はじめの

精密工学

実は奥深いナノインプリント技術

Nanoimprint lithography is profound!/Takushi SAITO

東京工業大学 大学院理工学研究科 機械制御システム専攻 齊藤卓志

1. はじめに

近年におけるナノテクブームの火付け役として、21世紀初頭に米国のクリントン政権が示した National Nanotechnology Initiative¹⁾ (NNI, 邦訳としてはナノテクノロジー戦略となるか) が果たした役割は大きい。アメリカ発の研究/技術分野への挑戦に触発される形ではあるが、その対象は材料やプロセス開発といった基盤分野から、バイオテクノロジーやITといった応用技術にまで拡がり、いわゆる学際的研究を加速する効果も大いにあったと思われる。本稿では、ナノインプリントに関する入門的な解説を書かせていただくが、当該技術についても単にプロセス技術として捉えるのではなく、さまざまなデバイス製造などへの応用展開性をもつ技術として興味をもっていただければ幸いである。なお、限られた紙面の中で当該技術のすべてを説明することは難しいため、本稿の内容では不十分と思われる読者は、既刊の書籍^{2)~4)}なども参照されたい。

さて、インプリントという言葉からも想像できるように、ナノインプリント技術は従来プロセスにおいてエンボスや転写といわれてきた技術を、原理はそのままにスケールダウンすることで微細構造の形成に適用したプロセスである。当然のことながら、対象とするスケールが小さくなるため相応の精度が要求されるものの、平行度のアライメントに配慮したプレス装置と転写形状の元となる型（以下、モールドと呼ぶ）があれば、比較的容易にミクロンからサブミクロンレベルの構造を加工対象となる材料に写し取る（インプリントする）ことができる。このように、直感的にプロセスの概要が理解しやすく、また装置自体も比較的シンプルな点がナノインプリントの魅力の一つと思われる。このため、従来の射出成形法やフォトリソグラフィプロセスの代替プロセス、あるいは従来技術では実現の難しかった形状・構造を作製できる可能性を秘めたプロセスとして、大いに期待されている。

2. ナノ構造を作る

ナノスケールの構造を作る手法は他にも存在する。例えば半導体集積回路の製造工程で用いられるフォトリソグラフィプロセスがよく知られている。この手法では、基板上に塗布した感光性材料に回路パターンが刻まれたマスクを用いて光を照射し、不要な感光性材料を除去した後にエッ

チング処理を施すことで基板表面に微細パターンを形成している。これにより大面積の微細構造を効率良く形成できる。しかし、このプロセスは設備コストが高いことに加え、写し取られるパターンの空間分解能が使用する光の波長に依存するため、回路サイズの微細化に合わせて光源の短波長化をはじめとした各種対応が必要となる。一方、電子ビーム (Electron Beam, EB) や集束イオンビーム (Focused Ion Beam, FIB) により基板表面に直接、ナノ構造を描画（刻み込む）プロセスもある。この手法では、電界中で加速された電子やイオンを物質表面に照射することで、その表面に直接パターンを描く、あるいは加工を行うため、適切な集束光学系を用いれば、その空間分解能は一桁ナノスケールまで可能とされている。しかしながら、加工は一筆書きで行うため、加工面積の増加により膨大なプロセス時間がかかる。これらの手法はそれぞれに得失もっているが、技術的にはほぼ確立されており、ナノインプリントで用いるモールドの作製にも使われている。

一方、ナノインプリントのプロセス形態は、熱プレスあるいはホットエンボスと呼ばれるマクロスケールの加工技術と共通部分が大きく、フォトリソグラフィ装置やEB/FIBといった微細加工技術に比べ必要設備が大幅に簡略化される。また、モールドを用いる複製プロセスであるため、安定条件下で得られる製品（転写形状）の繰り返し精度に優れる。また、形成される構造はマザーとなるモールドの等倍複製品であるため、スタンプ形状さえ作製できればナノスケール構造の大量生産も可能となる。ただし、形成する構造の大きさとマスターとなるモールドの大きさが等倍であることから、モールドの仕上がり精度が直接、形成する構造に影響するという点に注意が必要である。

3. ナノインプリント三種

ナノスケール構造を作製する手だての一つであるナノインプリントは、実際のプロセスの形態により、現状では大きく三つのカテゴリーに分けることができると考えられる。すなわち、熱式ナノインプリント (図1 (a))、光硬化式ナノインプリント (図1 (b))、およびマイクロコンタクトプリント (図1 (c)) である。厳密には前二者は言葉通りインプリント、すなわちモールドに刻まれた三次元の表面微細形状をそのまま転写対象に写し取るため、形成される構造は凹凸反転（インプリント）となる。一方、三

図1 各種ナノインプリントプロセスの概略, (a) 熱式ナノインプリント, (b) 光硬化式ナノインプリント, (c) マイクロコンタクトプリント

番目のコンタクトプリントには、モールド側の凸部形状のみを二次元的に転写（プリント）するプロセスも含まれる。以下ではそれぞれのプロセスの概略を紹介するとともに、その特徴についてまとめることにする。

熱式ナノインプリントは University of Minnesota の Chou（現在は Princeton University）らが 1995 年に発表した研究論文⁵⁾が有名である。一方、国内でもすでに 1970 年代からプロセスの基本概念はほぼ同様ながら、転写スケールがミクロンレベルという報告もあったようである。熱式ナノインプリントは加工材料に種々の熱可塑性樹脂やガラスを使用することができる（ただし以下では熱可塑性樹脂に限定して述べる）ため、光学素子、大容量ストレージデバイス、ディスプレイなど医療検査キットなど幅広い用途への期待がある。しかし、そのプロセスにおいて、基板となる材料を形状転写可能な温度以上（非晶性樹脂の場合はガラス転移温度より 20℃ 程度高い温度、結晶性樹脂の場合は結晶融解温度以上が目安）まで加熱する必要がある。また、転写形状の精度向上のため、数 MPa 程度の圧力を加える場合が多い。温度上昇により基板である樹脂材料は軟化しているが、上記のような加圧プロセスが存在する以上、モールドにはある程度の強度が求められる。このためモールド材として、シリコン、シリコンカーバイド、グラッシーカーボン、タンタルなどの他に、従来の射出成形における微細パターンで多用されるニッケル電鍍モールドなどが用いられる。当然のことながら、パターン転写後は、製品を取り出すためにモールド全体を基板材料が固化する温度まで冷却する必要がある。このため、加熱・冷却サイクルの短縮が生産性向上の決め手となるが、熱容量の大きな金型の加熱・冷却のハイサイクル化には限界がある。これへの対処として、金型の熱交換機構の見直しとともに、基板面積の大型化により一プロセスあたりの製品個数を増やすことも検討されている。しかし、大径化に伴って製品周縁部におけるモールドと基板間の冷却収縮差も増

加するため、転写パターンの損壊を生じるおそれがある。また、高い転写精度を追求した場合、モールドからの製品の離型が困難になるというトレードオフも生じる。対処法としてモールド表面に離型材を塗布する手法⁶⁾があるが、離型に関する問題は次の光硬化式でも同様である。

紫外（Ultraviolet, UV）光により硬化する材料を基板上に薄く塗布（スピコート）して行う光（UV）硬化式ナノインプリントは Philips Research Laboratories の Haisma⁷⁾や University of Texas at Austin の Willson⁸⁾が開発を行ってきた。開発当初は光ディスク基板への利用も想定していたようであるが、現在の CD や DVD に代表される光ディスクの製造は激しいコストダウン競争を経て射出成形をベースとしたプロセスで製造されている。その意味からは、光硬化式に限らず、インプリントプロセス自体は比較的付加価値の高い製品製造に用いられるべき手法なのかもしれない。さて光硬化式ナノインプリントでは、原理的にモールドが紫外光を透過させる必要があるため、その波長領域での透過特性が良好な石英ガラスがモールド材として用いられる。UV 硬化式ナノインプリントは硬化前の材料粘度が低い（0.1 Pa s オーダー）ため、微細形状および高アスペクト比構造をもつパターンも良好に転写できる。ただし、光硬化性樹脂は硬化により一般には数 % 体積収縮するため、高精度な三次元転写形状を必要とする場合には注意が必要である。また、材料粘度の低さのために、加工パターンの微細化に伴って顕在化してくる界面の影響（例えば表面張力など）に対する配慮も必要となる⁹⁾。以上のような留意点に配慮すれば、当該プロセスは材料種が限定されるものの、現状では熱インプリントよりも小さな構造形成を等温プロセスで実現できるという特徴がある。このため、フォトマスクを用いてレジストにパターンを形成するという半導体製造プロセスの重要なステップの代替手法としての検討が行われている。図 2 のように、International Technology Roadmap for

図2 2008年ITRSロードマップ¹⁰⁾から抜粋

Semiconductors (ITRS)¹⁰⁾が示す半導体集積回路の線幅目安となる DRAM 1/2 ピッチは、2007 年時点で 68 nm、2015 年ごろには 25 nm レベルとなっている。改良型フォトリソグラフィとしての ArF 液浸露光技術（発振波長 193 nm の ArF エキシマレーザーを光源とし、対物レンズとターゲットとなる基板の間を屈折率の高い液体で満たすことで解像度を向上させる）や、位相シフト法（Phase Shift Mask、フォトマスクの一部に屈折率や透過率の異なる部分を設けることで、マスクを通過する光の位相や強度を変化させ解像度を向上させる）、あるいは超紫外線（Extreme Ultraviolet, EUV）露光技術（波長 13.5 nm の軟 X 線を光源とすることで露光時の解像度自体を向上させる）により 45～30 nm レベルのパターン形成の量産移行が進みつつある中で、はるかに安い設備投資で現状でも 10 nm 程度のパターンを形成できるナノインプリントは非常に魅力的であると思われる。

上記二者とやや性格が異なると考えられる三つ目のプロセスが Harvard University の Whitesides ら¹¹⁾が提案したマイクロコンタクトプリント（mCP 法、ソフトリソグラフィと呼ばれることもある）である。mCP 法ではポリジメチルシロキサン（PDMS）製のモールドを用いるが、PDMS 自体が柔軟であるため曲面への構造転写も可能となる。また、当該プロセスでは化学反応を利用するケースが少なくなく、形状転写というよりは自己組織化膜などを形成するためのサイトを基板上に設け、物理化学的な吸着による機能膜の生成や微細な金属配線を行う、などの用途展開がある。同一形状のモールドパターンであっても、化学的な性質の異なる低分子等を吸着させることで異なる機能を有する製品が得られるため、例えば生化学用途での利用¹²⁾が期待されている。この意味において、当該手法は前述の二者とは多少ターゲットとする製品群が異なっていると考えられる。

4. ナノインプリントの今後

熱式/光硬化式ナノインプリントの棲み分けとしては、大まかに以下のようなのではないかと考えている。す

なわち、さまざまな熱可塑性樹脂を加工できるという熱式の特徴は重要であるが、構造の微細化に関しては光硬化式に譲らざるを得ない。また、マイクロスケールオーダーの構造形成では射出成形との競争が激しい。このため薄物/大面積、例えば従来のフィルム成形プロセスとの融合により表面にサブミクロンスケール構造をもつような製品を低コストで供給する、という用途イメージが熱式には考えられる。一方、光硬化式は、基本的に材料コストが熱式よりも高いため、使用した材料自体が製品本体を構成するバルクでの使用は不利である。また、材料自体の硬化収縮があるため、形状精度が厳しく求められる製品ではなく、前述のフォトマスクプロセス代替のように、微細構造の存在自体がさらなる付加価値を生む用途への展開が望ましいと思われる。

経済産業省がまとめたナノテクノロジーロードマップ¹³⁾から、ナノインプリントにより、あるいはナノインプリントと組み合わせた複合技術によりさまざまなデバイスの製造可能性が見えてくる（表1）。具体的には、プリズムアレーや光導波路といった光学デバイス、ナノインプリントによる溝形成を利用したパターンドメディア、数ミクロン程度の細胞などをフィルタリングする流路としてのバイオアプリケーション、 μ TAS（Micro Total Analysis Systems）と呼ばれる化学合成や分析に必要な混合/反応/検出/分離回収などの操作要素をワンチップ上に集積化したデバイスの製造などが挙げられる。

5. おわりに

非常に微細な機構/機械を作る技術として、ナノインプリントが大きな可能性をもっていることは明らかと思われる。その一方で、その基本コンセプトの単純さに拍子抜けした読者もいるかもしれない。しかし、ナノインプリントの単純さこそが、低設備コスト、幅広い応用展開性につながる優れた資質だと考えることもできる。この意味において、表題に記したナノインプリントの奥深さの意味がお分かりいただけたのではないだろうか。少し厳しい見方をすれば、従来手法の代替という位置づけから脱却できていない現状のナノインプリントは、この手法が本来もっている可能性を十分には発揮していないと思われる。ナノインプリントでしか作り出すことができない製品像が明確となり、それを製造する産業が成立したときこそ、このプロセスが本当の意味でナノテクノロジーの基盤技術の一端を担っているといえるだろう。そのためには、従来の射出成形やフォトリソグラフィの常識にとらわれない自由な発想が大切であり、今後も使用材料やプロセス装置のさらなる発展が望まれる。単純だからこそ大きな発展の可能性をもつ奥深さがナノインプリントの魅力といえるのではないだろうか。

参考文献

- 1) <http://www.nano.gov/>
- 2) 松井真二、古室昌徳：ナノインプリントの開発と応用、シーエ

表1 経済産業省がまとめたナノテクノロジーロードマップ¹³⁾から抜粋

分野	分類	製品・部品	要素	プロセス	材料・技術の名称
医療	再生医療	スキャホールド	2次元ナノスキャホールド	—	熱ナノインプリント, 光ナノインプリント
			3次元ナノスキャホールド	—	リバーサルインプリント
	診断	センサ・トランスデューサ	—	微細加工プロセスおよび表面修飾プロセス	ナノインプリント, マイクロコンタクトプリント
			局在表面プラズモントランスデューサ	—	ナノインプリント
情報家電	半導体・電子部品	Si半導体	超微細半導体デバイス (LSI, DRAM など)	露光代替技術	光ナノインプリント
			—	配線工程	光ナノインプリント (デュアルダマシン)
		パワーデバイス	大電力パワートランジスタ (SiC 系)	微細加工プロセス技術	フェムト秒レーザー加工
	光通信	光デバイス	CNT トランジスター論理回路, CNT メモリ, CNT センサ, CNT バイオセンサ	基板加工プロセス	マイクロコンタクトプリント
			光導波路	—	ナノインプリント, 電子ビーム, LIGA
			3D フォトニック結晶	—	フェムト秒レーザー加工, ナノインプリント
			プラズモニクスデバイス	—	電子ビーム, 集束イオンビーム, ナノインプリント
			電磁波制御メタマテリアル (パーフェクトレンズ)	—	ナノインプリント, 電子ビーム
	ディスプレイ	ディスプレイ (共通技術)	反射防止膜	ナノ構造形成	射出成形+ナノインプリント
	メモリ・ストレージ	磁気系ストレージ 不揮発メモリ	パターンドメディア	ナノパターン形成	電子ビーム, 反応性イオンエッチング, ナノインプリント
			Fe-RAM	—	従来リソグラフィ, ナノインプリント
			PRAM	—	従来リソグラフィ, ナノインプリント
燃料電池	—	PEFC/DMFC	電解質膜	高分子膜 (ナフィオンなど) ナノ構造形成	ナノインプリント
製造技術	ナノインプリント	ナノインプリント装置	ナノインプリントモールド	熱ナノインプリント装置	電子ビーム, 光リソグラフィ, ナノインプリント
				ローラナノインプリント装置	電子ビーム, 光リソグラフィ, ナノインプリント
				量産用モールド製造プロセス	集束イオンビーム, 電子ビーム, エッチング, 電鍍
				半導体用モールド製造プロセス	電子ビーム, 集束イオンビーム, ナノインプリント
				半導体用モールド修復プロセス	AFM, 電子ビーム, 集束イオンビーム

- ムシー出版, (2005).
- 3) 谷口淳: はじめてのナノインプリント技術, 工業調査会, (2005).
 - 4) 平井義彦編集: ナノインプリントの基礎と技術開発・応用展開, フロンティア出版, (2006).
 - 5) S.Y. Chou, P.R. Krauss and P.J. Renstrom: Imprint of sub-25 nm Vias and Trenches in Polymers, Applied Physics Letter, **67**, 21 (1995) 3114.
 - 6) S.W. Yoon, H. Goto, M. Takahashi, M. Ogiwara and R. Maeda: Thermal Imprint Process of Parylene for MEMS Applications, Key Engineering Materials, **340-341 II** (2007) 931.
 - 7) J. Haisma, M. Verheijen, K. Heuvel and J. Berg: Mold-assisted Nanolithography: A Process for Reliable Pattern Replication, Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, **14**, 6 (1996) 4124.
 - 8) M. Colburn, S. Johnson, M. Stewart, S. Damle, T. Bailey, B. Choi,

- M. Wedlake, T. Michaelson, S.V. Sreenivasan, J. Ekerdt and C.G. Willson: Step and Flash Imprint Lithography: A New Approach to High-resolution Patterning, Proceedings of SPIE—The International Society for Optical Engineering, **3676**, 1 (1999) 379.
- 9) H. Schmitt, L. Frey, H. Ryssel, M. Rommel and C. Lehrer: UV Nanoimprint Materials: Surface Energies, Residual Layers, and Imprint Quality, Journal of Vacuum Science and Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, **25**, 3 (2007) 785.
- 10) <http://www.itrs.net/Links/2008ITRS/Home2008.htm>
- 11) J.L. Willbur, E. Kim, Y. Xia and G.M. Whitesides: Lithographic Molding: A Convenient Route to Structures with Sub-micrometer Dimensions, Advanced Materials, **7**, 7 (1995) 649.
- 12) 成瀬恵治: ソフトリソグラフィを用いた細胞研究・医療用チップの開発, 表面科学, **28**, 4 (2007) 204.
- 13) http://www.meti.go.jp/policy/economy/gijutsu_kakushin/kenkyu_kaihatu/str2008/2_2_1_08_r.xls