixed gas atmosphere.

研究分野：微細加工

キーワード：ナノインプリント NIL スループット 凝縮性ガス 微小液滴 リソグラフィ

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

#### 1. 研究開始当初の背景

ナノインプリントは、100nm 以下の優れた解像性を持ち、半導体デバイス、MEMS、光学素子などの分野でのパターンニング技術として応用が期待されている。特に先端半導体デバイス製造においては線幅 20nm 以下の新たなリソグラフィ技術を目指して装置開発が進められている。その一つに、微小液滴を利用した光ナノインプリントリソグラフィ (UV-NIL) があるがスループットが課題である。トランス-1-クロロ-3,3,3-トリフルオロプロペン (CTFP) とトランス-1,3,3,3-テトラフルオロプロペン (TFP) ガスを導入する UV-NIL は、高スループット化の可能性を秘めている。

#### 2. 研究の目的

本研究では、インクジェットによる微小液滴に対して凝縮性ガスによるナノインプリント手法の適用性を示すことにより、超高速光ナノインプリントリソグラフィの実現を目指す。また、微小空間における凝縮反応の解明と微小液滴の充填挙動の解析に加えて、1Xnm のラインパターンの解像実証を行う。

#### 3. 研究の方法

ナノインプリント時の、モールド全域の樹脂充填を評価するため、充填観察に適した石英製のモールドを作製した。図 1(a) にモールドのパターンレイアウトを示す。モールドの外径 7mm 角内前面に 250 $\mu$ m ピッチで格子状にパターンが配置されている。さらに格子状に見えるパターン溝部は、2.5 $\mu$ m ライン&スペースパターンが加工されている。次にインプリント実験について説明する。本研究では微小液滴を自由に配置可能なインクジェット装置 (SIJ テクノロジー) を用い、シリコンウエハ上に、アクリル系 UV 硬化樹脂 (PAK-02 東洋合成) を 250  $\mu$ m ピッチに、インプリント領域 7mm 角に塗布した [図 1(b)]。モールド全域の樹脂充填の観察のために、ナノインプリントステッパ装置 (ImpFlex-200as 三明) にマイクロスコープ及び暗視野照明による観察システムを設置した。インプリント雰囲気として、ヘリウムガス及び、混合凝縮性ガスを用いた。混合凝縮性ガスはトランス-1,3,3,3-テトラフルオロプロペン [(TFP) 飽和蒸気圧 0.5MPa] とトランス-1-クロロ-3,3,3-トリフルオロプロペン [(CTFP) 飽和蒸気圧 0.13MPa] をそれぞれ 5:1 で混合し、合計 1.5L/m の流量でインプリント領域に流入させた。

#### 4. 研究成果

図 2(a) はヘリウムガス雰囲気下でインプリントした時の樹脂液の充填観察画像を示す。液滴にモールドが接触すると液滴が濡れ広がり、パターンの一部に未充填箇所が見られるが、時間とともに未充填箇所が減少している。最終的に画像内では 10s で完全に充填が完了した。接触してから充填に時間が掛かる理由としては、ヘリウムは分子径が小さいため石英製のモールドに透過することで気泡除去するからである。図 2(b) は混合凝縮性ガス雰囲気下でインプリントした時の樹脂液の充填観察画像を示す。液滴の濡れ広がりとともに未充填箇所がなくなっていく、画像内では 0.3 秒で充填が完了した。ヘリウム雰囲気下の充填挙動と比較して充填速度が速く、インクジェット塗布した微小液滴に対しても凝縮性ガス下でナノインプリントを行うことは有効であるということがわかる。

図 3(a) はヘリウムガス雰囲気下でインプリントした時の樹脂液の充填状況を暗視野照明によってモールド全域で観察した画像を示す。モールド中央部から樹脂液に接触し、約 1 秒でモールド広域に接触する一方で、中央部はガスが混入したことにより未充填箇所が緑色

に発光して見える。ヘリウム雰囲気下では 30 秒経過して、未充填箇所がほとんどなくなった。図 3(b)は混合凝縮性ガス雰囲気下でインプリントした時の樹脂液の充填状況を暗視野照明によってモールド全域で観察した画像を示す。モールド中央部から樹脂液に接触し、約 1 秒でモールド広域に接触するまでは、ヘリウム下と同様であるが、その後も凝縮反応によって充填が進み、1.6 秒で未充填箇所がほとんどなくなった（一部発光して残るのは、モールド背面などのパーティクルの影響）。図 2 の局所的な充填観察結果と同様に、モールド全域での充填観察結果からも混合凝縮性ガス雰囲気下での UV-NIL はプロセスの高スループット化に有利であることを示した。

図 4 は、線幅 12nm モールドを用いて混合凝縮性ガス雰囲気下でナノインプリントしたパターンの SEM 画像を示している。本研究の目標通り、提案手法を用いて 12nm のパターンの解像を実証した。

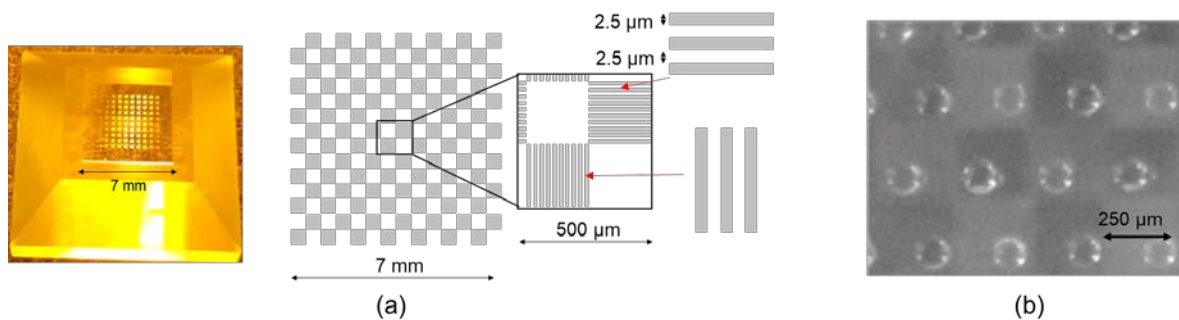


図 1. (a) モールドのパターンレイアウト, (b) インクジェット塗布した微小液滴の画像

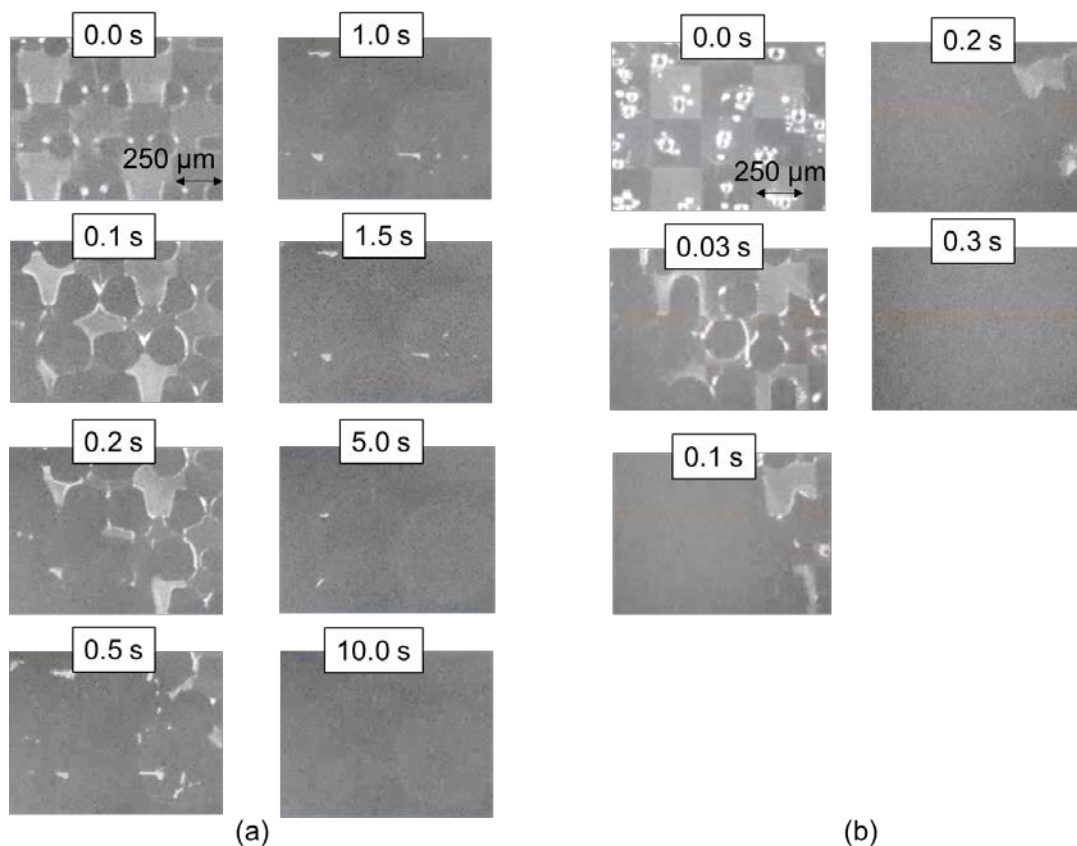


図 2. マイクロスコープ観察によるインクジェット塗布した微小液滴に対するインプリント時の充填挙動: (a) ヘリウムガス雰囲気下, (b) 混合凝縮性ガス雰囲気下

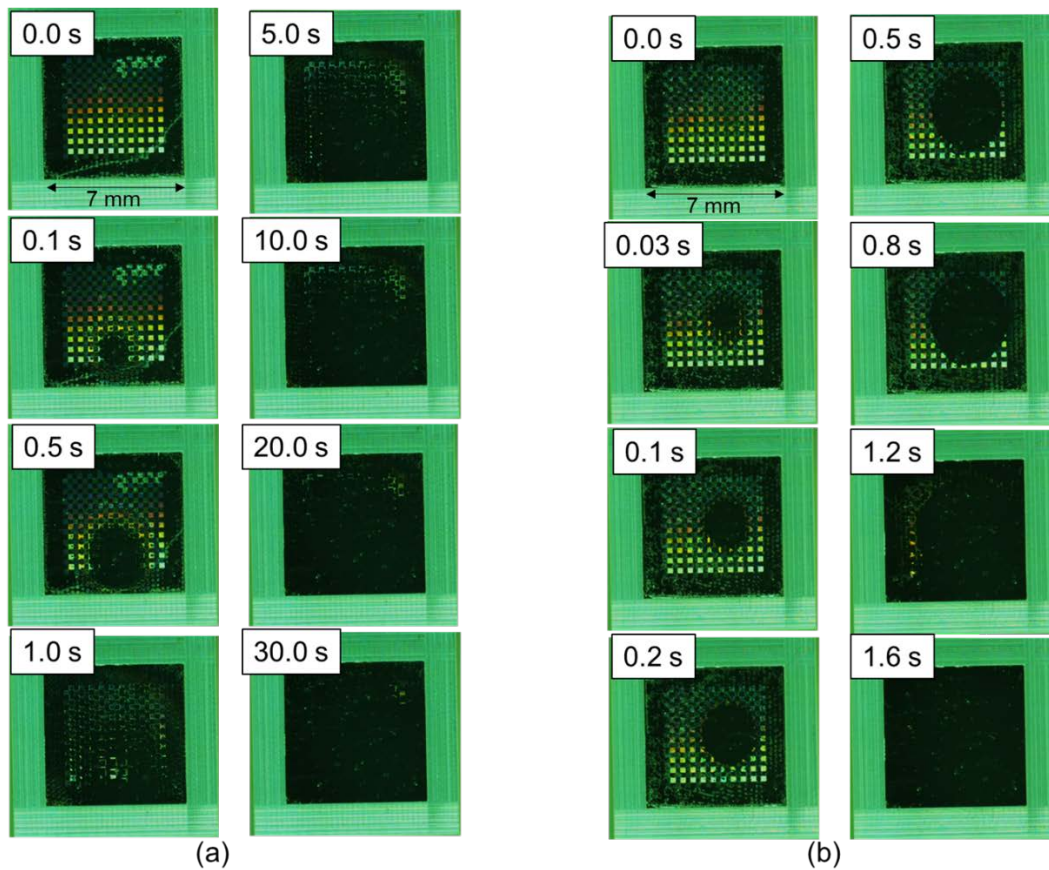


図 3. 暗視野照明を用いたモールド全域観察による微小液滴に対するインプリント時の充填挙動: (a) ヘリウムガス雰囲気下, (b) 混合凝縮性ガス雰囲気下

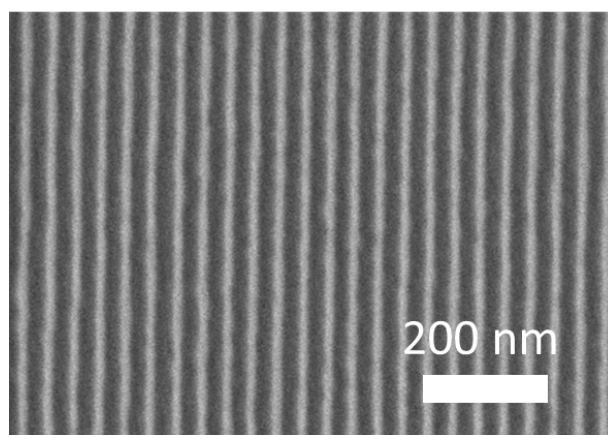


図 4. 線幅 12nm モールドによる混合凝縮性ガス雰囲気下でのナノインプリントパターンの SEM 画像

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Suzuki Kenta, Youn Sung-Won, Hiroshima Hiroshi	4. 巻 32
2. 論文標題 Solubility Property of Condensable Gases of Trans-1-Chloro-3,3,3-Trifluoropropene and Trans-1,3,3,3-Tetrafluoropropene in UV Nanoimprint	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Photopolymer Science and Technology	6. 最初と最後の頁 123 ~ 130
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2494/photopolymer.32.123	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Youn Sung-Won, Suzuki Kenta, Takagi Hideki, Hiroshima Hiroshi, Kinoshita Yoshinori, Hayashi Katsuhiro	4. 巻 33
2. 論文標題 Fabrication of high-aspect-ratio micropatterns in soluble block-copolymer polyimides by a UV-assisted thermal imprint process	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Mechanical Science and Technology	6. 最初と最後の頁 3755 ~ 3760
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s12206-019-0718-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Youn Sung-Won, Suzuki Kenta, Hiroshima Hiroshi	4. 巻 22
2. 論文標題 Mold Design and Process for Application of Nanoimprint Lithography to Interconnections	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of The Japan Institute of Electronics Packaging	6. 最初と最後の頁 158 ~ 163
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5104/jiep.22.158	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Suzuki Kenta, Okawa Tatuya, Youn Sung-Won,	4. 巻 35
2. 論文標題 Droplet-Dispensed Ultraviolet Nanoimprint Lithography in Mixed Condensable Gas of Trans-1,3,3,3-Tetrafluoropropene and Trans-1-Chloro-3,3,3-Trifluoropropene	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Photopolymer Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 尹 成圓、鈴木 健太、廣島 洋
2. 発表標題 ウェハレベルナノインプリント技術の応用展開に向けた充填挙動の制御や大面積モールド作製に関する研究
3. 学会等名 荷電粒子ビームの工業への応用第132委員会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鈴木 健太、尹 成圓、廣島 洋
2. 発表標題 Solubility Property of Condensable Gases of Trans-1-Chloro-3,3,3-Trifluoropropene and Trans-1,3,3,3-Tetrafluoropropene in UV Nanoimprint
3. 学会等名 The 36th International Conference of Photopolymer Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木 健太、尹 成圓
2. 発表標題 凝縮性ガス下でのナノインプリントにおけるモールド全域の樹脂の充填観察
3. 学会等名 2019年度精密工学会秋季大会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木 健太
2. 発表標題 混合凝縮性ガスを導入する光ナノインプリントによる線幅20nm以下のパターンニング技術の開発
3. 学会等名 第10回集積化MEMS技術研究ワークショップ (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木 健太、尹 成圓、廣島 洋
2. 発表標題 混合凝縮性ガスを用いたUVナノインプリントリソグラフィ
3. 学会等名 NGL ワークショップ(ワーク ショップ NGL2019) (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 尹 成圓、鈴木 健太、廣島 洋
2. 発表標題 Approach of fine resist filling technologies for UV-NIL at AIST
3. 学会等名 NNT 2019, the 18th International Conference on Nanoimprint and Nanoprint Technologies (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木健太
2. 発表標題 産総研における光ナノインプリントステッパー技術
3. 学会等名 第9回マイクロ・ナノ加工研究会公開講演会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大川 達也、鈴木 健太、今井 郷充
2. 発表標題 混合凝縮性ガス下での光ナノインプリントにおける光硬化性樹脂の微小液滴の充填評価
3. 学会等名 2021年度精密工学会秋季大会学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	Youn Sung-Won  (Youn Sung-Won)  (80510065)	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   (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------