粗視化分子動力学シミュレーションによるブロック共重合体ラメラ相のグラフォエピタキシ

Graphoepitaxy of lamellar-forming block copolymers by coarse-grained molecular dynamics simulations

NTT 物性基礎研，°山口 徹，田中弘隆，藤原 聡

NTT BRL °Toru Yamaguchi, Hirotaka Tanaka, Akira Fujiwara

E-mail: yamaguchi.toru@lab.ntt.co.jp

ブロック共重合体の誘導自己組織化技術は、sub-10 nm リソグラフィ技術の有力候補として、近年盛んに研究が行われている。我々は、実験的事実として得られる配向秩序形成の理解を目的として、粗視化分子動力学(MD)シミュレーションを始めている。これまでの検討では、薄膜における垂直ラメラ相の配向挙動について報告してきた。今回の報告では、トレンチ構造中での垂直ラメラ相のグラフォエピタキシ成長の可否について検討を行ったので報告する。

ブロック共重合体として、これまでの報告と同様、粒子A及び粒子Bが2個ずつ直線状に結合したA_2B_2の粒子バネモデルを用いた。ポテンシャルはすべての粒子間で同一とし、粒子A-B間のみレナード・ジョーンズ(LJ)(12,6)ポテンシャルの深さを浅くして非相溶性を導入した。トレンチ幅はラメラ周期の2倍程度に設定し、トレンチの底面、側面、上面は、それぞれ中性化表面、粒子A親和性表面、自由表面とし、トレンチ末端にのみ周期境界条件を適用した。定温定体積(NVT)条件にて、全粒子数30,000個程度の系(長さ：ラメラ周期の50周期程度)についての時間発展をCPUにより計算した。熱処理温度は、秩序無秩序転移温度($kT/\epsilon \sim 0.75$、ϵ：エネルギーの単位)以下の温度$kT/\epsilon = 0.5$にて、各トレンチ幅水準とも異なる10つ初期ランダム状態からのシミュレーションを行った。MDシミュレーションはオープンソースソフトウェア「HOOMD-blue」[1,2]を用いて行った。

シミュレーション後のトレンチ全体の鳥瞰図と端部の拡大図をFigure 1(a)に示す。粒子A(青色)のドメインがトレンチ側壁に濡れるとともに、2周期幅の垂直ラメラ相が長手方向に配向し、グラフォエピタキシ成長していることがわかる。各種トレンチ幅でのシミュレーション結果をFigure 1(b)に示す。これらは粒子位置を底面に射影して画像化したもので、実際のSEM画像とほぼ同様な品質が得られている。温度$kT/\epsilon = 0.5$でのラメラ相の周期(5.7σ) (σ：長さの単位、LJポテンシャルでの平衡粒子間距離が$2^{1/6}\sigma$に対応する。)とトレンチ幅の整合性が取れている範囲(トレンチ幅の±15%以内)において、欠陥のない配向が実現できることが分かった。SEM画像解析と同様に、ラフネス解析を行ったところ、配向したラメラドメインのラインエッジラフネス(3σ LER)はドメイン幅の20%程度であることが分かった。PS-*b*-PMMAの垂直ラメラ相を下地シリコン基板に転写したパターンでは、トレンチ幅20nm程度に対し、ラフネスの大きさは4 – 6 nm (20 - 30%)の範囲に入っており、今回の結果が実験結果と大差ないことが明らかとなった。A_2B_2のような極端に粗視化したモデルでもラフネス発生の考察に適用できることが示唆される。

[1] J. A. Anderson, C. D. Lorenz, and A. Travesset. Journal of Computational Physics 227(10): 5342-5359, May 2008. 10.1016/j.jcp.2008.01.047. (http://glotzerlab.engin.umich.edu/hoomd-blue/) [2] J. Glaser, T. D. Nguyen, J. A. Anderson, P. Liu, F. Spiga, J. A. Millan, D. C. Morse, S. C. Glotzer. Computer Physics Communications 192: 97-107, July 2015. 10.1016/j.cpc.2015.02.028. [3] A. Stukowski, Modelling Simul. Mater. Sci. Eng. 18 (2010), 015012. (http://ovito.org/)

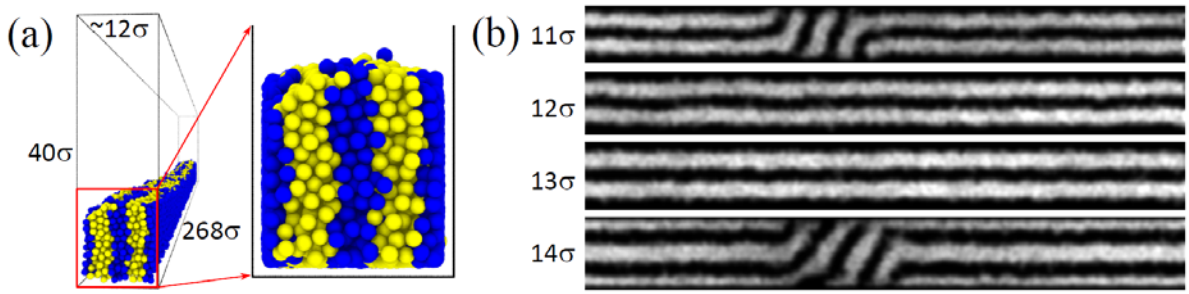

Figure 1 (a) Configuration of A_2B_2 film inside a trench structure after 1.9 x 10^6 md time steps at $kT/\epsilon = 0.5$ (particle A: blue, particle B: yellow). (b) Magnified views of typical gray scale images of yellow domains with various widths of trench ranging from 11 to 14 σ. The OVITO package was used for graphical representation [3].