領域選択的原子層堆積に基づく光ナノインプリントリソグラフィ UV nanoimprint lithography based on area-selective atomic layer deposition 東北大多元研 ^O上原 卓也, 尾崎 優貴, 廣芝 伸哉, 中村 貴宏, 中川 勝 IMRAM, Tohoku Univ., ^oTakuya Uehara, Yuki Ozaki, Nobuya Hiroshiba, Takahiro Nakamura,

and Masaru Nakagawa

E-mail: masaru.nakagawa.c5@tohoku.ac.jp

【緒言】領域選択的原子層堆積(AS-ALD)法^{III}は、基板表面を親水性と疎水性の領域に区画化したのち、 親水性表面にのみ反応性無機前駆体を反応させて、逐次化学気相反応を施すことで原子層堆積(ALD) により領域選択的に無機薄膜を成膜する方法である。我々は、光ナノインプリント成形して残膜除去 後に得られる有機物パターンをマスクに用い、露出した基板上の金属薄膜表面に ALD により無機薄 膜をレジスト膜として領域選択的に成膜し、レジスト無機薄膜を介して有機物残存部をドライエッチ ングで選択的に除去し、金属薄膜パターンを基板上に作製する領域選択的原子層堆積に基づく光ナノ インプリントリソグラフィ法(AS-ALD/UVNIL)を着想した。本研究では、基板上の金属薄膜を膜厚 20 nm の金薄膜とし、原子層堆積により形成される無機薄膜を Al₂O₃ とした方法で、線幅 50 nm の金のス プリットリング共振器(SRR)の配列体の作製を AS-ALD/UVNIL 法で作製できるか検討した。

【実験】 モノマーbisphenol A glycerolate dimethacrylate からなるラジカル重合型光硬化性液体 NL-KK1^[2] を調製した。20 nm Au/5 nm Cr/Si 基板に NL-KK1 のパターンを光ナノインプリントにより成形した。 酸素反応性イオンエッチング(O₂ RIE)により残膜を除去し〔図 1(i)〕、無機前駆体に trimethylaluminum (TMA)、酸化剤に H₂O を用いた ALD を 20 サイクル施した〔図 1(ii)〕。O₂ RIE により有機物マスクを 除去し、次いで Ar イオンミリングにより金をエッチングした〔図 1(iii)〕。

【結果と考察】AS-ALD/UVNILで作製された金のSRR 配列体のFE-SEM 像を図 2(a)に示す。線幅 35nm, ギャップ幅約 25nm の金 SRR 構造体が形成されていることがわかった。既報による NL-KK1 をレジス トマスクとした UV-NIL^[2]および reverse-tone^[3]で作製した金 SRR 配列体の FE-SEM 像を比較として図 2(b)と 2(c)にそれぞれ示す。有機レジストマスクを直接用いた既報に比べて、AS-ALD/UVNIL で作製 した SRR のギャップ幅が小さく、設計値 24 nm に近いギャップ幅を作製できることがわかった。20 サイクルの ALD で形成された金表面の Al₂O₃ 薄膜が O₂ RIE および Ar イオンミリングに対して高いド ライエッチング耐性を示し、金のドライエッチングマスクとして機能したことが確認できた。X 線光 電子分光測定により、金表面に存在するカルボニル基に無機前駆体である TMA が反応して、金薄膜 表面に Al₂O₃ が製膜されている形成メカニズムであることがわかった。

[1] R. Chen, et al., *Appl. Phys. Lett.* **86**, 191910 (2005). [2] T. Uehara, et al., *Chem. Lett.* **42**, 1475 (2013). [3] T. Uehara, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 06FM02 (2015).





Figure 1. Schematic illustration of UV-NIL based on AS-ALD for fabrication of Au nanopatterns; (i) removal of residual layer underneath organic imprint patterns by O_2 RIE, (ii) 20-cycle ALD on Au, and (iii) selective etching of organic/inorganic hybridized patterns by O_2 RIE and of Au by Ar ion milling.

Figure 2. FE-SEM images of Au SRR arrays fabricated by (a) AS-ALD/UV-NIL, (b) UV-NIL with NL-KK1 resist masks^[2], and (c) reverse-tone UV-NIL with NL-SK1 and NL-SU1 as resist layers^[3] The average gap widths of Au SRRs were (a) 25 nm, (b) 51 nm, and (c) 51 nm.