

나노 복화(複畵)공정의 역방향 적층법을 이용한 직접적 나노패턴 생성에 관한 연구

박상후*, 임태우*, 양동열#, 공홍진**

Directly Nano-precision Feature Patterning on Thin Metal Layer using Top-down Building Approach in nRP Process

Sang Hu Park*, Tae Woo Lim*, Dong-Yol Yang#, Hong Jin Kong**

ABSTRACT

In this study, a new process to pattern directly on a thin metal layer using improved nano replication printing (nRP) process is suggested to evaluate the possibilities of fabricating a stamp for nano-imprinting. In the nRP process, any figure can be replicated from a bitmap figure file in the range of several micrometers with nano-scaled details. In the process, liquid-state resins are polymerized by two-photon absorption which is induced by femto-second laser. A thin gold layer was sputtered on a glass plate and then, designed patterns or figures were developed on the gold layer by newly developed top-down building approach. Generally, stamps for nano-imprinting have been fabricated by using the costly electron-beam lithography process combined with a reactive ion-etching process. Through this study, the effectiveness of the improved nRP process is evaluated to make a stamp with the resolution of around 200nm with reduced cost.

Key Words : Femto-second Laser(펨토초 레이저), Two-photon Polymerization(이광자흡수 경화), Nano Replication Printing Process(nRP, 나노 복화공정), Stamp(스탬프), Top-down Building(역방향 적층)

1. 서론

최근 나노 관련 산업의 발달로 새로운 개념의 제품의 등장과 기존 첨단산업인 반도체, 정보통신, 바이오산업 등에서 기존의 공정을 대체할 수 있는 신 공정기술의 개발이 활발하게 진행되고 있다. 이러한 신 공정기술의 핵심으로는 저비용, 대량생산이 가능한 기술에 있으며 대표적으로는 나노 임프린팅 (nano imprinting)¹ 과 자기정렬 고분자를 이

용한 소프트 리소그래피 (soft lithography)² 등의 다양한 기술들이 개발되었으며, 최근까지 다양한 응용공정들³⁻⁶ 이 개발되고 있다. 또한 나노, 마이크로 관련 기술의 발달로 인하여 기능성 부품이나 제품이 점차 소형화, 집적화 되어 그 활용범위가 점차 확대되고 있으며, 선진국을 중심으로 국가적인 기반기술로 육성하고 있다. 현재까지 상용화된 초소형 구조물 제작에 관한 공정기술의 대부분은 반도체 공정을 기반으로 하는 마이크로/나노머시

접수일: 2003년 11월 11일; 게재승인일: 2004년 3월 12일

* 한국과학기술원 기계공학과 대학원

교신저자, 한국과학기술원 기계공학과

Email : dyyang@kaist.ac.kr, Tel. (042)869-3214

** 한국과학기술원 물리학과

닝 기술 (MEMS/NEMS)에 중심을 두고 있다. 이러한 기술들은 지금까지 초소형 제품의 개발에 상당한 역할을 해 왔으며 자동차 에어백 센서, 유압센서 등의 측정산업에서 반도체, 디스플레이 산업까지 다양한 적용사례를 만들었다. 그러나 공정의 특성상 일반적으로 마스크 (mask)를 이용한 패터닝 (patterning)과 에칭 (etching)공정을 반복적으로 사용하기 때문에 재료의 손실이 크다는 단점과 나노급 정밀도 구현이 다소 어려운 문제점이 있다. 그리고 복잡한 형상이나 완전한 자유표면을 가지는 3 차원 형상을 제작하기에는 상당한 어려움이 존재한다.

최근 다양한 연구들을 통하여 이러한 단점을 극복하기 위하여 직접적으로 패터를 스탬프 (stamp)로 찍어서 나노 구조물을 제작하는 나노 임프린팅 공정, 제작된 정밀한 마스터 (master) 금형을 PDMS (Poly-dimethyl siloxane)와 같은 폴리머로 복제하여 사용하고 수명이 다 되었을 때는 다시 마스트 금형에서 복제하여 사용하는 소프트 리소그래피 공정들이 개발되었다. 그러나 이러한 공정들이 원활하게 활용되기 위해서는 나노급 정밀도를 가지는 스탬프와 마스트 금형 제작을 저비용으로 하는 것이 무엇보다 필요하다. 현재까지는 전자빔 리소그래피 공정 (e-beam lithography)을 이용하여 대부분 제작하고 있으며 정밀도는 매우 우수하지만 공정비용이 고가인 단점이 있다.

본 연구에서는 나노 복화공정 (nano replication printing process)⁷을 이용하여 마스크 없이 직접적으로 금속박막에 패터닝을 할 수 있는 방법을 제시하였다. 제시된 방법을 이용하면 200 nm 수준의 정밀도를 가지는 패터를 제작할 수 있으며 나노 임프린팅을 위한 스탬프 제작 및 마스트 금형 제작에 활용이 가능하다. 또한, 최근 연구⁸에 의하면 펨토초 레이저 (femto-second laser)에 의한 광경화의 정밀도가 120nm 수준까지 나타났기 때문에 본 연구에서 제시한 정밀도도 향후 더욱 향상될 수 있을 것으로 사료된다. 본 연구에서 사용된 나노 복화공정은 펨토초 레이저의 이광자 흡수 현상 (two-photon absorbed polymerization)⁹⁻¹³을 이용하여 2 차원의 비트맵 (bitmap) 그림파일을 직접적으로 나노급 정밀도를 가지는 형상으로 구현할 수 있다. 따라서, 전자빔 리소그래피를 이용한 공정에 비하여 저렴한 가격으로 스탬프 제작이 가능할 것으로 사료된다. 연구범위로는 나노 복화공정을 개선하

여 나노 임프린트용 스탬프 제작하는 방법을 제시하고 마스크 없이 직접적으로 나노 패터닝 형상을 금속박막 위에 생성하는 방법을 제시하였으며, 나노 패터닝 형상으로는 공정의 성능을 검토하기 위하여 복잡한 형상을 가지는 영국지도를 사용하였다. 그리고 금속박막으로는 금 (Au)을 사용하였다.

2. 나노 복화공정 장치구성 및 방법

2.1 나노 복화공정 장치구성

Fig. 1 (a)에는 본 연구에서 개발한 장치의 전체 구성에 대하여 나타내었는데, 레이저는 펨토초 펄스를 갖는 티타늄-사파이어 레이저 (Ti-Sapphire mode-locked laser)를 사용하였으며 작동주파수는 80MHz, 펄스 폭은 80fs 이며 파장은 780nm 이다. 24nm 분해능을 가지는 x-y 스캐너 (scanner, Galvano mirror)를 사용하여 레이저의 x, y 방향을 제어하고, 100nm 분해능을 가지는 피에조 파이프의 z 축 스테이지를 장착하여 z 축 방향을 제어하도록 하였다. 그리고 셔터와 스캐너 그리고 z 축 스테이지는 자체 개발된 컨트롤 프로그램에 의하여 운용되고 레이저 빔의 거동을 시각적으로 확인하기 위하여 고 배율 렌즈가 부착된 카메라를 이용하여 모니터링하였다.

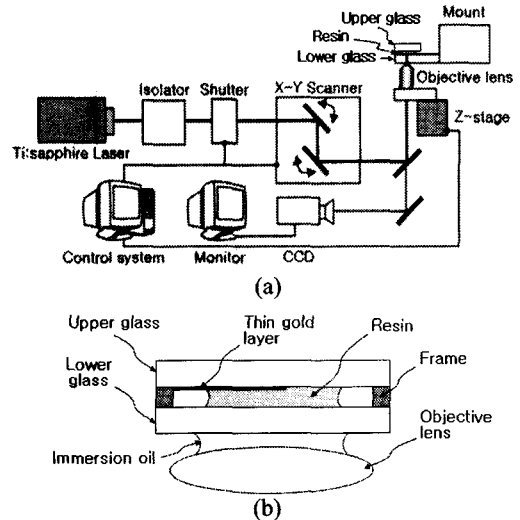


Fig. 1 (a) Schematic diagram of nano replication printing system and (b) detailed diagram of nano-precise feature patterning parts.

Fig. 1 (b)에는 본 연구에서 새롭게 제안한 위에서 아래로 적층을 하도록 한 역방향 적층(top-down building)의 나노 패터닝부를 확대하여 자세하게 나타내었다. Fig. 1 (b)에 도시된 나노 패터닝 생성부는 0.1mm 두께의 상, 하판 유리판 사이에 광경화성 수지를 넣고, 양쪽 가장자리에 0.5mm 두께의 양면테이프를 프레임을 만들었다. 그리고 상판 유리판에는 반쪽 부분만 50nm 로 금을 증착하였다. 또한, 대물렌즈와 하판 유리판 사이에 유리와 동일한 굴절률을 가지는 오일을 사용하여 레이저 광의 왜곡을 방지하였다. Table 1 에는 시스템의 주요 부품에 대한 사양을 나타내었다.

Table 1 Principal specifications of nano replication printing system.

ITEMS	MODEL	MAKER
fs Laser	Mai Tai	Spectra-Physics
Isolator	BB8-51	Electro-Optic Tech
Galvano mirror	Scanjet 2	Scanlab
Shutter	6800HP	Cambridge Tech. Inc.
Z-stage	P-762.ZL	PI
X/Y stage	X/Y stage	Namil
Objective lens	100X NA 1.2	China
Working plate	Cover glass	Fischer

개략적인 시스템의 작동원리에 대하여 살펴보면, 티타늄-사파이어에서 발진된 레이저 광은 아이솔레이트와 셔터를 지나서 입력 데이터에 따라 x, y 축 위치를 스캐너 (Galvano mirror)에 의하여 제어하게 된다. 이 때 레이저 광의 초점은 z 축 스테이지를 조절하여 고배율 렌즈가 부착된 카메라를 통하여 시각적으로 확인하면서 상판유리에 생성되도록 하였다. 그리고 형상제작을 위한 광경화 수지는 우레탄 아크릴레이트 (urethan acrylate)계 수지로 실험실 차원에서 제작된 것을 사용하였으며, 이하 H-100 으로 명명하겠다.

2.2 복셀 매트릭스 스캐닝법

본 연구에서 임의의 비트맵 형태의 그림파일을 나노급 정밀도를 가지는 극미세 형상으로 복제를 하기 위해서 복셀 매트릭스 스캐닝법 (voxel matrix scanning scheme)을 사용하였다. 나노 복화공

정은 이산적으로 단위 복셀을 생성하여 생성된 복셀이 서로 이어져서 2 차원 형상을 제작하는 방법 이므로 비트맵 형태의 흑백그림 파일을 먼저 0 과 1 로 표현된 아스키 형태 (ASCII format)로 변환하게 된다. 이 때 그림의 흑색 부분은 1 이 되고 흰색부분은 0 으로 나타내도록 하였다. 그리고 변환된 아스키 파일은 다시 나노 복화공정의 공정변수를 고려하여 입력파일로 변환하게 된다.

Fig. 2 에는 복화공정의 복셀 생성방법을 도식적으로 나타내었다. 0 과 1 로 구성된 복셀 매트릭스를 이용하여 0 일 때는 셔터를 닫아서 레이저 광을 차단하여 복셀이 생성되지 못하도록 하고, 1 일 때는 셔터를 열어서 이광자흡수 현상에 의해 복셀이 생성되도록 하였다.

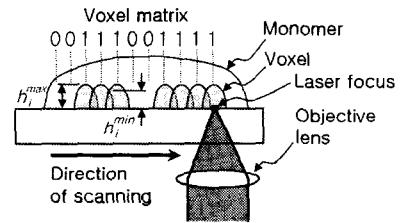


Fig. 2 Schematic diagram of voxel matrix scanning method.

따라서, 본 연구에서 제안된 방법에 의하면 형상에 대한 CAD 파일 없이 비트맵의 형태의 그림 파일만으로 직접 나노급 형상을 제작할 수 있는 특성이 있다. 그러므로 임의의 주어진 형상 또는 패턴에 대하여 개인용 컴퓨터의 보조장치인 스캐너 등을 이용하여 그림파일 형태로 데이터를 얻을 수 있으면 그것을 이용하여 나노급 정밀도를 가지는 극미세 패터닝이 가능하다.

3. 공정변수 연구

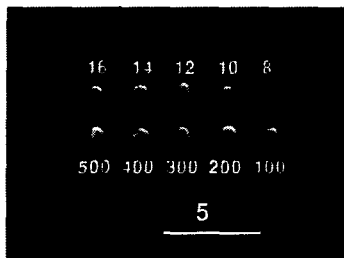
3.1 복셀 생성에 대한 공정변수

펄스초 레이저에 의한 단위 복셀 생성에 관한 연구(7-13)에 의하면 복셀의 크기는 식 (1)- (2)에 나타난 것처럼 레이저의 출력과 조사시간에 의하여 결정이 된다.

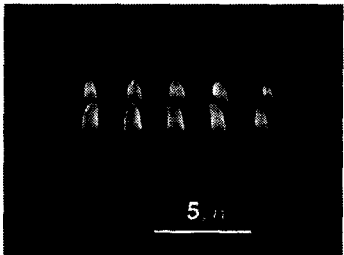
$$d(P, t) = 2r_{z=0} = w_0 \left\{ \ln \left(\frac{4P^2 t}{\pi^2 w_0^4 E'_{th}} \right) \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (1)$$

$$l(P,t) = 2z_{r=0} = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda} \left\{ \left(\frac{4P^2 t}{\pi^2 w_0^4 E_{th}'} \right)^{\frac{1}{2}} - 1 \right\}^{\frac{1}{2}} \quad (2)$$

여기서, d 는 복셀의 직경, l 은 복셀의 길이를 의미하여, P 는 레이저 광의 출력, t 는 조사시간, w_0 는 레이저 광의 초점부의 반경, E_{th}' 는 이광자 흡수에 의하여 폴리머화가 되는 임계에너지 (threshold energy)를 의미한다. 따라서, 레이저 광이 작을수록 조사시간이 짧을수록 복셀의 크기가 작아져서 정밀한 형상을 얻을 수 있다. Fig. 3 에는 실험에서 안정적으로 복셀이 형성되는 5mW 의 레이저 출력조건에서 조사시간을 8ms 부터 500ms 까지 변화시키면서 만든 복셀의 형상을 나타낸 것이다. 조사시간이 증가할수록 복셀의 크기가 증가됨을 알 수 있으나 크기가 식(1), (2)에 나타낸 것처럼 시간의 제곱근에 비례하기 때문에 조사시간이 300ms 이상에서는 크기가 어느 정도 일정하게 수렴함을 알 수 있다.



(a)



(b)

Fig. 3 SEM image of voxels with (a) top view and (b) inclined view. (the numbers in figure mean exposure time of fs-laser respectively)

또한, 레이저 광의 출력이 과도한 경우에는 복셀이 회전 타원체의 일정한 모양이 되지 못하고 과도한 이광자 흡수와 광경화 수지의 내부의 복잡한 경화메커니즘에 의하여 형상이 불규칙적으로 나타남을 알 수 있었다. Fig. 4 에는 레이저 광의 출력이 8mW 에서 만든 복셀의 형상을 나타낸 것이다. 따라서, 광경화 수지의 종류에 따라 일정한 레이저 광의 출력과 조사시간이 필요함을 알 수 있다.

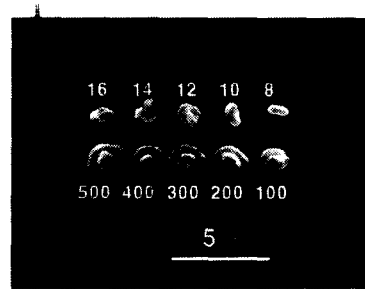


Fig. 4 SEM image of voxels fabricated in the condition of 8mW (the numbers in figure mean exposure time of fs-laser respectively)

3.2 복화 정밀도에 관한 공정변수

복화 공정은 생성된 단위 복셀이 연속적으로 이어져서 형상을 만들기 때문에 복셀 간의 간격에 따라 제작되는 형상의 정밀도가 달라질 수 있다. 복셀간의 거리가 멀어질 경우에는 형상의 왜곡이 많이 발생하여 정밀도가 떨어지게 된다. 본 연구에서는 안정된 복셀 생성조건인 5mW 의 레이저 출력에서 조사시간을 10ms 로 고정한 뒤 복셀 간의 거리를 변화시키면서 선(line) 형상을 제작하였다. 복셀 간격에 따른 선의 정밀도를 비교하여 간격에 따른 정밀도의 변화 조건을 알아보았다.

Fig. 2 에서 각각의 생성된 복셀의 최대 높이 (h_{max}^i)와 최소 높이 (h_{min}^i)을 실험적으로 구하여 식(3)과 같이 정밀도를 나타내는 값(R_h)를 정의하였다.

$$R_h = \frac{\left(\sum_{i=1}^n h_i^{\max} - \sum_{j=1}^n h_j^{\min} \right)}{n} \quad (3)$$

여기서, 측정된 길이는 제작된 전체 선 형상에 서 중심부분의 길이 4 μm 로 하였으며, 측정방법은 SEM 사진을 확대하여 측정하여 다소의 측정 오차는 존재할 것으로 사료된다. Fig. 5 에는 측정을 통하여 얻은 정밀도를 상대적으로 나타내었다.

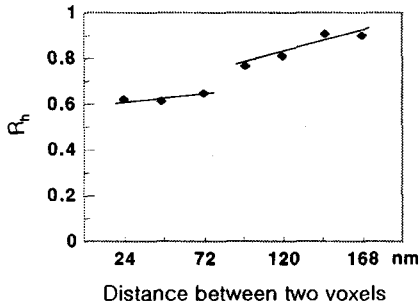


Fig. 5 Experimental results of precision rate(R_h) of each voxel lines in the conditions of fs-laser power(5mW) and exposure time(10ms).

복셀의 간격의 조절은 본 연구에서 사용된 시스템의 셋업 조건에서 x, y 축 스캐너 역할을 하는 갈바노 미러의 스텝 수를 변화시켜가면서 선 형상을 제작하였다. 본 연구에서 1 스텝은 24nm 로 계산되었으며, 3 스텝 (72nm) 이하가 정밀도 차원에서 적절함을 알 수 있었다.

4. 나노 복화패턴 제작

본 연구에서 개발된 복화 공정을 이용하여 형상이 다소 복잡한 영국지도를 그림을 이용하여 나노급 정밀도를 가지는 극미세 영국지도 패턴을 제작해 보았다.

Fig. 2 에서 전술한 복셀 스캐닝법을 이용하기 위하여 먼저, Fig. 6 (a)에 나타난 비트맵 형식의 영국지도 그림을 이용하여 복셀 매트릭스를 생성하였다. Fig. 6 (b)에는 변환된 복셀 매트릭스 중에서 영국지도의 상단부만을 나타낸 것이다. 변환된 복셀 매트릭스를 아스키 형태로 저장한 뒤에 나노 복화공정의 공정변수를 자체 개발한 프로그램에 의하여 입력하였다. 이때 공정변수로는 복셀 사이의 간격, 레이저의 파워, 조사시간이 있으며, Table 2 에 정리하였다. 여기서 조사시간은 2ms 으로 최소화 하였다.

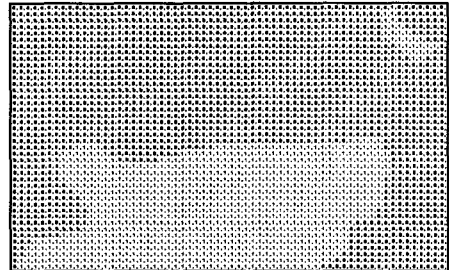


Fig. 6 (a) Bitmap format figure of England map and (b) sectional voxel matrix transferred from the bitmap file.

Table 2 Principal parameters of nRP process for England map fabrication

PARAMETERS	VALUES
Distance between voxels	24nm
Laser power	5mW
Exposure time per voxel	2ms

복화된 영국지도의 정밀도는 최상단 섬의 가로 축 최대 크기가 508nm 로 나타났으며, 복셀 6 개로 이루어졌다. 따라서, 1 스텝의 간격이 24nm 이기 때문에 1 개의 복셀 크기를 역으로 추정해 보면 194nm 가 되어 200nm 수준의 정밀도를 가지는 형상이 제작됨을 알 수 있다. 또한 제작된 형상을 보면 대체적으로 원본의 그림파일과 거의 유사함을 알 수 있다.

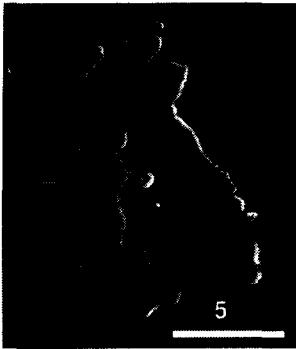


Fig. 7 SEM image of replicated England map on glass plate.

예비실험 결과 제작된 형상 및 정밀도 등이 문제가 없는 것으로 판단되어 얇은 금이 도포된 유리판에 직접적으로 패턴을 생성하도록 하였다. 앞서 예비 실험의 경우에는 하부 유리판 면에 레이저 광의 초점을 잡아서 복화를 하는 방식과 다르게 금속박막 위에 직접적으로 패턴을 생성하기 위해서는 금속박막이 상부 유리판에 존재해야만 가능하다. 즉, 하부 유리판면에 금속박막이 있는 경우에는 레이저 광이 투과가 되지 않아서 광경화 수지가 경화되지 못하는 단점이 있다. 따라서 본 연구에서는 역방향 적층을 위한 방법을 제안하였다. 레이저 광의 초점이 금속박막 면 바로 아래에 있어야만 패턴 생성이 가능하다. 그러나 Fig. 1 (a)에 나타난 고배율 카메라로 모니터링 할 때 금속박막에 의하여 레이저 광의 초점부에 빛이 투과되지 못하여 초점의 위치를 정확하게 판단하기 어렵다.

따라서 본 연구에서는 Fig. 1 (b)의 상부 유리판에서 금속 박막이 도포되지 않은 부분에서 z 축 스테이지를 이용하여 레이저 광의 초점이 생성되도록 하고, 이것을 금속 박막층으로 이동하여 형상 또는 패턴을 제작하였다. Fig. 8에 도식적인 프로세스를 나타내었다.

금 박막 위에 생성되는 나노 정밀도를 가지는 영국지도 패턴의 공정조건은 Table 2와 동일하게 하였다. Fig. 9에는 금속 박막 위에 생성된 패턴을 광학 현미경 (Model : Eclipse ME600, Nikon)을 사용하여 1000 배 확대하여 촬영한 것을 나타낸 것이며, 전체 크기는 Fig. 7과 동일하다.

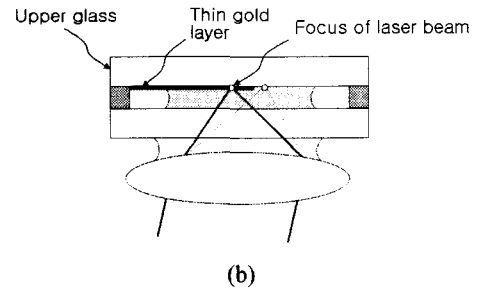
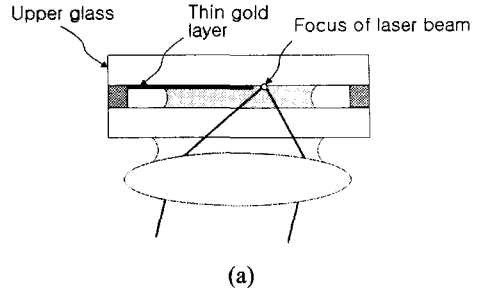


Fig. 8 Schematic diagram of process for focusing on thin gold metal layer; (a) primitive focusing on upper glass plate and (b) secondary focusing on the thin gold metal layer to fabricate nano patterns.

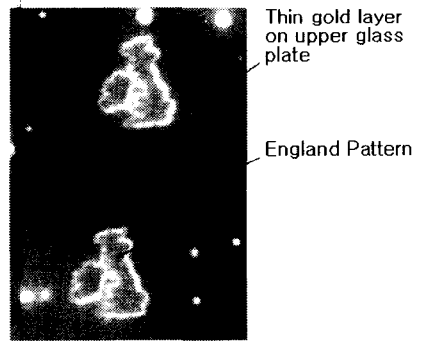


Fig. 9 Fabricated England map pattern on gold metal layer (scale bar, black-colored bar is 5 μ m)

따라서, 본 연구에서 제시한 역방향 적층 방법에 의하여 금속 박막 위에 마스크 없이 펄스 레이저를 이용하여 직접적으로 패턴을 생성할 수 있음을 알았다.

이후 공정에서 금속 박막을 선택적으로 에칭하게 되면 패턴이 생성된 부분 아래의 금속박막은 에칭되지 않고 남게 되고, 따라서 RIE 공정을 이용하여 유리판을 건 식각 (dry etching)하면 나노

임프린트 공정에 적용 가능한 200nm 수준의 정밀도를 가지는 저 비용의 유리 스탬프를 제작할 수 있을 것으로 사료된다.

5. 결론

본 연구에서 제시한 방법과 예제를 통하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 펄초 레이저를 이용하여 이광자 현상으로 형상을 제작하는 나노 복화공정을 이용하여 200nm 수준의 정밀도를 가지는 나노 임프린트 용 스탬프 제작 가능성을 보였다.
- 2) 나노 복화 공정을 응용하여 별도의 CAD 데이터 없이 비트맵 형태의 그림 파일을 이용하여 마스크 없이 직접적으로 극미세 패턴을 제작할 수 있다.
- 3) 개발된 나노 복화공정은 연속적인 패턴제작 및 임의의 3 차원 형상제작이 가능하므로 향후 나노/마이크로 분야에 다양하게 적용될 것으로 판단된다.

후기

본 연구는 21 세기 프론티어 연구개발 사업인 나노 메카트로닉스 기술개발사업단의 연구비 지원에 의하여 수행되었으며 관계자 분들께 감사드립니다.

참고문헌

1. Chou, S.Y., Keimel, C., Gu, J., "Ultrafast and direct imprint of nanostructures in silicon," *Nature*, Vol.417, No.20, pp.835-837, 2002.
2. Xia, Y., Whitesides, G.M., "Soft lithography," *Angew. Chem. Int. Ed.*, Vol.37, pp.550-575, 1998.
3. Loo, Y.L., Lang, D.V., Rogers, J.A., Hsu, J.W.P., "Electrical contacts to molecular layers by nanotransfer printing," Vol.3, No.7, pp.913-917, 2003.
4. Kim, C.S., Shtein, M., Forrest, S.R., "Nanolithography based on patterned metal transfer and its application to organic electronic devices," Vol.80, No.21, pp.4051-4053, *Appl. Phys. Letters*, 2002.

5. Odem, T.W., Love, J.C., Wolfe, D.B., Paul, K.E., Whitesides, G.M., "Improved pattern transfer in soft lithography using composite stamps," Vol.18, pp.5314-5320, *Langmuir*, 2002.
6. Schmid, H., Wolf, H., Allenspach, R., Riel, H., Karg, S., Michel, B., Delamarche, E., "Preparation of metallic films on elastomeric stamps and their application for contact processing and contact printing," Vol.13, No.2, pp.145-153, *Adv. Funct. Mater.*, 2003.
7. Park, S.H., Lim, T.W., Yang, D.Y., Yi, S.W., Kong, H.J., "Development of a nano replication printing(nRP) process using a voxel matrix scanning scheme," *The KSPE Autumn Meeting*, pp.424-427, 2003.
8. Sun, H.B., Maeda, M., Takada, K., Chon, J.W.M., Gu, M., Kawata, S., "Experimental investigation of single voxels for laser nanofabrication via two-photon photopolymerization," Vol.83, No.5, pp.819-821, 2003.
9. Kawata, S., Sun, H.B., Tanaka, T., Takada, T., "Finer features for functional microdevices," *Nature*, Vol.412, No.16, pp.697-698, 2001
10. Serbin, J., Egbert, A., Ostendorf, A., Chichkov, B.N., "Femtosecond laser-induced two-photon polymerization of inorganic-organic hybrid materials for applications in photonics," *Optics letters*, Vol.28, No.5, pp.301-303, 2003.
11. Maruo, S., Kawata, S., "Two-photon-absorbed near-infrared photopolymerization for three-dimensional microfabrication," *J. of Microelectromechanical Systems*, Vol.7, No.4, pp.411-415, 1998.
12. Sun, H.B., Tanaka, T., Kawata, S., "Three-dimensional focal spots related to two-photon excitation," *App. Physics letters*, Vol.80, No.20, pp.3673-3675, 2002.
13. Yi, S.W., Lee, S.K., Kong, H.J., Park, S.H., Jeong, C.G., Lim, T.W., Yang, D.Y., "Three-dimensional microfabrication with nano resolution using two-photon absorption of femto-second laser," *Optical Society of Korea Summer Meeting*, pp.64-65, 2003.