厚膜レジストにおける実測溶解速度を用いたプロキシミティ・リソグラフィ・シミュレーションの検討

非会員 扇子 義久* 非会員 磯野麻里子* 正員 関口 淳*
非会員 門井 幹夫* 非会員 松澤 敏晴* 非会員 南 洋一*

Study of Proximity Lithography Simulations Using Actual Measurements of Dissolution Rates in Thick Resist Films

Yoshihisa Senu*, Non-member, Mariko Isono*, Non-member, Atsushi Sekiguchi*, Member, Mikio Kadoi*, Non-member,
Toshiharu Matsuzawa*, Non-member, Youichi Minami*, Non-member

In the present paper, simulations of photoresist pattern during proximity exposure, using measured values for the dissolution rate in the photoresist, are reported. We adopted the van Cittert-Zernike theory and Hopkins equation as a model of the radiation intensity distribution in photoresist during proximity exposure, and used a film thickness measurement system to measure the film thickness of photoresist during development as a means of determining the dissolution rate. The results of simulations pattern were then compared with SEM observation results to examine the validity of this method.

As experiments to corroborate the validity of this simulation method, a diazonaphthoquinone (DNQ)-novolac positive thick-film resist (hereafter referred to as "thick film resist") was used in patterning with a broad-wavelength (350 nm to 450 nm) mask aligner, and SEM observations were performed. In addition, simulations were conducted, and the resulting shapes were compared. Agreement was observed between the SEM observation results and the simulation results, and the differences in shapes for rough pattern dimensions and for fine pattern dimensions could be calculated. This indicates the validity of the proposed method.

キーワード：厚膜レジスト，溶解速度，プロキシミティ・リソグラフィ，レジスト形状シミュレーション，マスクアライナー

Keywords : thick film resist, dissolution rate, proximity lithography, resist pattern simulation, mask aligner

1. まえがき

近年，厚膜フォトレジストがマイクロマシーン/MEMS(Micro Electro Mechanical Systems)，ハードディスク，TAB(Tape Bonding)，COG(Chip On Glass)のバンプ形成用，CSP(Chip Scale Package)やメッキ工程に用いられている⁽¹⁾。厚膜フォトレジストは，ICなどに用いられる薄膜フォトレジスト用のプロセスをそのまま導入すると解像度が低下するなどの問題が指摘されている⁽²⁾。そこで，厚膜フォトレジストに最適な厚膜フォトレジスト専用のプロセスが必要である。それらの状況の中で，フォトレジストの形状シミュレーション技術が重要になってきた。

フォトレジスト形状シミュレーションについては，Dillらが発表したモデル⁽³⁾（以下Dillモデルと記述）を基本とし

てさまざまな高精度化手法が示されている。それらを大別すると，フォトレジスト内の光強度分布の計算方法に関するものと，現像計算に関するものである。まず，前者であるが，Dillらの方法は，フォトレジスト表面での光強度を計算するモデルであるのに対し，Yeung, Mack, Bernerd, Henken^{(4)~(7)}らの方法は，フォトレジスト膜内のデフォーカス効果を数値計算で取り込む（Bulk Image Model）ことにより，より現実に近いシミュレーションを可能にした方法である。

他方，現像計算に関しては，Grindleらが提案した実測速度を用いる以下のような手法がある。すなわち，Dillモデルは，フォトレジスト表面上の光強度の計算に始まり，レジストの感光，現像過程すべてを数値計算によってシミュレートするのに対して，Grindleらは，光強度分布については，数値計算で求めるが，現像シミュレーションは，溶解速度の実測値に基づいて行う方法を提案している⁽⁸⁾。

この方法の利点は，Dillらのモデルに不可欠の感光パラメ

* リソテックジャパン(株)
〒332-0034 川口市並木 2-6-201
Litho Tech Japan Corporation
2-6-6-201, Namiki, Kawaguchi 332-0034

ータ A , B , C や現像パラメータ E_1 , E_2 , E_3 を必要としないこと、また、Post Exposure Bake (P.E.B.) の効果⁽⁹⁾や表面難溶化効果⁽¹⁰⁾がすべて実測現像速度に反映されている。

我々は、フォトレジスト表面の光強度分布を用いる Dill モデルと実測溶解速度により現像シミュレーションを行うモデル (Grindle らの方法) を組合せてマスクアライナーを用いたプロキシミティ露光のシミュレーションを行った。これまでのところ、この手法に関する報告は無い。

本論文では、非接触型の膜厚測定装置によりフォトレジストの溶解速度を測定し、我々の開発したシミュレータ ProxSim-1 (PROXimity SIMulator) を用いたシミュレーション結果と実測結果を比較したので報告する。本論文の構成は以下の通りである。項目 2 から 5 で ProxSim-1 の概要を説明し、項目 6 で実験結果及び結果の検討について述べる。最後に項目 7 で本論文をまとめる。

2. 光強度分布の計算

〈2・1〉 レジスト表面の光強度分布 図 1 にレジストに露光される光強度分布の模式図を示す。マスク上の Cr パターンのスリットを透過した光は、Cr パターンにより回折が起こる。回折した光により、レジスト表面上の光強度分布は、理想光強度分布に比べて劣化する。このマスク透過

図 1 レジスト表面における光強度分布図

Fig. 1. Image intensity distribution on the resist surface.

図 2 レジスト膜内の光強度分布図

Fig. 2. Schematic illustration of image intensity distribution in resist film.

後の光強度分布は van Cittert-Zernike の理論⁽¹¹⁾⁽¹²⁾および Hopkins の式より求めた⁽¹³⁾。

今、プロキシミティ露光光学系を考えた場合、レジスト面を表す Q 平面上での相対的光強度 $I(Q)$ は(1)式で求められる。

$$I(Q) = \iiint_{A A A} I(S) \frac{\exp \left[2\pi i (R_1 - R_2) / \lambda \right]}{R_1 R_2} \times \frac{\exp \left[2\pi i (S_1 - S_2) / \lambda \right]}{S_1 S_2} \Lambda_1 \Lambda_2^* dS dP dP_2 \cdots \cdots (1)$$

ここで、 λ : 光の波長、 S : 光源、 A : マスク面、 P_1 , P_2 : マスク面上の点、 R_1 , R_2 : 光源 S からマスク面上 A の点 P_1 と P_2 までの距離、 S_1 , S_2 : 点 P_1 と P_2 からフォトレジスト表面 Q までの距離を表す。

〈2・2〉 レジスト内部の光強度分布 プロキシミティ露光におけるフォトレジスト膜内の光強度分布の模式図を図 2 に示す。まず、フォトレジスト膜 D を 100 等分し、分割した各層の界面に表面から基板に向かって D_1 から D_{100} の番号を付ける。この 100 層の界面位置にフォトレジスト表面位置における光強度の計算結果を用いる。フォトレジスト線幅方向 X (水平方向) については、128 に分割してフォトレジスト表面位置における光強度の計算結果を用いる。

3. レジスト膜深さ方向の溶解速度分布の測定

フォトレジストの溶解速度は図 3 に示す非接触型の膜厚測定装置 (Foothill 社製モデル KT-22t) を用いて測定した。溶解速度測定方法のフローを図 4 に示す。まず、フォトレジスト塗布・プリバークを行った基板の面内に 22 種類の露光量 E_1 から E_{22} (0 から 2000mJ/cm²) を露光したサンプルを 6 枚準備する。6 枚のサンプルの現像時間は 5 分、10 分、15 分、20 分、25 分、30 分とした。各サンプルの 22 種類の

図 3 レジスト膜厚測定装置

Fig. 3. Resist thickness measurement system.

図4 溶解速度測定方法のフロー
Fig. 4. Measurement method of development rate.

図5 現像時間対レジスト膜厚値の測定結果
Fig. 5. Measurement result of development time vs resist thickness.

図6 各露光量におけるレジスト膜内方向の溶解速度
Fig. 6. Development rate of in the resist film for the different exposure dose.

露光部の現像後のフォトレジスト残膜値 T_1 から T_{22} を膜厚測定装置にて測定することにより、各露光量における現像時間対フォトレジスト膜厚値の測定を行った。得られた現像時間対フォトレジスト膜厚値の結果を図5に示す。さらに、図5の現像時間とフォトレジスト膜厚値の関係を微分することにより各露光量に対するフォトレジスト膜内方向の溶解速度分布が得られる (図6)。

4. フォトレジスト膜中溶解速度分布の計算

フォトレジスト膜内の溶解速度分布の計算手法を図7に示す。先に示したフォトレジスト膜中光強度分布 $E(X_m, D_n)$ は、空間上での光強度分布であり、フォトレジスト表面位置における光強度分布の計算結果を膜中の全ての位置 D_1 から D_{100} に用いた (図7(a))。今、膜中光強度分布のフォトレジスト線幅方向の位置 X_m 、深さ D_n における光強度 E が例えば 650 mJ/cm^2 であるとする。この光強度 650 mJ/cm^2 は、フォトレジストの光吸収効果を考慮していないので光学系により決定される光強度のみを表している。次にフォトレジスト膜内での光吸収効果や多重干渉効果を考慮した位置 (X_m, D_n) におけるフォトレジスト溶解速度を求める必要

(a) Two-dimensional distribution of exposure dose in a resist film

(b) Development rate distribution in a resist film

(c) Two-dimensional distribution of development rate in a resist film

図7 レジスト膜内の溶解速度の計算手法

Fig. 7. Procedure for estimating two-dimension development rate distribution in a resist film.

がある。なぜならば、これらの効果すべてが実測の溶解速度分布の中に取り込まれているからである。この効果は実測データから求められる。図 7 (b)は、実測されたフォトリソ膜中溶解速度分布である。図の右の照射エネルギーはレジスト表面における値である。フォトリソ膜表面の光強度はフォトリソ膜の光吸収を含まないのでこの光強度に対応する深さ D_n におけるフォトリソ膜溶解速度を求める。図 7 (b)のように $650\text{mJ}/\text{cm}^2$ に直接対応するデータは無いが、 $600\text{mJ}/\text{cm}^2$ と $700\text{mJ}/\text{cm}^2$ に関するデータが存在するので内挿により $650\text{mJ}/\text{cm}^2$ に対応する溶解速度 $R(X_m, D_n)$ を決定する。図 7 (c)のように以上の操作をすべてのセルについて行うとレジスト膜中溶解速度分布が作成できる。以上の処理により、位置 (X_m, D_n) における溶解速度が推定できたことになる。この妥当性については、Mack らのモデルを表す式(2)を参照することにより明確になる。

$$I(x, d, z) = I_i(x, d_0) I_s(z) \dots\dots\dots (2)$$

ここで $I_i(x, d_0)$ は、レジスト表面における光強度分布であり、 $I_s(z)$ は、光の多重干渉、吸収の項である。すなわち、フォトリソ膜が全く存在しない場合には、レジスト表面における光強度分布がそのままレジスト膜内においても減衰しないので深さ d における光強度分布 $I_i(x, d_0)$ として表されるが、実際にはフォトリソ膜が存在し、種々の効果を受けるので深さ d における光強度分布は、 $I_i(x, d_0)$ のままで有り得ず $I_s(z)$ の分だけ変化することになる。本論文の手法では $R(X_m, D_n)$ がこの $I_s(z)$ に相当すると考えられる。

5. レベル・セット法による現像計算

フォトリソ膜中溶解速度分布とレベル・セット法⁽¹⁴⁾を用いて現像計算を行う。レベル・セット法は、原理的には、光学で用いられる Eikonal 方程式の解法であり、レジスト表面の移動について最短時間の原理を適用する。手法としてはセル・リムーバル方法⁽¹⁵⁾に似た計算方法である。

6. 実験結果及び結果の検討

〈6・1〉 実験条件 実験条件及びサンプル作製プロセス・フローを図 8 に示す。フォトリソ膜塗布・ベーク装置は LITHOTRAC (リソテックジャパン社製モデル LARC-1000) を用いジエズナフトキノン(DNQ)ノボラック系厚膜用ポジ型フォトリソ膜 (以降単にフォトリソ膜と記述) を Si 基板に $19.8\mu\text{m}$ 厚に塗布した。このときのプリベーク条件はプロキシミティ・ベーク方式を用い、露光後に発生する N_2 発泡現象によるパターン形状の劣化の少ない条件⁽¹⁶⁾の 125°C 、7 分とした。次にサンプルを真空デシケーター内に 1 時間放置し脱水した後、レジストの解像特性を高めるために 23°C の純水中に 30 分間浸漬した⁽¹⁷⁾。露光装置は図 9 に示すプロキシミティ露光方式のマスクアライナー (QUINTEL 社製モデル UL-7000) を用い、露光波長は 350nm から 450nm のブロード光、プロキシミティ・ギャップ $1.0\mu\text{m}$ 、コリメーション・アングル 1.5° とした。露光量は 10.0

図 8 サンプル作製工程
Fig. 8. Sample preparation process.

図 9 プロキシミティ露光方式のマスクアライナー
Fig. 9. Maskaligner of proximity exposure mode.

Line width	SEM	ProxSim- I
10.0μm L/S		
3.0μm L/S		

図 10 異なる線幅寸法におけるレジスト形状観察結果
Fig. 10. Resist pattern observation results for the different line width.

μm ラインスペースパターンが 1 対 1 の寸法となる露光量 E_{op} とした。現像液は厚膜専用の TMAH 現像液で、 23.0°C 、15 分間ディップ現像を行った。レジスト膜厚測定時のレジスト屈折率は 1.68 とした。レジスト線幅寸法は $10.0\mu\text{m}$ のラフなパターンと $3.0\mu\text{m}$ の微細なパターンを用いた。

〈6・2〉 フォトレジスト形状の比較 SEM 観察および ProxSim- I の計算結果を図 10 に示す。レジスト線幅寸法 $10.0\mu\text{m}$ では、フォトレジスト形状のトップ部の膜減りが少なく矩形形状を保っている。レジストパターンの側壁部はテーパーを帯びた形状を呈する。ProxSim- I による計算結果は SEM 観察とほぼ一致する結果が得られた。しかしフォトレジスト形状の側壁部のテーパー形状についてはフォトレジスト膜厚 $10.0\mu\text{m}$ 付近から基板付近の範囲において再現できなかった。フォトレジスト線幅寸法 $3.0\mu\text{m}$ では、フォトレジスト形状のトップ部の膜減りが発生し尖った形状になった。フォトレジスト形状の側壁部はテーパーを帯びた形状を呈する。ProxSim- I による計算結果は SEM 観察とほぼ一致する結果が得られた。このことから、実測溶解速度を ProxSim- I に用いることにより現実に近いシミュレーション結果が得られることがわかった。

〈6・3〉 現像特性 フォトレジスト形状の解像性の指標である現像コントラスト⁽¹⁸⁾ (溶解速度曲線の傾き: $\tan\theta$) とフォトレジスト感度 (E_{th}) を本溶解速度測定方法にて測定した結果を図 11 に示す。本溶解速度測定方法にて現像特性を測定できることを確認した。

〈6・4〉 光強度及びレジスト形状シミュレーション

図 12 にフォトレジスト線幅寸法 $10.0\mu\text{m}$ 、 $3.0\mu\text{m}$ 、 $1.0\mu\text{m}$ の光強度計算とフォトレジスト形状シミュレーション結果を示す。フォトレジスト線幅寸法が微細になるに伴い光強度が劣化していることがわかる。これは、フォトレジスト線幅寸法が微細になるに伴い光の回折が大きく発生すること

図 11 現像コントラスト ($\tan\theta$) とレジスト感度 (E_{th})

Fig. 11. Development contrast ($\tan\theta$) and resist sensitivity (E_{th}).

図 12 光強度計算とレジスト形状シミュレーション結果

Fig. 12. Simulation result of image intensity and resist pattern profile.

図 13 プロキシミティ・ギャップ値の変化に対する光強度計算結果

Fig. 13. Simulation result of image intensity for different proximity gap.

に起因していると考えられる。フォトレジスト線幅寸法 $1.0\ \mu\text{m}$ において光強度の劣化が著しく、マスクの Cr (クロム) による遮光部に光が入り込み、マスクの透過部の光が細くなり劣化しており、解像しないことが確認できる。ProxSim- I によるシミュレーション結果は本現象とほぼ一致している。

また、図 13 にフォトレジスト線幅寸法 $10.0\ \mu\text{m}$ におけるプロキシミティ・ギャップ値 (マスクとフォトレジスト間の距離) を変化させた場合の光強度計算の結果を示す。ギャップ値が大きくなるに伴い光強度が劣化していることがわかる。フォトレジストの膜厚は約 $20\ \mu\text{m}$ であることより、プロキシミティ・ギャップ値 $20\ \mu\text{m}$ の光強度分布がフォトレジスト膜と基板との境界部分の光強度分布に相当し、これはフォトレジスト表面部にあたるプロキシミティ・ギャップ $1.0\ \mu\text{m}$ の光強度分布に比較し劣化している。従って、SEM 観測とフォトレジスト形状シミュレーション結果の比較において、テーパ形状が再現できなかった原因は、現在の ProxSim- I はフォトレジスト膜内方向の光強度の劣化を考慮していないためであると考えられる。

7. むすび

厚膜レジストの膜内方向における実測溶解速度とレジスト表面位置の光強度分布を組合せることにより、プロキシミティ露光におけるレジスト形状シミュレーションを行うソフトウェア ProxSim- I を開発した。ProxSim- I のシミュレーション結果は SEM 観測結果とほぼ一致し、本手法に妥当性があることを確認した。今後、フォトレジスト膜内方向における光強度計算を取込む検討とプロキシミティ・ギャップをさらに大きくした場合のシミュレーション結果の妥当性の検討が必要である。

謝 辞

ProxSim- I の光強度計算部に関しまして、ソフトウェアの製作及び御指導いただきました(株)光システム研究所社長の伊藤徳久氏に感謝いたします。

(平成 15 年 6 月 23 日受付, 平成 15 年 10 月 27 日再受付)

文 献

- (1) R. Arai : "Exposure machine for the magnetic head", *Electric Parts and Materials*, pp.84-89 (2000-2)
- (2) Y. Shibayama and M. Saito : "Influence of Water on Photochemical Reaction of Positive-Type Photoresist", *J. Appl. Phys.*, Vol.29, pp.2152-2155 (1990-10)
- (3) F. H. Dill, A. R. Neureuther, J. A. Ruttle, and E. J. Walker : "Modeling projection Printing of Positive Photoresists", *IEEE Trans. Electron Devices*, Vol.ED-22, No.7, pp.456-464 (1975-7)
- (4) M. S. Yeung : "Modeling high numerical aperture optical lithography", *SPIE*, 922, *Optical/Laser Micro Lithography*, pp.149-167 (1988)
- (5) C. A. Mack : "PROLITH : a comprehensive optical lithography model", *SPIE*, 538, pp.207-219 (1985)
- (6) D. A. Bernard : "Simulation of Focus Effects in Photolithography", *IEEE Trans. Semiconductor Manufacturing*, Vol.1, No.3, pp.85-97 (1988-8)

- (7) W. Henke and G. Czech : *SIMULATION OF LITHOGRAPHIC IMAGES AND RESIST PROFILES*, pp.629-633, Elsevier Science Publishers B. V. (1990-11)
- (8) C. M. Garza and S. O. Grindle : "Resist Characterization and Optimization Using A Development Simulation Computer Program. PROSIM", *SPIE*, 631, *Advances in Resist Technology and Processing III* (1986)
- (9) T. Batchelder and J. Piatt : 「ポジ型フォトレジストのベーク効果」, *Solid State Technology* 日本版, pp. 55-61 (1984-2)
- (10) 遠藤政孝・笹子 勝・上野 厚・野村 登 : 「新規高解像レジストプロセス」, 第 35 回応物春季予稿集, 2, 28 p-H-7, p.509 (1988)
- (11) P. H. van Cittert : "Die wahrscheinliche Schwingungsverteilung in einer von einer Lichtquelle direct oder mittels einer Linse beleuchteten Ebene", *Physica*, Vol.1, pp.201-210 (1934)
- (12) F. Zernike : "The Concept of Its Application to Optical Problems", *Physics*, Vol.5, pp.785-795 (1938)
- (13) H. H. Hopkins : "On the diffraction theory of optical image", *Pro. Roy. Soc.*, A217, pp.408-432 (1953)
- (14) D. Adalsteinsson and J. A. Sethian : "A Level Set Approach to a Unified Model for Etching, Deposition, and Lithography I : Algorithms and Two-Dimensional Simulations", *J. Comput. Phys.*, Vol.120, pp.128-144 (1995)
- (15) Y. Hirai, S. Tomida, K. Ikeda, M. Sasago, M. Endo, S. Hayama, and N. Nomura : "Three-Dimensional Resist Process Simulator PEACE", *IEEE Trans. Comput. Aided Des.*, Vol.10, No.6, pp.802-807 (1991-6)
- (16) Y. Sensu and A. Sekiguchi : "Improved resolution of thick film resist", *SPIE*, 4979, pp.561-581 (2003-1)
- (17) Y. Sensu, Y. Miyake, and A. Sekiguchi : "Study on Improved Resolution of Thick Film Resist", *IEICE Trans. (C)*, Vol.J85-C, No.4, pp.260-268 (2002-4) (in Japanese)
扇 子 義 久・三宅康宏・関 口 淳 : 「厚膜レジストの高解像化に関する検討」, 信学論(C), J85-C, 4, pp.260-268 (2002-4)
- (18) 小久保忠嘉 : 「 $0.5\ \mu\text{m}$ 時代のポジ型フォトレジスト」, 富士ハント技術セミナー'88, p.6 (1988)

扇 子 義 久 (非会員) 1985 年住友 GCA に入社。自動終点検出装置の開発に従事。その後、レジスト解析装置および形状シミュレータのシステム開発に従事。1994 年リソテックジャパンに入社。現在に至る。応用物理学会会員。

磯 野 麻 里 子 (非会員) 1997 年埼玉工業大学卒業。同年リソテックジャパンに入社。同社にてフォトレジストの特性解析ソフトウェアの開発に従事。応用物理学会会員。

関 口 淳 (正員) 1982 年芝浦工業大学卒業。1983 年日本ケミテック入社。無電解 Au メッキ試薬の開発に従事。1985 年住友 GCA 社に入社。レジスト塗布現像装置のプロセス開発に従事。その後、レジスト解析装置および形状シミュレータのシステム開発に従事。現在、リソテックジャパン取締役。工学博士。応用物理学会会員。電子情報通信学会会員。

門 井 幹 夫

(非会員) 1988年3月東北大学修士課程卒業。同年三菱金属(現三菱マテリアル)に入社。同社中央研究所で主にシリコン単結晶育成技術および欠陥解析技術の開発に従事。1990年三菱マテリアルシリコンに出向。1995年リソテックジャパンに入社。現在に至る。応用物理学会会員。

南 洋 一

(非会員) 1979年東京電機大学卒業。同年プロセスシステム入社。米国GCA社のフィールドサービスに従事。1983年住友GCA社に入社。コータデベロッパの国産化に従事。その後、現像終点検出コントロール装置の開発に従事。以来それらを応用したレジストプロセス解析装置の開発に従事。現在リソテックジャパン代表取締役。応用物理学会会員。

松 澤 敏 晴

(非会員) 1975年東北大学修士課程卒業。同年日立製作所に入社。同社中央研究所で主にフォトリソグラフィのプロセス技術およびシミュレーション技術の開発を行う。1988年テクノフロンティア設立。1993年リソテックジャパン設立に参加、両社を兼務し、現在リソテックジャパン取締役。工学博士。応用物理学会会員。IEEE各会員。