

ダイヤモンドモールド室温ナノインプリント リソグラフィによるダイヤモンド薄膜のナノ加工

清原修二¹・柏木大幸²・滝川浩史³・倉島優一⁴・田口佳男⁵・杉山嘉也⁵・小俣有紀子⁵

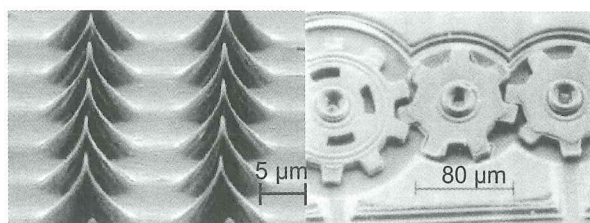
要旨：ポリシロキサンを直接マスクとするダイヤモンドナノモールドの作製プロセスを提案した。また、そのモールドを用い、室温で高粘性であり徐々に硬化するポリシロキサンを転写材料とする室温ナノインプリントリソグラフィによるダイヤモンド薄膜のナノ加工プロセスを提案し、検討した。電子サイクロトロン共鳴酸素イオンビーム加工の最大選択比は、イオンエネルギー400 eVのとき4.7が得られた。この条件で、高さ約500 nm、最小直径500 nmの円錐ドットダイヤモンドモールドを作製した。そのナノモールドを用いた室温ナノインプリントリソグラフィの結果、精度よくポリシロキサン転写パターンが形成され、直径約500 nmのダイヤモンドナノパターンが形成できた。

キーワード：ダイヤモンド薄膜， ナノ加工， 電子サイクロトロン共鳴イオンビーム加工， 室温ナノインプリントリソグラフィ， ダイヤモンドモールド

1. はじめに

近年、新たな産業革命を引き起こす科学技術としてナノテクノロジーが注目を集めている。ナノテクノロジーは、材料、物質の分野はもとより、自然科学、ならびに情報、通信、精密機械、生物、環境、エネルギーといった応用科学とも密接に結び付いた分野である¹⁾。これらの分野で特にダイヤモンドは、大きく分けて電気的（負の電子親和力，ワイドバンドギャップ）と機械的（高硬度，耐摩耗性，低膨張係数）に特異な性質を持つため，マイクロ・ナノ機能性デバイスの材料として注目されている²⁾。現在，半導体微細加工技術が確立されているシリコン（Si）や二酸化シリコン（SiO₂）で，Fig. 1に示すようなフラットパネルディスプレイ用電子放出源³⁾やマイクロマシン用マイクロギア⁴⁾などの機能性デバイスが作製されているが，耐摩耗性や硬度が低く壊れやすいなどの欠点がある³⁾。そこで本研究では，これらのデバイス材料としてダイヤモンドが最適であると考えた。

ダイヤモンドマイクロ・ナノ機能性デバイスを作製するためには，ダイヤモンドの微細加工技術が最も重要となる。そこで近年，ナノテクノロジーの一つとして，ナノインプリントリソグラフィ（Nanoimprint Lithography：以下NILと略す）技術が



(a) Electron emitter (b) Micro gear
Fig. 1 Micro-functional devices made of Si materials

注目されている⁵⁾。各種微細加工技術とその特徴をTable 1に示す。NIL技術は，表に示すようにフォトリソグラフィや電子ビームリソグラフィなどの大型でかつ高価な装置や設備を必要とする微細加工技術に比べ，安価でナノサイズパターンの一括転写が実現可能である¹⁾。この技術は，ナノスケールの凹凸パターンを形成したモールドを転写材料である熱可塑性樹脂などが塗布された基板に押し当て，転写材料に凹凸パターンを転写し，その基板にドライエッチングをすることで所望のパターンの加工を行う技術であるため，モールド（金型）が最も重要となる。現在，一般的にモールド材料に用いられるSiやSiO₂は，耐久性が低く繰り返しの使用に耐えられない⁵⁾。そこで，NILのモールドに要求されることとして，以下の条件が挙げられる。

- ・ ナノパターンを形成する技術がある
- ・ 押し付け時の圧力に耐えられる
- ・ 圧力による変形がない
- ・ 熱変化によるモールドパターンの変形がない
- ・ 大量生産のために繰り返しの押し付けに耐えられる
- ・ 離型性に優れている

1 舞鶴工業高等専門学校 電子制御工学科 准教授

2 舞鶴工業高等専門学校 専攻科 電気・制御システム工学専攻 2年

3 豊橋技術科学大学 電気・電子工学系 教授

4 山梨大学 工学部 機械システム工学科 助教

5 株式会社 エリオニクス 営業部 応用技術課

Table 1 Various micropatterning techniques and its characteristics

Lithography	Limit of Resolution (nm)	Necessary for mask	Throughput	Apparatus Price
Nanoimprint	Mold pattern	Necessary	High	Millions of yen ~
Electron beam	10	Unnecessary	Medium	Tens of millions ~ Hundreds of millions of yen
Ion beam	20	Unnecessary	Low	Tens of millions ~ Hundreds of millions of yen
X-ray	40	Necessary	High	Hundreds of millions ~ Billions of yen
Photo	60	Necessary	High	Hundreds of millions of yen

これらの条件を満たす材料として本研究では、ダイヤモンドが最適であると考えた。一般的にダイヤモンドの微細加工には、リフトオフ法が用いられるが、この方法は、金属マスクを蒸着するためプロセスが長く、スパッタリングによる残渣の影響などの問題がある⁶⁾。そこで本研究では、これらの問題を解決するレジスト材料としてポリシロキサン $[-R_2SiO-]_n$ を提案した。この材料は、酸化シリコンを主成分とするため酸素イオンビームに対するエッチング耐性を持つと考えられ、そのままマスクとして用いることができると思われる。そこで、ポリシロキサンを用いた電子サイクロトロン共鳴 (Electron Cyclotron Resonance : 以下 ECR と略す)⁷⁾ 酸素イオンビーム加工法によるダイヤモンドモールドの作製プロセスを提案し、検討した。

一般に、NIL 技術は転写材料に PMMA (Polymethyl methacrylate) を用いる熱サイクル NIL で行われるが、昇降温変化によりモールドが膨張・収縮することによる転写パターン精度の低下などの問題がある⁷⁾。そこで本研究では、これらの問題を解決するために、室温で粘性をもち、時間の経過とともに徐々に硬化するポリシロキサンを転写材料として用いる室温 (Room Temperature : 以下 RT と略す) -NIL プロセスを提案した。そして RT-NIL により、本研究で作製したダイヤモンドモールドの有用性について検討し、さらに、その作製したダイヤモンドモールドを用いて、ダイヤモンド薄膜のナノパターン形成について検討した。

2. 実験方法および装置

2.1 電子ビームレジストおよび転写材料として用いるポリシロキサン

一般的に半導体微細加工に用いられる電子ビームレジストおよび熱サイクル NIL の転写材料として用いられる PMMA (Poly methyl methacrylate) の構造式と、本研究で電子ビームレジストおよび転写材料として用いたポリシロキサンの構造式を Fig. 2 に示す。PMMA は、Fig. 2 (a) に示すように炭素と

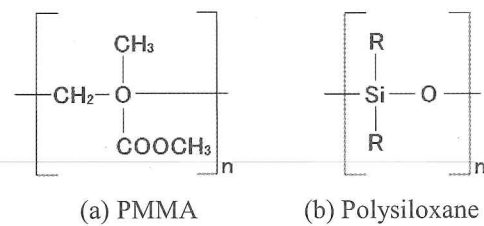


Fig. 2 Structural formulas of EB mask and RT-imprint resist materials

アルキル基から構成されているため、酸素イオンビームに対するエッチング耐性を持たない。そこで本研究では、ダイヤモンドモールドの作製プロセスに用いる電子ビームレジストおよび RT-NIL の室温転写材料としても、ポリシロキサン (HSG-R7-13, 日立化成工業 (株)) を用いた。Fig. 3 にポリシロキサンの残膜率の電子ビームドーズ量依存性を示す。図に示すように、ポリシロキサンは、電子ビームに対してネガ型の露光特性を示し、PMMA とほぼ同じ感度 ($5.9 \times 10^{-5} \text{ C/cm}^2$) をもつことが分かった⁸⁾。

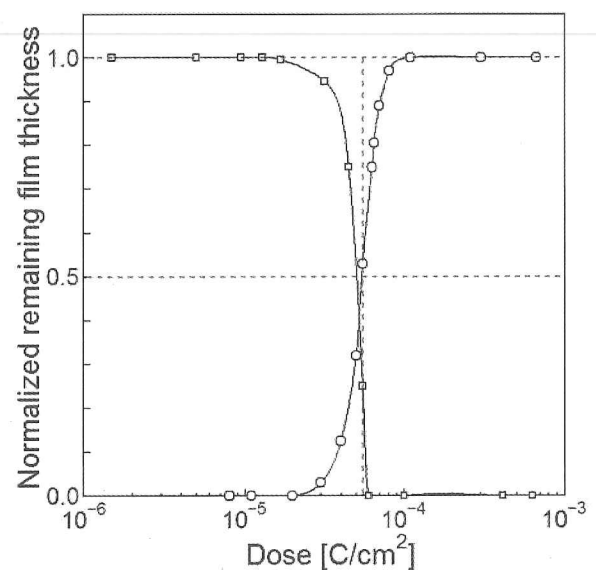


Fig. 3 The dependence of the remaining film thickness of polysiloxane and PMMA on the electron beam dose. [○, Polysiloxane; □, PMMA]

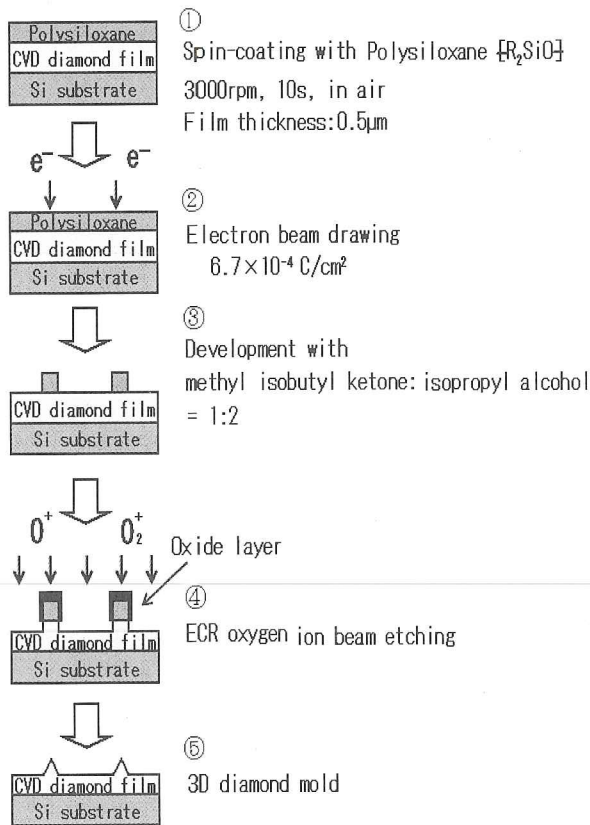


Fig. 5 The nanopatterning process of a CVD diamond film to fabricate a 3D-diamond mold using polysiloxane that we developed

薄膜上にポリシロキサンのナノマスクパターンを形成した。その後、試料は、本研究で見出した最適加工条件で ECR 酸素イオンビーム加工し、三次元ダイヤモンドナノモールドを作製した。また、作製したモールドの形状を SEM により観察した。このように、本研究で開発した作製プロセスは、電子ビームレジストとして用いるポリシロキサンをそのままマスクとしてダイヤモンドのナノ加工を行うことができるのが特長である。このため、Fig. 6 に示す金属マスクを用いるリフトオフ法のステップ④・⑤を省くことでプロセスの短縮とスパッタリングによる残渣（金属マスクの再付着）の影響がないなどの利点がある。

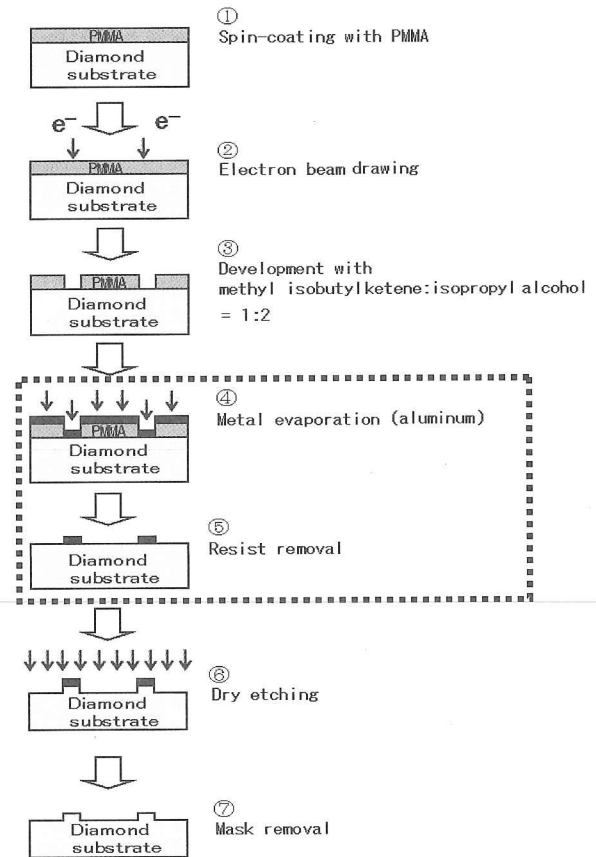


Fig. 6 The micropatterning process of diamond in lift-off method

2.6 試作したコンパクトインプリント装置

これまでに開発されている NIL 装置は、駆動力として油圧式のインプリント装置⁵⁾ (幅 85 cm, 奥行き 85 cm, 高さ 180 cm) を用いているため、装置が大型となり高価になる。また、インプリント方向である Z 軸のみの制御しか行うことができない。そこで本研究では、駆動力として DC コアレスモータ (SOM-B13E, シグマ光機 (株)) を用いることで、XYZ 軸の位置制御可能なコンパクトインプリント装置の試作を行った。この装置は、幅 30 cm, 奥行き 30 cm, 高さ 48 cm であり、油圧式のインプリント装置の約 1/3 とコンパクト化を実現した。本研究で試作したコンパクトインプリントシステムの仕様を Table 3 に示し、その概略を Fig. 7 に示す。

Table 3 Apparatus specifications of compact imprint apparatus

Size	Width 30 cm; Length 30 cm; Height 48 cm
Resolving power	1 μm/pulse
Operating method	Digital position control via a computer (Fully automatic step and repeat)
Pressure measurement	Load cell
Load method	Direct current (DC) coreless motor
XYZ axis speed	1.5~100 μm/s

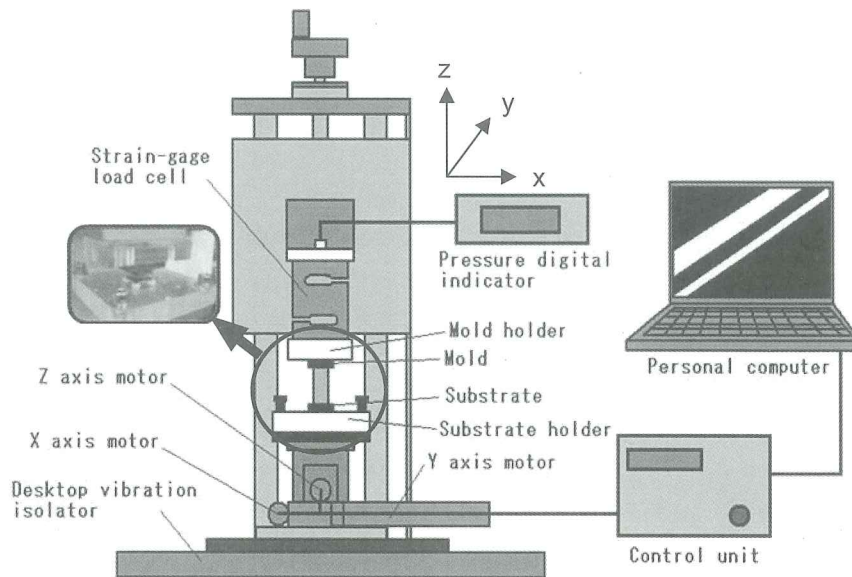


Fig. 7 The schematic diagram of compact imprint apparatus system that we developed

圧力センサは、一般にピエゾ素子が用いられているが、測定結果が温度変化によって大きく変化してしまうなどの欠点がある¹⁰⁾。そこで本研究では、歪みを電気信号に変化させ圧力測定を行うストレインゲージ式ロードセル (LC1205-K020, エー・アンド・デイ株式会社) を用いた。インプリント中は、わずかな揺れも伝達させないようにインプリント装置の下部に空気ばね式除振装置 (AVT-0405N, 明立精機株式会社) を取り付けた。XYZ 軸の位置決めは、コンピュータからコントロールユニットへパルス信号を送り、DC コアレスモータに信号を伝えることで制御を行っている。また、この装置は、コンピュータにより XYZ 軸それぞれ独立した操作が行えるなどの位置制御が可能のため、これまでの装置に比べ、高精度な転写パターンが得られる可能性がある。さらに、全自動ステップ&リピート方式にも対応でき、高スループットの実現が可能である。

2.7 インプリント深さの圧力依存性

インプリント技術は、凹凸パターンが形成されたモールドを転写材料が塗布された基板に押し当て凹凸パターンを転写する技術であるため、モールドを押しあわせる圧力が重要となる。そこで、本研究で作製したダイヤモンドモールドを用いた室温インプリントによるインプリント深さの圧力依存性について検討した。最適インプリント条件を得るための室温インプリントプロセスを Fig. 8 に示す。まず、シリコン基板を有機溶剤アセトン、純水の順に超音波洗浄した。次に、膜厚 $0.5 \mu\text{m}$ が得られるように転写材料であるポリシロキサンをシリコン基板上に回転数 3000 rpm, 回転時間 10 sec でスピンコート

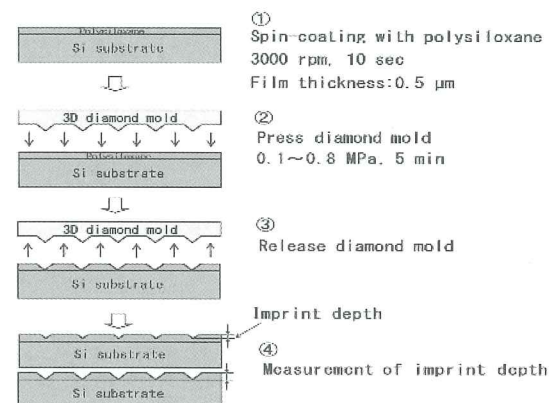


Fig. 8 RT-imprint process to obtain optimum imprint pressure

した。そして、本研究で作製した高さ $1 \mu\text{m}$, 幅 $5 \mu\text{m}$ の四角ドットのダイヤモンドマイクロモールドを用いて、作製した試料にインプリント時間 5 min, インプリント圧力 $0.1 \text{ MPa} \sim 0.8 \text{ MPa}$ まで 0.1 MPa 刻みでインプリントを行った。その後、圧力の違いにより得られた転写パターンを金属顕微鏡 (BX51M, オリンパス (株)) を用いて観察し、ダイヤモンド触針式の段差測定機を用いてインプリント深さの測定を行った。また、その結果から最適インプリント条件を見出した。

2.8 室温ナノインプリントリソグラフィによるダイヤモンド薄膜のナノパターン形成

一般的な熱サイクル NIL による加工プロセスを Fig. 9 に示し、本研究で開発したダイヤモンドモールド RT-NIL によるダイヤモンドのナノパターン形成プロセスを Fig. 10 に示す。

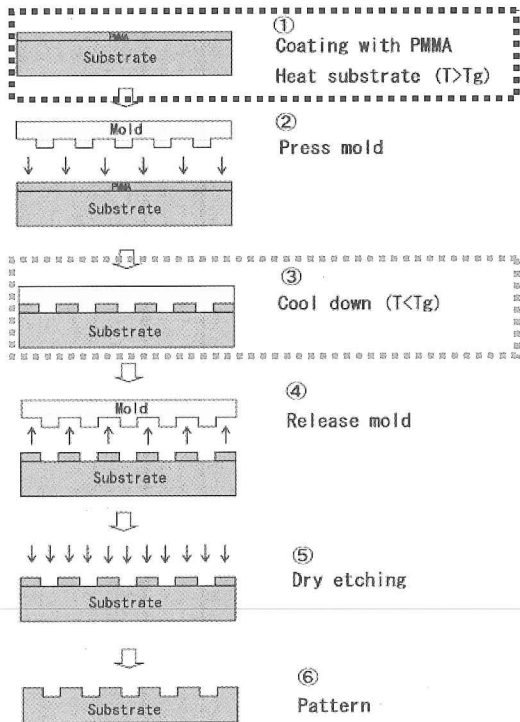


Fig. 9 The nanopatterning process of a substrate by thermal cycle NIL

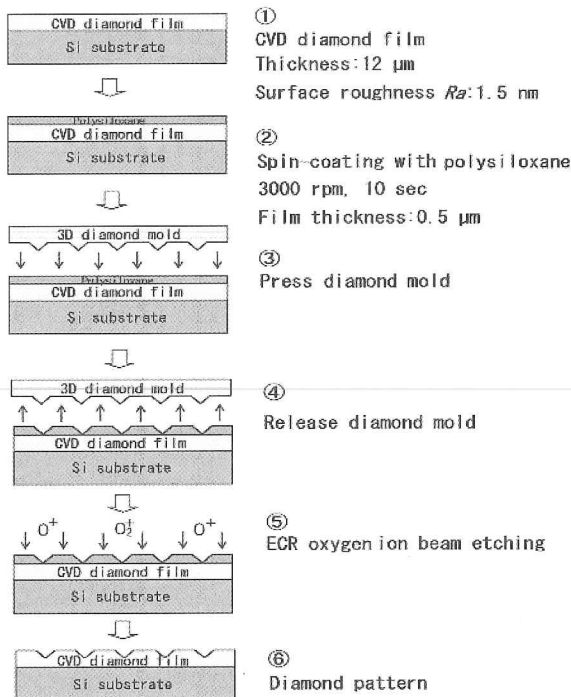


Fig. 10 The micropatterning process of a CVD diamond film by RT-NIL that we developed

Fig. 9 に示す一般的な熱サイクルNILプロセスは、PMMA が塗布された基板をガラス転移温度 (110°C) 以上にすることで PMMA を流動化させ、そこにモールドを押し当てる。その後、温度をガラス転移温度以下に下げることで固化させ、離型させること

でモールドパターン形状を PMMA に転写する。さらにこれをドライエッチングすることで基板に所望のパターンを形成する技術である。そのため、昇降温変化によりモールドが膨張・収縮することによる転写パターン精度の低下、加熱温度の影響で密着力が増すことによる離型性の悪化、加熱・冷却のためのプロセスが長いなどの問題がある⁷⁾。そこで本研究では、これらの問題を解決するために、Fig. 10 に示すダイヤモンドモールド RT-NIL によるダイヤモンドのナノパターン形成プロセスを提案した。このプロセスは、転写材料として室温で高粘性であり空気中の水分と反応することで時間の経過とともに徐々に硬化するポリシロキサンを用いることで、プロセス中で温度を上げることなくダイヤモンドモールドを基板に押し当て、ポリシロキサンが硬化後モールドを離型することで、モールドパターンをポリシロキサン膜に転写できる。その後、転写パターンをそのままマスクとして ECR 酸素イオンビーム加工を行うことでダイヤモンドナノパターンを形成する。このため、本研究で開発したプロセスは、Fig. 9 に示す熱サイクルNILのステップ①・③にある加熱・冷却のプロセスを短縮でき、また精度よくインプリントできる可能性がある。また、さらなる高スループット化が実現できる。

本研究で作製した三次元ダイヤモンドナノモールドの有用性について検討するため、RT-NIL によるダイヤモンド薄膜のナノパターン形成を行った。まず、ダイヤモンド薄膜を有機溶剤アセトン、純水の順に超音波洗浄した。膜厚 0.5 μm が得られるように転写材料であるポリシロキサンをダイヤモンド薄膜上に回転数 3000 rpm、回転時間 10 sec でスピコートした。次に、本研究で作製した三次元ダイヤモンドナノモールドを用いて、作製した試料に最適インプリント条件でインプリントを行い、ダイヤモンド薄膜上に転写パターンを形成した。そして、本研究で見出した最適加工条件で ECR 酸素イオンビーム加工を行った。その後、形成したダイヤモンドナノパターンを SEM 観察し、パターン形状の測定も行った。

3. 実験結果および考察

3.1 ダイヤモンド薄膜の加工速度およびポリシロキサン膜の ECR 酸素イオンビームエッチング耐性

ECR 酸素イオンビームによるダイヤモンド薄膜およびポリシロキサン膜の加工速度 (1 時間あたりの加工量)、選択比 (加工物に対してマスクがもつエッチング耐性) のイオンエネルギー依存性を Fig. 11 に示す。

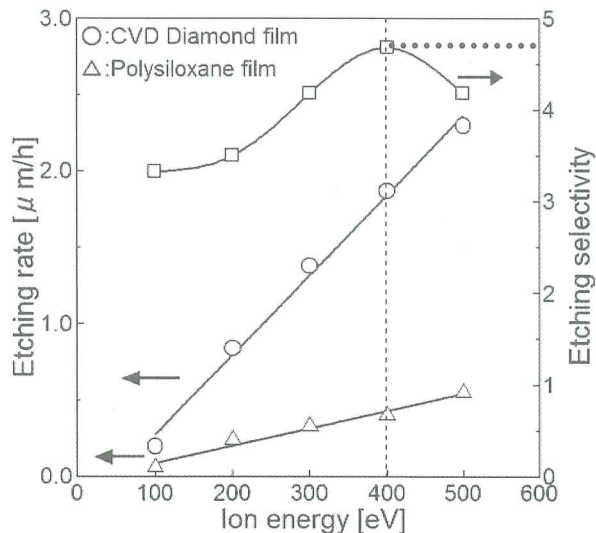


Fig. 11 The dependence of the etching rate, and the etching selectivity, of CVD diamond film and polysiloxane film on ion energy

$$\text{Etching selectivity} = \frac{\text{Etching rate of diamond film}}{\text{Etching rate of polysiloxane film}} \dots (3.1)$$

図に示すように、ダイヤモンド薄膜 (○) およびポリシロキサン膜 (△) の加工速度は、イオンエネルギーの増加とともにそれぞれほぼ線形的に増加した。また、式 (3.1) で定義するダイヤモンド薄膜に対するポリシロキサン膜の選択比 (□) は、イオンエネルギー400 eV のとき最大4.7が得られた。この結果から、ポリシロキサン膜は、ECR 酸素イオンビームに対して耐性があることがわかった。一方、ダイヤモンド薄膜の ECR 酸素イオンビーム加工は、物理的スパッタリングの作用だけでなく、揮発性生成物 (CO, CO₂) を作る化学的スパッタリングの作用も同時に行われるため、ポリシロキサン膜の加工速度に比べ速くなったと考えられる。また、イオンエネルギー400 eV のとき最大選択比4.7が得られた理由として、イオンエネルギーが増すに従って、物理的スパッタリングに加え、酸素イオンと加工物との間の化学反応およびイオンアシストによる酸素ガスと、加工物との間の化学反応による化学的スパッタリングが促進したためであると考えられる。さらに、ECR イオンビーム加工による実験結果は、リアクティブなガスである酸素でも長時間安定したビームが得られるため、高い再現性が得られることが分かった。以上の結果から、ECR 酸素イオンビームによるダイヤモンド薄膜の最適加工条件をイオンエネルギー400 eV とした。

3.2 ECR 酸素イオンビーム加工前後のダイヤモンド薄膜の表面粗さ評価

ECR 酸素イオンビームによりダイヤモンド薄膜

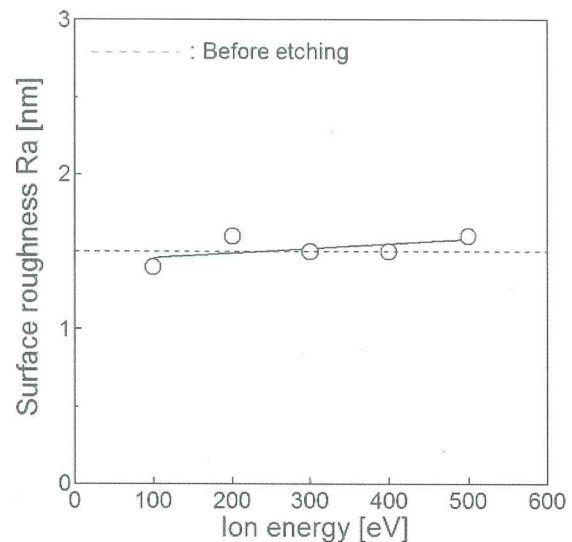


Fig. 12 The dependence of surface roughness of a CVD diamond films

を500 nm加工したときの電子線三次元粗さ解析による表面粗さのイオンエネルギー依存性を Fig. 12 に示す。ECR 酸素プラズマを用いたダイヤモンド薄膜の加工プロセスにおいて、加工後の表面粗さは、加工前と比べ約10倍粗れることが分かっている¹¹⁾。これに比べ、ECR 酸素イオンビーム加工後のダイヤモンド薄膜の表面粗さは、図に示すように、加工前と比べほとんど変化せず、 $Ra = 1.5$ nm でほぼ一定であることが分かった。これらの理由として、酸素プラズマ加工は、プラズマ粒子の運動方向が不規則であり、試料表面に不均一に衝突するため表面粗さが悪化したと考えられる。一方、酸素イオンビーム加工は、イオンの運動方向は一定であり、試料表面に均一に衝突することから表面粗さがほとんど変化しなかったと考えられる。

3.3 三次元ダイヤモンドナノモールドの作製

本研究で開発したプロセスで作製した三次元ダイヤモンドナノモールドの円錐ドットパターン全体のSEM像を Fig. 13 (a) に、またその拡大を (b) に示す。図に示すように、直径900, 800, 700, 600, 500 nm, 高さ約500 nmで、2 μmピッチの三次元ダイヤモンドナノパターンが作製できた。このようにダイヤモンドモールドのドットパターンが三次元形状となったプロセスについて考察する。本研究で作製したドットパターンは、Fig. 14 に示すように、電子ビーム描画した試料に酸素イオンビームを照射するとマスクパターンの端にファセットが形成され、平面よりも角度のある面の方が、加工試料表面の原子数密度が多くなることから加工速度が速くなるため¹²⁾、加工の進行とともに先鋭化したと考えられる。

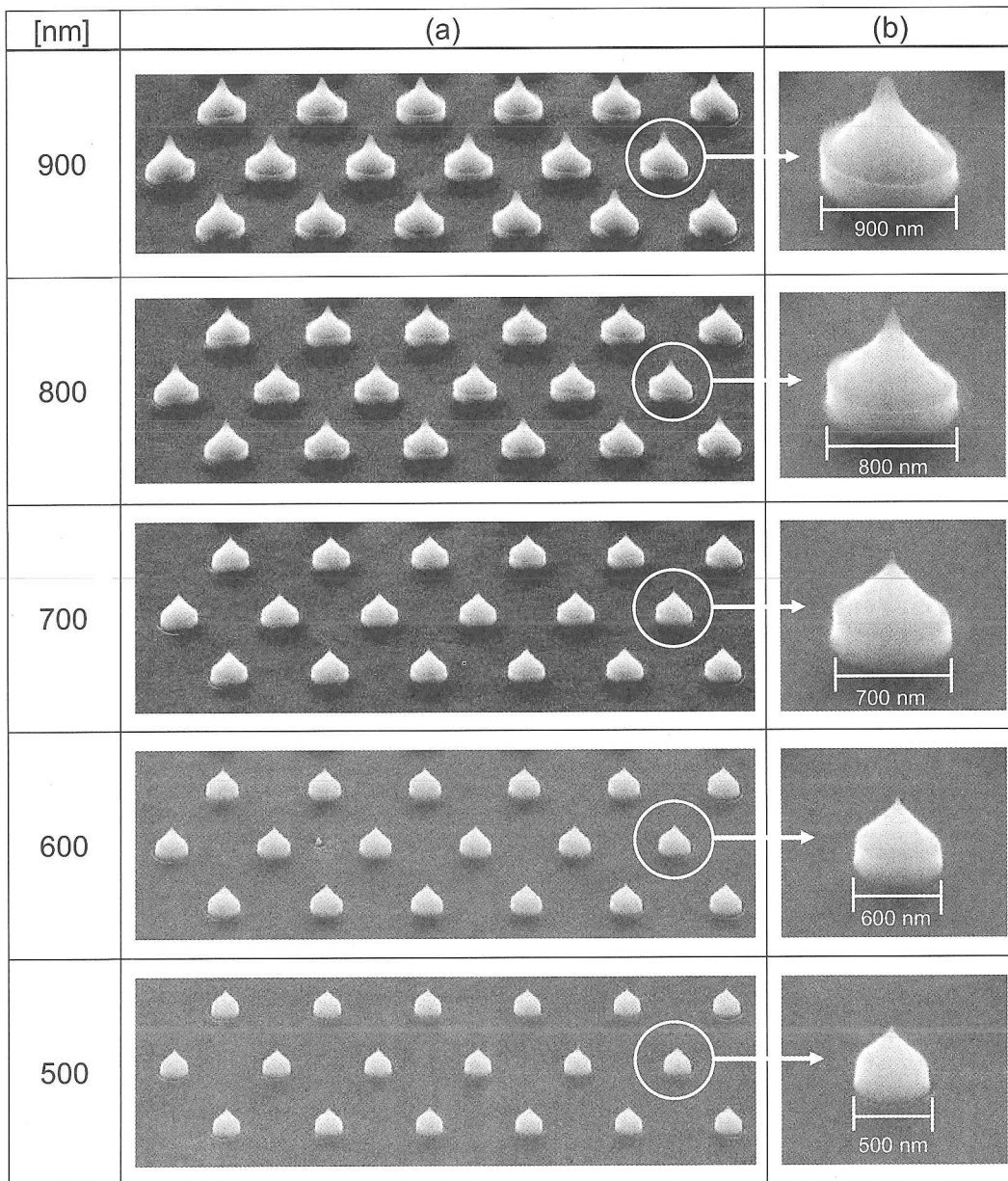


Fig. 13 SEM photographs of the 3D-diamond molds of cone dots

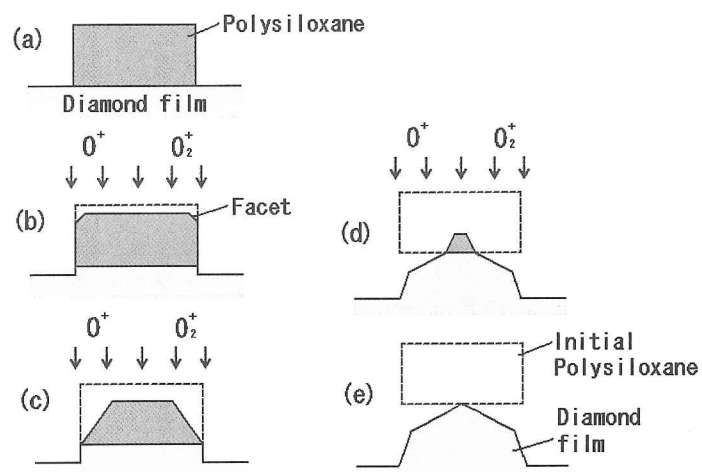


Fig. 14 The nanofabrication process of 3D-diamond molds during ECR oxygen ion beam etching

3.4 インプリント深さの圧力依存性

室温インプリントにより得られた転写パターンを段差測定機を用いて測定した結果を Fig. 15 に示す。これより、インプリント深さは、0.5 MPa までは圧力が増すにしたがって線形的に増加し、0.5 MPa 以上では基板まで転写されていることが確認できた。ここで、インプリントに用いたダイヤモンドモールド、一例としてインプリント圧力 0.2 MPa、0.5 MPa の転写パターンとそれぞれの断面プロファイルを Fig. 16 に示す。ポリシロキサン膜の転写パターンは、0.5 MPa のときに精度よく転写されている（モールドパターン形状がポリシロキサン膜にそのまま転写され、かつ基板まで達している）ことが確認できた。以上の結果から、最適インプリント条件を 0.5 MPa とした。また、本研究で作製したダイヤモンドモールドは、100 回以上のインプリントでも精度良い転写パターンが得られ、その有用性が確認できた。

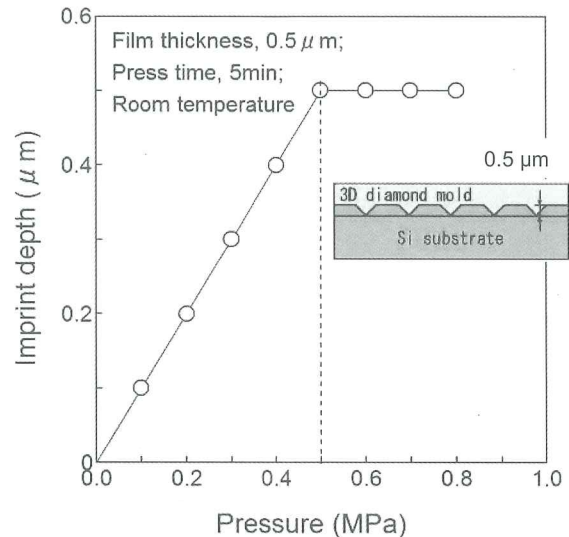
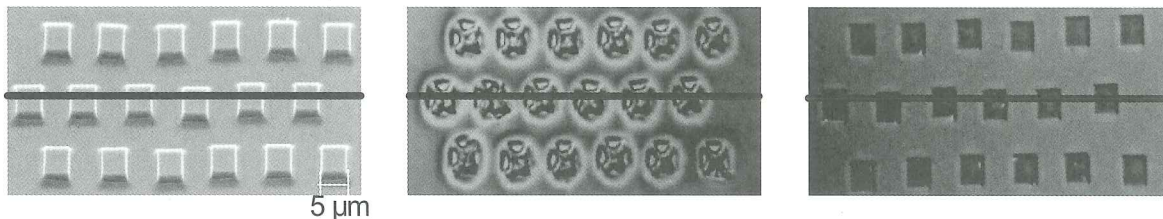


Fig. 15 The dependence of the imprint depth of polysiloxane film on imprinting pressure

(1) Photographs



(2) Cross-sectional profiles

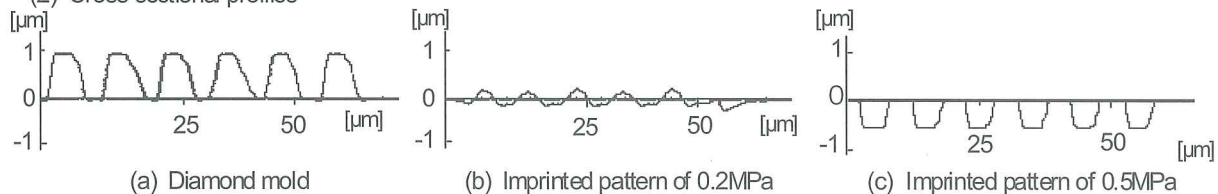


Fig. 16 SEM and metallographic microscope photographs of diamond mold (a), imprinted polysiloxane patterns of 0.2 MPa (b) and 0.5 MPa (c) respectively

3.5 室温ナノインプリントリソグラフィによる ダイヤモンド薄膜のナノパターン形成

本研究で作製した直径 3 μm および 500 nm の凸型円錐ドットパターンの三次元ダイヤモンドモールドを Fig. 17 (1) に示し、そのモールドを用いて RT-NIL により得られたポリシロキサンの転写パターンを (2) に示す。また、その ECR 酸素イオンビーム加工後のダイヤモンドパターンの SEM 写真および断面プロファイルを (3) に示す。図に示すように、ダイヤモンドパターンの加工深さ (Fig. 17 (3) に示す矢印 1, 2 で示す点の差: $d = 2 - 1$) は、 $d_A = 410$ nm, $d_B = 88$ nm となり、直径 3 μm の凸型三次元ダイヤモンドモールドによる RT-NIL では、モールドパターン形状とよく一致した直径約 3 μm の凹型三次元ダイヤモンドパターンが形成できた。本研究で行っ

た RT-NIL では、直径 500 nm 円錐ドットパターンによる加工深さが、直径 3 μm 円錐ドットパターンによる加工深さに比べ、約 1/4 となった。そこで、この原因について検討した。モールドパターン形状が直径 3 μm の場合、インプリントを行うと基板まで転写されたと考えられる。このため、ECR 酸素イオンビーム加工を行った結果、Fig. 18 (a) に示すように加工開始直後からダイヤモンドが加工され、加工深さが得られた。しかし、モールドパターン形状が直径 500 nm の場合、基板まで転写されなかったと考えられる。このため、マスクであるポリシロキサンが残ってしまい、Fig. 18 (b) に示すように加工開始直後はポリシロキサンを加工し、ポリシロキサンが無くなった箇所からダイヤモンドが加工される。したがって、同じ時間加工を行っても十分な加工

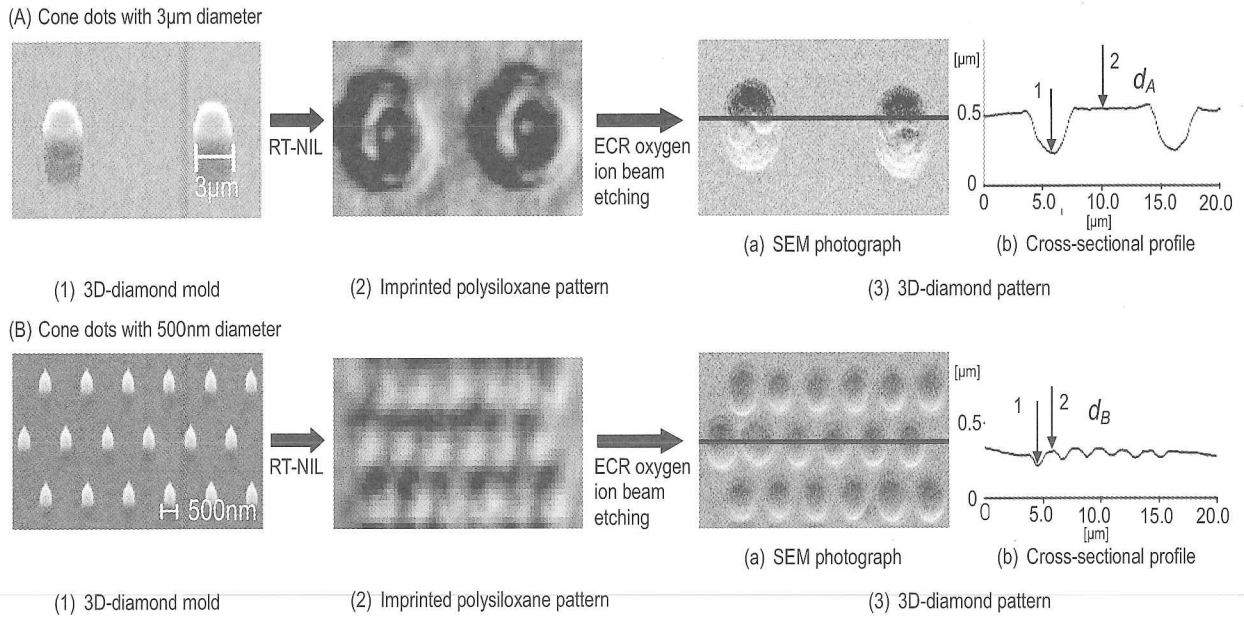
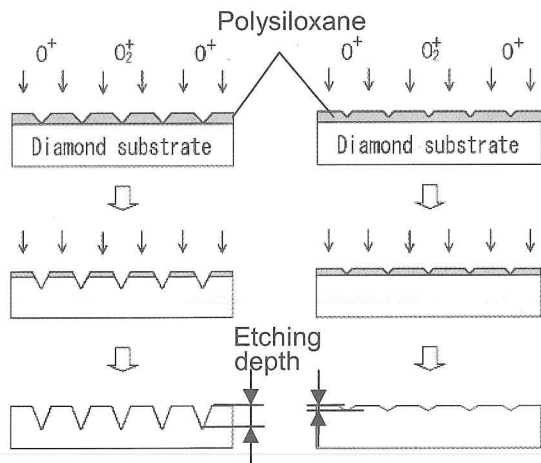


Fig. 17 Metallographic microscope and SEM photographs of [cone dots with 3µm diameter (A) and 500 nm diameter (B)] 3D-diamond mold (1), imprinted polysiloxane pattern (2) and 3D-diamond pattern (3)



(a) Imprinted by substrate (b) No imprinted by substrate
Fig. 18 Nanopatterning process of diamond films

深さが得られなかったと考えられる。このように、加工深さが得られなかったのは、直径 500 nm 円錐ドットパターンの転写パターンが、直径 3 µm の転写パターンに比べ、基板まで転写されていなかったことが原因であると考えられる。以上の結果から、精度良い転写パターンを形成するためには、モールドパターン形状が最も重要であることがわかった。

4. おわりに

本研究で開発したポリシロキサンを用いた ECR 酸素イオンビーム加工法によるダイヤモンドモールドの作製プロセスで三次元ダイヤモンドナノモールドを作製し、その有用性について検討した。さらに、

その作製したダイヤモンドモールドを用いた RT-NIL によるダイヤモンドのナノパターン形成を行った結果、以下のことが得られた。

- 1) ダイヤモンド薄膜をモールドおよび加工試料として用い、さらに電子ビームレジストおよび転写材料として用いたポリシロキサンをマスクとしても用いることで従来のリフトオフ技術に代わる新たなダイヤモンドのナノ加工技術を見出した。
- 2) ダイヤモンド薄膜に対するポリシロキサン膜の選択比は、イオンエネルギー 400 eV で最大 4.7 が得られ、その最適加工条件で最小直径 500 nm で高さ約 500 nm の円錐ドットパターンの三次元ダイヤモンドナノモールドを作製できた。
- 3) RT-NIL の最適インプリント条件は、インプリント圧力 0.5 MPa であることが分かった。
- 4) 三次元ダイヤモンドモールドは、100 回以上のインプリント後も精度良い転写パターンが得られ、その有用性が確認できた。
- 5) 三次元ダイヤモンドナノモールドを用いた RT-NIL により、最小直径約 500 nm で、深さ 88 nm の凹型円錐三次元ダイヤモンドナノパターンが形成できた。

謝辞：本研究は、平成 20 年度豊橋技術科学大学高専連携プロジェクトに参画して得られたものである。また、財団法人金型技術振興財団の研究助成によるものである。

参考文献：

- 1) S. Matsui, T. Kato, J. Fujita, M. Komuro, K. Kanda and Y. Haruyama : Three-dimensional nanostructure fabrication by focused-ion-beam chemical vapor deposition, J. Vac. Sci. & Technol., Vol.18, pp.3181-3184, 2000.
- 2) S. Kiyohara, T. Motoishi and K. Mori : Nanopatterning of diamond films with composite oxide mask metal octylates in Electron Beam Lithography, J. Materials Sci. Materials in Electronics, Vol.15, pp.99-102, 2004.
- 3) 佐藤健, 宮口孝司, 坂井朋之 : MEMS プロセス技術の開発研究 (第3報), 新潟県工業技術総合研究所工業技術研究報告, Vol.36, 2007.
- 4) M. Mehregany, K. J. Gabriel and W. S. N. Trimmer : Integrated Fabrication of Polysilicon Mechanisms, IEEE Trans. Electron Devices, Vol.35, pp.719-723, 1988.
- 5) S. Y. Chou, P. R. Krauss and P. J. Renstrom : Imprint of sub-25 nm vias and trenches in polymer, Appl. Phys. Lett., Vol.67, pp.3114-3116, 1995.
- 6) A. Hokazono, K. Tsugawa, H. Umezana, K. Kitatani and H. Kawarada : Surface p-channel metal-oxide-semiconductor field effect transistors fabricated on hydrogen terminated (001) surfaces of diamond, Solid State Electronics, Vol.43 pp.1465-1471, 1999.
- 7) S. Kiyohara, M. Fujiwara, F. Matsubayashi and K. Mori : Diamond nanopatterns fabricated by room-temperature nanoimprinting technology with diamond molds using polysiloxane, J. Materials Sci. Materials in Electronics, Vol.17, pp.199-203, 2006.
- 8) S. Kiyohara, T. Kashiwagi, H. Takikawa, Y. Kurashima, Y. Taguchi and Y. Sugiyama : Nanofabrication of Three-Dimensional Imprint Diamond Molds by ECR Oxygen Ion Beams using Polysiloxane, e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, Vol.7, pp.772-776, 2009.
- 9) S. Kiyohara and I. Miyamoto : Reactive Ion Beam Machining of Diamond using an ECR-type Oxygen Source, Nanotechnology, Vol.7, pp.270-274, 1996.
- 10) 山口 史郎, 大立目 寛明, 池内 公, 大谷 昭二, 宮城 幸一郎, 谷口 晃 : 光共振器のためのサブナノメートルコントロール, 電子情報通信学会総合大会講演論文集, p.218, 1995.
- 11) S. Kiyohara, Y. Yagi and K. Mori : Plasma Etching of CVD Diamond Films using an ECR-type Oxygen Source, Nanotechnology, Vol.10, pp.385-388, 1999.
- 12) I. Miyamoto : 6.9 Ion beam forming, Nanotechnology - Integrated Processing Systems for Ultra-Precision and Ultra-Fine Products (Edited by N. Taniguchi), Oxford University Press, pp.279-297, 1996.

(2009. 11. 5 受付)

NANOFABRICATION OF DIAMOND FILMS BY ROOM-TEMPERATURE NANOIMPRINT LITHOGRAPHY USING DIAMOND MOLDS

Shuji KIYOHARA, Tomoyuki KASHIWAGI, Hirofumi TAKIKAWA, Yuichi KURASHIMA,
Yoshio TAGUCHI, Yoshinari SUGIYAMA and Yukiko OMATA

ABSTRACT : Nanofabrication of 3D-diamond molds and 3D-diamond patterns in room-temperature (RT) nanoimprint lithography (NIL) with 3D-diamond molds using polysiloxane $[-R_2SiO-]_n$ as electron beam (EB) mask and RT-imprint resist material were investigated. The maximum electron cyclotron resonance (ECR) oxygen ion beam etching selectivity (diamond/polysiloxane films) of 4.7 was obtained. The diamond molds of cone dots with minimum 500 nm diameter using RT- NIL process were fabricated with polysiloxane mask in EB lithography technology. The resulting 3D-diamond patterns of concave cone dots with 500 nm diameter after ECR oxygen ion beam etching were fabricated. The resulting diameter of diamond patterns was in good agreement with that of the 3D-diamond mold.

Key Words : *Diamond film, Nanofabrication, ECR ion beam etching, Room-temperature imprint Lithography, Diamond mold*