集束プロトンビーム描画による微細加工と型加工への応用

西 川 宏 之^{*1}・打 矢 直 之^{*2}・古 田 祐 介^{*2}・吉 田 栄 治^{*3}・芳 賀 潤 二^{*4}・
及 川 将 一^{*4}・佐 藤 隆 博^{*4}・石 井 保 行^{*4}・神 谷 富 裕^{*4}

1. はじめに

成形加工技術の進展に伴い、その適用分野は広がっており、また利用側からの要求が高まるに伴い、その技術は進歩してきた。近年では、光学部品¹⁾、微小流体流路²⁾、MEMS³⁾、パターン磁気記録媒体⁴⁾など先進的な成形品への機能高度化の要求に対応するため、ニーズ・シーズの両面から、マイクロ・ナノ形状の成形に関する取り組みが進められている。

本来、微細加工はツール自身が小さいことから生産性の悪いプロセスであるが、型を用いた成形加工と融合することによってこの生産性の課題を克服することができる。そのため、近年ナノインプリントやホットエンボスと呼ばれる微細成形加工技術への取り組みが盛んである^{5), 6)}。

これら微細成形においては、前提として、実現したい転写形状を型として準備することが必須である。特に、半導体プロセス技術⁷⁾としてこれまで検討されてきたUV光、レーザ、放射光⁶⁾、電子ビーム⁸⁾や集束イオンビーム(FIB)⁹⁾などを用い、マイクロ・ナノ領域の新規な微細型の加工法に関する取り組みがなされている。

しかしながら、これらの型加工方法では、実現形状の自由度(深さ方向の加工自由度、シャープな加工面の実現、など)や加工技術としての扱いやすさ(面内均一性や再現性の確保、転写マスクなど特別な準備、など)や加工速度(特にサブミクロン領域加工のFIBや電子線描画では)に課題があり、改善が期待されている。

型加工に関するこれらの課題解決に向けて、著者らの研究グループではプロトンビーム描画(Proton Beam Writing¹⁰⁾、以降PBW)と呼ばれる微細加工技術の研究開発に取り組んでいる。本稿では最近の研究結果を挙げ、その可能性を提示する。

図1 プロトンビーム描画によるレジスト露光の流れ

図2 深さが同程度のプロトン(エネルギー: 1.7 MeV)および電子(エネルギー: 60 keV)の物質中(PMMA)での振る舞いの比較

2. PBW

2.1 PBWの特徴

PBWとは、1 μm 以下に集束したMeVオーダーのエネルギーを持つプロトン(H^+ 、陽子)ビームを走査しながら描画する技術である¹⁰⁾。典型的なPBWの露光プロセスを図1に示す。PBWの加工対象は一般にレジストと呼ばれる有機物である。

PBWの優れた特徴を十分理解するために、まずMeVレベルのエネルギーを有するプロトンの物質中での振る舞いを簡単に説明する。その特徴はプロトンの物質中での1)直進性、および2)エネルギー損失の深さ方向分布形状の2点にあり、それぞれ加工の微細度と深さに関係する。

図2に1.7 MeVのプロトンビームを照射した際のイオ

^{*1} Nishikawa, Hiroyuki
芝浦工業大学 工学部 電気工学科
東京都江東区豊洲 3-7-5 (〒135-8548)

^{*2} Uchiya, Naoyuki/Furuta, Yusuke
芝浦工業大学大学院 工学研究科

^{*3} Yoshida, Eiji
株神戸製鋼所

^{*4} Haga, Junji/Oikawa, Masakazu/Sato, Takahiro/Ishii, Yasuyuki/
Kamiya, Tomihiro
(独)日本原子力研究開発機構 高崎量子応用研究所
2007.3.9 受理

図3 SRIM シミュレーションにより得られたプロトン (エネルギー 1.7 MeV および 3.0 MeV) の PMMA 中での電子阻止能によるエネルギー損失の深さ方向分布

ン¹¹⁾の飛跡, および比較のために 60 keV の電子¹²⁾の軌跡をモンテカルロ法でシミュレーションした結果を示す. 双方ともプロトンまたは電子は最大で約 60 μm まで侵入するが, 電子ビームが物質の表面近傍で強く散乱されるのに対して, プロトンビームはイオンが停止する深さ (飛程) の直前に至るまで直進性を保ちながら, 侵入している. これは, 電子に対してプロトンは約 1800 倍もの質量を有するため, 物質中の電子と弾性衝突しても, ほとんど進行方向を変えないことによる.

図 3 に PMMA 中でのプロトンのエネルギー損失の深さ方向分布のシミュレーション結果¹¹⁾を示す. これは, 1.7 MeV あるいは 3.0 MeV のエネルギーまで加速されたイオンが, 照射対象の物質中での電子励起により非弾性的にエネルギーを失いながら停止する様子を示している. ここで注目すべきは, 表面からイオンの停止する直前の深さまでエネルギー損失がほぼ一定の領域が存在することである. この領域では, 非弾性的なエネルギー損失が支配的であり, 弾き出しに寄与する核衝突によるエネルギー損失は 3~4 桁小さい. この高速イオン特有の, 他の放射線に比べて高い線エネルギー付与 (単位長さあたりのエネルギー損失, Linear Energy Transfer, LET) により, レジストを構成する分子鎖の切断や架橋といった放射線化学反応¹³⁾が高密度に誘起され, 数 10 μm 程度の厚みをもつ高分子レジスト膜の露光が可能となる. その後イオンは, 図 3 に示すようにその飛程の終端でエネルギー損失が極大値 (ブラッグピーク) を示して停止するが, イオンの飛程はエネルギーを高くするほど大きくなるので, 反応の深さ, すなわち加工深さをビームエネルギーにより制御できる. UV や X 線による露光では, 物質中でエネルギー強度が指数関数的に減衰するが, イオンを用いた加工では減衰しないため大きな特徴を生み出す. また, 装置によりビーム強度は異なるために単純比較は出来ないが, MeV オーダーのイオンは数十 keV オーダーの電子に比べて上述の LET が大きいため, 単位時間あたりの荷電粒子の数が同じであれば, 露光のスループットが高い. また, MeV オーダーのプロトンを用いる PBW においては, UV 光によるリソグラフィ等で問題となる回折限界も十分小さく, 100 nm 級のビーム集束が実現されている¹⁰⁾.

これらより, 既存の露光技術に対して, PBW は以下の

(a) SU-8 (膜厚: 21 μm) (b) PMMA (膜厚: 5 μm)

図4 PBW によるネガ型 (SU-8) およびポジ型レジスト (PMMA) の微細加工例. (a) ライン & スペースおよび同心円状パターンおよび (b) グリッド状パターン

優れた特徴から自由度の高い微細加工を可能にする.

- ・マスキレス描画による高い加工自由度
- ・露光の高速性
- ・100 nm 級の微細度と 100 μm 級の加工深さを兼備

2.2 PBW の研究動向

本技術は 1997 年頃より国立シンガポール大学 (National University of Singapore, 以降 NUS) イオンビーム応用センター¹⁴⁾の Watt 教授らにより開発されてきたものであり, 元来イオンビーム顕微鏡 (Ion Microscope) の開発過程で生まれたものである. NUS では, ビーム集束・描画システム, また, 露光および前後プロセスの研究開発が進められ, 最近では 20 nm に近いビーム集束が実現されている¹⁵⁾. また, NUS の主催で PBW に関するワークショップが 2004 年, 2006 年に開催され, 欧米を中心に PBW の取り組みが数多く報告されている.

筆者らの研究グループは, 2000 年度より日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所 (旧日本原子力研究所高崎研究所. 以降, 原子力機構高崎) のイオン照射施設 (TIARA) 内に設置された高エネルギーイオンマイクロ・ナノビーム施設を利用し, 実験を重ねてきた. 上述の第 1 回 PBW ワークショップへの参加を契機に, 2005 年度より本格的なプロトンビーム描画に関する取り組みを開始した. 2006 年度には産官学で芝浦工業大学大宮キャンパス先端工学研究機構内にフレキシブル微細加工研究センター¹⁶⁾を立ち上げ, 国内外の研究機関との連携体制のもと, PBW 加工技術の研究に取り組むとともに, 産業界への波及を狙いとする活動に取り組み始めた.

3. 微細加工の現状と課題

PBW 加工技術は, 加工深さ, 高速性, 柔軟性の 3 つの特徴を有する. MEMS や $\mu\text{-TAS}$ といった種々の高機能デバイスの作製には, 高アスペクト比構造の形成が不可欠であり, PBW は高い威力を発揮する. さらに, PBW は今後の新たな微細加工応用への大いなる可能性を秘めている. 以下に, PBW による特徴的な微細加工の事例を紹介する.

3.1 微細加工の事例

図 4 にネガ型レジストおよびポジ型レジストへの微細加工例を示す. 図 4(a) に示すようにネガ型レジストである SU-8 (化薬マイクロケム 2015, 膜厚 21 μm) において,

図5 PBW (エネルギー 1.7 MeV) により作製した高アスペクト比を有するピラー構造のSEM像。(a)700 μm 四方 (240 倍), (b)端部拡大図 (2000 倍), および(c)側面拡大図 (4000 倍)

図6 PBW (エネルギー 3.0 MeV) により作製した 50 μm 厚 SU-8 の高アスペクト比構造の加工例

約 1 μm 程度に集束したプロトンビームのマスキレス露光により, ライン&スペースおよび同心円といった任意の形状が 700 μm 四方の領域に形成された。図 4(b)はポジ型レジスト PMMA (化薬マイクロケム 950 PMMA-A 11, 膜厚 5 μm) へのグリッド状照射による加工例である。加工端部は極めてシャープであり, かつ側壁の垂直性も高く, 平滑であることがわかる。

図 5 に SU-8 (膜厚 21 μm) へのドット状照射により形成した, ピラー構造を示す。700 μm 四方の領域にわたり, 幅 1.1 μm , 高さ 21 μm のピラーが形成され, アスペクト比 20 程度の構造体が形成された。図 6 にはさらに厚膜の 50 μm の SU-8 に照射した例を示す。この際, 3 MeV のプロトンを用い, 膜厚よりも飛程を十分大きく取ることで, イオンの散乱の効果が加工線幅に及ぼす影響を抑えている。このとき, ポストバークにより構造の強度を増すことで自立した構造となり, 50 μm という厚膜においても線幅 2.5 μm の高アスペクト比 (~ 20) 構造体が得られた。以上より, 垂直性に優れた, 高アスペクト比の構造形成が可能であることが示された。

また, イオンの飛程制御により, 深さ方向を制御した 3

(a) 全体像 (700 μm 角)

図7 異なるエネルギー (3.0 MeV および 1.2 MeV) での PBW により作製した 50 μm 厚 SU-8 の 3 次元構造体の加工例

次元構造体を作製することが可能である。2 種類の異なるエネルギーで照射したパターンを重ね合わせることで作製した構造体の例を図 7 に示す。飛程が 50 μm 以上の 3.0 MeV プロトンを照射することで形成された 50 μm 厚の構造は, シリコン基板より 3 次元構造全体を支える。一方, 1.2 MeV プロトン照射は飛程 28 μm であることから, 表面から 28 μm の構造体が形成されており, その下は基

図8 PBWによる微細加工パターンを母型とする電鍍によるNi金型の作製の流れ

板から浮いた構造である。このようにエネルギーによるイオンの飛程制御を利用することで3次元構造体を形成することができ、埋め込みチャンネル構造などの形成が可能となる。

以上のように微細度と深さを兼ね備えたPBW加工技術は、数 μm からサブ μm レベルの高アスペクト比構造を、マスクレス描画で作製可能な自由度の高い加工技術である。

最後に、PBWの特徴を活かした高アスペクト比を有する電鍍型の作製例を紹介する。

図8にPBWにより作製した微細加工パターンを母型とする金型作製の流れを示す。図9(a)に示すように、PBWにより作製したPMMAの微細パターンを母型として、その後(b)に示すようにNi電鍍により逆のパターンが転写されたことがわかる。PBWの特徴である垂直かつ平滑な側面を有するNi金型の形成が確認できた。

以上のようにPBWは、100 nm級の微細度と100 μm 級の深さを両立しながら、自由度の高いマスクレス加工を可能にする技術であることがわかる。

3.2 微細加工の課題

ナノインプリント用型の微細加工においては、以下の課題が存在する。

- ・電鍍適応性を考慮したレジスト選択
- ・レジスト以外の材料への拡張

電鍍に適したレジストを選択する際、現状PBWへの適用実績のあるポジ型のPMMAおよびネガ型のSU-8は、PBWの特徴を活かした、高アスペクト比を有する電鍍プロセス用の母型に最適とはいえない。例えば、PMMAは厚膜の形成が難しく数 μm 程度が限界である。また、厚塗りの可能なSU-8により高アスペクト比構造を母型としたNi電鍍を行う場合、電鍍後のSU-8の除去に問題が生じる可能性がある。また、添加されている触媒のNi電鍍への影響も検討課題である。このようなことから、本研究グループでは主要なレジストメーカーの協力を得て、電鍍用の母型作製に適したPBW用レジストを既存のEB用レジスト群の中から探索している。

また、微細加工の対象として、レジスト以外の材料へのニーズが高く、NUSからもSiなどレジスト以外の材料への微細加工例が報告されている¹⁰⁾。ガラス、セラミックス、半導体、金属材料は機械的・化学的に優れた特性を有するが、高アスペクト比微細構造を直接形成するには、レジストに比べて高いイオン照射量を要するなどの課題がある。

(a) 母型PMMAにおける微細パターン (上段：1000倍，下段：7000倍) (b) 電鍍によるNi転写パターン (上段：1000倍，下段：7000倍)

図9 PBWによるPMMA上の微細パターンを母型とするNi電鍍による金型加工例

今後、PBWを産業界に広く普及させていくためには、高エネルギーイオンの高いLETを活用した放射線化学反応を活かし、ユニークな加工技術を見出していくことが重要である。

4. 高エネルギーイオンマイクロ・ナノビーム形成技術と課題

PBWには、メガボルト(MV)級の静電加速器と高エネルギーイオンマイクロ・ナノビーム形成装置(以下、形成装置)により形成される高エネルギープロトンマイクロ・ナノビームが使われる。この形成装置では、イオンビーム集束用の磁気レンズとレンズ系への入射ビームを成形するマイクロメートル精度の物点スリット、ビームの発散角を制限する発散制限スリットからイオンビームレンズ系が構成され、これにビームを試料上で走査するスキャナーと高精度試料移動ステージからイオンビーム描画システムが構成されている¹⁷⁾。

原子力機構TIARA¹⁸⁾の形成装置(図10)ではビーム集束性能として、最小ビーム径250 nmが達成されている^{19),20)}。今後はサブ100 nm級集束の実現に向けた取り組みを行っていく。

イオンマイクロ・ナノビーム形成の課題としては、PBWにおける加工精度の向上と加工時間短縮、さらにビームの安定性が求められる。そのために、加速器イオン源の高輝度化と加速器、形成装置を含めた加工システム全体の安定性の向上が図られている。

また、PBW技術の普及の観点から、原子力機構の基盤技術をベースにプロトンビーム加速と集束レンズ系とが一体化した小型形成装置が考案され、開発が進められている^{19),21)}。

5. PBWの産業利用に向けて

PBWは他の微細加工方法にはない特徴を有することから、産業界から高い関心が寄せられている。他方PBWを産業的に利用するまでには開発すべき課題が数多く残って

図 10 TIARA 3 MV シングルエンド型静電加速器と高エネルギーイオンマイクロ・ナノビーム形成装置

いる。特に、PBW 専用の小型装置を開発することが最大の課題である。汎用的な専用装置が存在して初めて、プロセス開発や加工評価が加速される。

現状、例えば当グループが利用する前述の TIARA (図 10 参照) は、汎用イオン照射施設であり PBW 専用には利用することはできない。またこれは PBW 微細加工用に装置設計された施設でなく、その利用には高度な専門知識が必要である。

既に 2004 年の第 1 回 PBW ワークショップにおいて、PBW を先導する Watt 教授によって小型装置の開発が今後の最大の課題として取り上げられていた。

加工装置の産業的利用を図るには、以下の実現が必要であると考える。

- 1) 加工装置としての要求仕様の実現 (微細度、再現性・安定性、生産性)
- 2) 導入可能な装置の実現 (大きさ、重さ、価格、扱いやすさ)

1) について、2 節、3 節に記したように 100 nm 級の加工微細度を実現するには、100 nm 級の集束径と、10 nm 程度の集束安定度が必要と考える。加工時間は決して瞬時とは言えず、その間のエネルギーや電流の高い安定性が必要となる。また、産業的に利用する上で、生産性は最も重要な課題の一つであり、照射部位での電流値向上が必要である。これらの課題を解決するために、光源であるイオン源の高輝度化、加速器でのビームエネルギー安定化、高いイオン搬送効率を有する集束系の開発が望まれる。

2) については、前述の原子力機構 TIARA 施設のような汎用性を持つ加速器と形成装置の形態では大きさの点か

ら、本技術の普及は難しい。既存の実験室または製造現場に簡単に設置可能な大きさや重量で設計された装置が必要である。また運転準備や加工照射が自動化され、操作性に優れた装置が望まれる。

芝浦工業大学・原子力機構と共同で PBW の開発を進めている神戸製鋼所は、15 年来の mikro-i 等のマイクロイオンビーム分析装置の²²⁾製造、販売実績を有する。シンガポール大学など国内外の関係機関とも情報交換しながら、数年内に PBW 専用機の初号機を供給できるよう、開発を進めている。

6. おわりに

加工自由度が高く、高速かつ高精度なもののづくりを支援する微細加工システムとして、PBW はその中核を担う技術である。著者らのグループは、文部科学省私立大学学術研究高度化推進事業 (学術フロンティア) の採択を受け、2006 年度より芝浦工業大学先端工学研究機構内に「フレキシブル微細加工研究センター」を設置した。ここでは、PBW の微細加工技術および装置の開発を推進し、本技術をフォトニクス、電子材料、バイオ・化学センサ、光・電子デバイス等の高機能デバイスに適用するとともに、電鍍型加工、等に取り組んでいる。

本センターでは PBW に関する成果を広く公表し、産業界との共同を目指している。2007 年 2 月 26 日開催のシンポジウム^{16), 23)}には、デバイスメーカ、装置メーカ、材料メーカなどの多方面から参加を頂いた。読者の皆様におかれても、本研究センターの活動に対して、ご理解とご厚情を賜れば幸いである。

謝 辞

本稿をまとめるに当たっては、国立シンガポール大学 F. Watt 教授、大阪府立大学 平井義彦先生、早稲田大学 大木義路先生、フレキシブル微細加工研究センターに参画して頂いている共同研究者の皆様深く感謝します。

本研究は、文部科学省私立大学学術研究高度化推進事業学術フロンティア推進事業 (平成 18 年～22 年) の助成を受けて行われた。また、本研究は原子力機構および神戸製鋼所との共同研究により行われたものである。一部の成果は、日本学術振興会科研費 (No. 17310085) の補助により得られた。

参 考 文 献

- 1) 塩野照弘：応用物理，**68**，633(1999)
- 2) 北森武彦，田中有希：応用物理，**74**，623(2005)
- 3) 江刺正喜：応用物理，**73**，1158(2004)
- 4) 青山 勉，佐藤勇武，石尾俊二：応用物理，**72**，298(2003)
- 5) 松井真二：表面科学，**25**，628(2004)
- 6) 杉山 進：応用物理，**73**，466(2004)
- 7) 岡崎信次：応用物理，**75**，1328(2006)
- 8) 野末 寛，遠藤章宏，樋口 朗，笠原春生，島津信夫：応用物理，**71**，421(2002)
- 9) 松井真二：応用物理，**73**，445(2004)
- 10) Watt, F., Bettiol, A. A., Van Kan, J. A., Teo, E. J. and

- Breese, M. B. H. : *International Journal of Nanoscience*, **4**, 268 (2005)
- 11) Ziegler, J. F. : The Stopping and Range of Ions in Matter, **Vol. 2-6** (Pergamon Press, 1977-1985), <http://www.srim.org>.
 - 12) Hovington, P., Drouin, D. and Gauvin, R. : *Scanning*, **19**, 1 (1997), ウェブサイト (<http://www.gel.usherbrooke.ca/casino/>)
 - 13) 日本放射線学会編：放射線化学のすすめ(学会出版センター, 2006)
 - 14) NUS イオンビーム応用センターウェブサイト (<http://www.ciba.nus.edu.sg/>)
 - 15) Van Kan, J. A., Bettiol, A. A. and Watt, F. : *Nano Letters*, **6**, 579 (2006)
 - 16) 芝浦工業大学先端工学研究機構フレキシブル微細加工研究センターウェブサイト (<http://www.cfm.ae.shibaura-it.ac.jp>)
 - 17) 田中隆一 : *RADIOISOTOPES*, **44**, 2, 58 (1995)
 - 18) 原子力機構高崎量子応用研究所ウェブサイト (<http://www.taka.jaea.go.jp>)
 - 19) 田中隆一, 酒井卓郎, 石井保行, 神谷富裕 : 放射線, **23**, 1 (1997)
 - 20) 神谷富裕 : 放射線と産業, **69**, 32 (2000)
 - 21) 石井保行 : JAERI-Conf 2003-021, 512, (2003)
 - 22) 神戸製鋼所機械エンジニアリングカンパニー製品・事業紹介ウェブ, (<http://www.kobelco.co.jp/mach-eng/products/function/index.html>)
 - 23) 芝浦工業大学先端工学研究機構フレキシブル微細加工研究センターオープニングシンポジウム予稿集 (2007年2月26日, 芝浦工業大学)

会員の皆様へ

会員の意見交換のひろば

「ファウンテン・フロー」へ投稿下さい

『成形加工』誌では、会員の皆様が自由に意見を述べていただく「ファウンテン・フロー」というコーナーを設けております。

投稿を希望される方は、以下までご連絡お願いいたします。

〒105-0004 東京都港区新橋 5-20-4

ニッセイエブロー(株) デジタル編集課『成形加工』誌事務局代行 泉澤真人宛

TEL. (03)5733-5157 FAX. (03)5733-5168 E-mail: eblo_h1 (数字の1です) @eblo.co.jp

皆様からの原稿お待ちしております。

＜募集原稿＞

1. 原稿内容；成形加工に関する苦勞話，失敗談及び新しい成形のアイデア，理想の成形機など加工に関する内容や学会の運営・行事に関する意見，学会誌に関する感想など。
2. 文章の長さ；A-4 半ページ～1 ページ程度。
3. 著者名；所属・氏名を名乗らなくても，ペンネームも可とします。
4. 査読；編集委員による査読は通させていただきます，適当でない表現は訂正をお願いすることもあります。学会誌の性格上ご容赦下さい。

「成形加工」編集委員長 大嶋正裕