

# 나노임프린트 리소그래피 공정에서 Slip에 의한 경계 효과

이영훈<sup>+</sup>, 김남웅\*, 신호철<sup>++</sup>

(논문접수일 2008. 9. 18, 심사완료일 2009. 2. 2)

## Effect of Boundary Slip Phenomena in Nanoimprint Lithography Process

Young Hoon Lee<sup>+</sup>, Nam Woong Kim\*, Hyo-Chol Sin<sup>++</sup>

### Abstract

It is widely known that no-slip assumptions are often violated on regular basis in micrometer- or nanometer-scale fluid flow. In the case of cavity-filling process of nanoimprint lithography(NIL), slip phenomena take place naturally at the solid-to-liquid boundaries, that is, at the mold-to-polymer or polymer-to-substrate boundaries. If the slip or partial slip phenomena are promoted at the boundaries, the processing time of NIL, especially of thermal-NIL which consumes more tact time than that of UV-NIL, can be significantly improved. In this paper it is aimed to elucidate how the cavity-filling process of NIL can be influenced by the slip phenomena at boundaries and to what degree those phenomena increase the process rate. To do so, computational fluid dynamics(CFD) analysis of cavity filling process has been carried out. Also, the effect of mold pattern shape and initial thickness of polymer resist were considered in the analysis, as well.

**Key Words** : Nanoimprint Lithography(나노임프린트 리소그래피), Slip Phenomenon(slip 현상), Computational Fluid Dynamics(CFD)

## 1. 서론

나노임프린트 리소그래피(nanoimprint lithography, NIL) 공정은 상대적으로 단순한 공정 구성과 10nm 이하의 패턴 전사 능력으로 인하여, 현재 큰 주목을 받고 있는 마이크로 및 나노 패턴 제조 방법이다. 이 공정의 선구적인 역할은

Chou 그룹으로부터 시작되었고, 이후 많은 연구자들이 다양한 방법론과 개선 방안을 제시하고 있다<sup>(1)</sup>.

NIL 공정은 레지스트 경화(curing) 방법에 따라 크게 열-나노임프린트 리소그래피(thermal-NIL)와 자외선-나노임프린트 리소그래피(UV-NIL)로 대별된다. 전자의 공정 순서는 다음과 같다. 먼저 기판 위에 폴리머 레지스트를 도포한 후,

<sup>+</sup> 서울대 대학원 기계항공공학부

<sup>\*</sup> 교신저자, 동양공업전문대학 기계공학부 (freedesign@hanafos.com)

주소: 152-714 서울시 구로구 고척동 62-160

<sup>++</sup> 서울대학교 기계항공공학부

유리전이온도(glass transition temperature, Tg) 이상으로 온도를 높여 점도를 낮춘다. 다음으로, 그 상면에 몰드(mold) 혹은 스탬프(stamp)를 올려 놓고 가압하여 몰드의 미세 패턴 내부로 폴리머를 충전시킨 다음, 가압한 채로 냉각시켜 경화시킨다. 마지막으로 몰드를 기관으로부터 이형하고 예칭 등의 후공정을 통해 기관에 패턴을 전사하게 되는 것이다. 후자의 공정은 기관 위에 모노머(monomer) 레지스트를 도포하고 몰드로 가압하여 충전한 상태에서 자외선을 조사하여 모노머를 폴리머로 중합시켜 패턴을 전사하는 순서를 거친다. 두 공정의 주된 차이는 가열-냉각 공정의 개입 여부와 레지스트의 점도이다. UV-NIL용 레지스트는 일반적으로 상온에서 수십 cP 이하의 낮은 점도를 갖기 때문에, 충전 공정은 매우 짧은 시간 내에 완료된다. 따라서 충전공정의 고속화를 위한 공정 변수 최적화에 대한 요구는 비교적 낮다. 반면, thermal-NIL은 사용되는 폴리머 레지스트의 점도가 상대적으로 매우 높기 때문에, 충전 과정이 신속하게 이루어지기 어렵다. 따라서 thermal-NIL에서는 충전 시간의 단축이 곧바로 전체 공정 시간의 단축으로 이어지게 되어, 생산성을 높일 수 있는 주요한 방법이 될 수 있다.

공정조건의 최적화라는 관점에서 다양한 연구가 있었다. 이러한 연구는 대부분 공정 조건 즉, 온도, 압력, 몰드 패턴의 기하학적 형상 및 폴리머 레지스트 초기 도포 두께 등이 캐비티의 충전에 미치는 영향을 분석한 것들로 수치 해석적 연구와 실험적 연구들이다<sup>(2-6)</sup>.

본 연구에서는 thermal-NIL 공정에서 폴리머의 유동에 영향을 미치는 인자들 중에서 slip 현상의 영향에 대해 살펴보고자 한다. 통상 유동 경계에서 slip이 발생할 경우, NIL 충전 공정의 속도는 빨라지며 따라서 생산성을 높일 수 있을 것으로 알려져 있다<sup>(7,8)</sup>. 그러나 NIL 공정에서 slip의 영향을 실험적인 방법으로 밝혀낸 연구는 흔치 않다. 또한 나노 캐비티의 충전 거동을 실험적으로 관찰하는 방법은 최근 일부 연구 그룹에서 시도되고 있으나 대부분 간접적이거나 비실시간적인 방법을 채택하고 있다<sup>(9,10)</sup>. 현재로서는 나노 캐비티의 충전 거동을 직접적으로 관찰할 수 있는 방법으로서 수치 해석 방법이 유력하다고 할 수 있다. 이에 따라 본 연구에서는 NIL 공정의 캐비티 충전 과정에 대한 유체 유동 수치 해석을 통해, 고체-유체 경계에서의 slip의 효과가 충전 공정에 미치는 영향에 대해 살펴보고자 한다. 이를 위해 수치 해석 모델을 검증하는 단계로서 먼저, NIL 공정에 대한 스퀴즈 유동(squeeze flow) 해석식<sup>(11,12)</sup>과 수치 해석 결과를 상호 비교, 검증한다. 다음으로, Rowland와 King<sup>(5)</sup> 및 Young<sup>(13)</sup>이 수행했던 캐비티 충전 해석 결과와 본 논문의 수치 해석

결과를 서로 비교, 분석하여 본 논문의 해석 모델 및 결과의 타당성을 검증한다. 최종적으로는 no-slip(벽면의 접선방향 유속 0)과 full-slip 조건(벽면 전단력 0), 두 경우에 대해 충전 공정을 해석 후, 양자의 차이를 비교 분석하여 slip이 촉진 될 경우 공정 속도를 높일 수 있는 가능성에 대해 살펴본다.

## 2. 수치 해석 방법 및 조건

### 2.1 Volume of Fluid(VOF) 모델 이론 및 물성치

본 논문에서는 NIL 공정의 충전 공정에서 몰드의 가압에 의해 발생하는 폴리머 레지스트의 유동과 그 선단을 예측하기 위하여 고정 격자계 기반의 유체 체적 분율 방법(volume of fluid, VOF)이 사용되었다. 고정격자계의 VOF 방법은 매 해석 단계마다 새로운 격자를 생성할 필요가 없기 때문에 효율적으로 자유표면의 추이를 계산할 수 있다. VOF 방법은 여러 개의 상(phase)이 존재하는 유동 문제에 적용할 수 있다. 하나의 셀에 여러 개의 상이 존재할 수 있고, 이를 표현하기 위해 각각의 상은 0과 1사이의 값을 해당 셀에 대한 자신의 부피비로서 갖게 된다. 즉, 특정 셀이 특정의 상으로 모두 채워졌다면, 해당하는 상의 부피 비는 1이고, 언급한 상을 제외한 다른 상의 부피 비는 모두 0이 되는 것이다. 본 논문에서와 같이 VOF 방법을 사용하는 경우 연속 방정식은 다음과 같이 주어진다.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \rho \frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0, \quad \rho = \sum \alpha_q \rho_q \quad (1)$$

여기서,  $\rho$ ,  $u_i$ ,  $x_i$ 는 각각 밀도, 속도, 좌표를 나타내며 또한,  $\rho_q$ ,  $\alpha_q$ 는 각각 해당 상의 밀도와 셀에서 차지하는 부피 비를 나타낸다. 운동량 방정식과 구성 방정식은 다음과 같이 나타낼 수 있다.

$$\rho \frac{\partial u_i}{\partial t} + \rho u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} + \rho g + f_\sigma \quad (2)$$

$$\sigma_{ij} = -p \delta_{ij} + \eta \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \quad \eta = \sum \alpha_q \eta_q \quad (3)$$

여기서  $\eta$ ,  $\eta_q$ ,  $f_\sigma$ ,  $\sigma_{ij}$ ,  $p$ ,  $g$ 는 각각 점성, 각 상의 점성, 표면 장력에 의한 운동량, 응력, 압력, 중력가속도를 나타낸다. VOF 모델에서는 셀 내에서, 각 상의 부피비 및 유동방향을 이용하여 유동 경계를 설정하기 때문에, 엄밀한 경계의 표현에는 어려움이 있지만, 해석의 효율성은 높다.

### 2.2 점도 모델

Thermal NIL 공정은 일반적으로 유리 천이 온도 보다 70 ~ 80°C 높은 온도에서 공정을 수행하는데 이 온도 영역에서 폴리머 레지스트는 점성 유체로 가정할 수 있다. 충전 과정에서는 일정 온도가 유지되므로, 해석시 등은 과정으로 가정하는 것이 타당하다. 등은 과정에서 폴리머의 점도는 다음과 같이 절단 멱법칙 모델(truncated power law model)로 묘사할 수 있다<sup>(14)</sup>.

$$\eta(\dot{\gamma}) = \begin{cases} \eta_0 & , \dot{\gamma} < \dot{\gamma}_0 \\ \eta_0(\dot{\gamma}/\dot{\gamma}_0)^{\frac{1-k}{k}} & , \dot{\gamma} > \dot{\gamma}_0 \end{cases} \quad (4)$$

여기서  $\eta_0$ ,  $\dot{\gamma}$ ,  $\dot{\gamma}_0$ 는 각각 체로 점도, 전단 변형률, 임계 전단 변형률을 의미한다. 일반적인 NIL공정에는 전단 변형률이 임계값 보다 작기 때문에, 점도는 일정한 값으로 가정할 수 있다<sup>(11)</sup>.

### 2.3 Slip 조건 고려의 타당성

마이크로 및 나노 스케일의 유동에서는 통상 매크로 스케일의 유체 유동과 달리, 고체-유체의 경계에서 no-slip 조건이 유효하지 않은 것으로 알려져 있다<sup>(7,8)</sup>. 따라서 수치 해석시, 경계조건으로 no-slip 조건을 적용할 경우 해의 정확성에 문제가 생긴다.

통상 기체의 유동은 Knudsen 수(number)를 통해, 유동 스케일에 따른 유동의 형태를 분류할 수 있다. Knudsen 수가 작아질수록 연속체(continuum), 미끄러짐(slip), 천이(transition) 그리고 자유 분자 유동(free-molecular flow)의 방향으로 유동의 특성이 바뀌게 된다<sup>(3)</sup>. Knudsen 수는 다음과 같이 정의된다.

$$Kn = \frac{\lambda}{L} \quad (5)$$

여기서  $\lambda$ 는 분자들의 평균 자유 행정을 나타내고, L은 특성 길이(characteristic length)를 나타낸다. Knudsen 수가 0.001~0.1의 값을 갖는 경우, 유동 해석시 벽면에서 no-slip 경계 조건이 아닌 점선 방향의 slip 속도를 고려하여 Navier-Stokes 방정식을 적용해야 적합한 해를 구할 수 있는 것으로 알려져 있다. Jeong 등<sup>(3)</sup>은 기체에 적용된 Knudsen 수를 액상의 폴리머의 유동에 적용하기 위해 평균 자유 행정 대신 회전 반경(radius of gyration)을 도입하였다. Jeong 등에 따르면, 분자량 75kg/mol 인 polymethyl methacrylate(PMMA)를 사

용하고 100~250 nm의 특성 길이를 갖는 NIL 공정에서 Knudsen 수는 0.0334~0.0834 정도가 된다. 따라서 본 논문에서 다룰 NIL 공정의 수치해석에서는 폴리머 레지스트와 벽면 사이에서 slip 속도가 적용되어야 함을 알 수 있다.

### 2.4 해석 모델 및 조건

평행한 두 평판 디스크 사이에서 유체가 압축되는 현상을 해석하는 스퀴즈 유동 이론은 NIL 공정과 물리적으로 유사한 측면이 있고, 해석식이 존재하여 지금까지 NIL 분야의 많은 연구자들에 의해 폭넓게 인용되어 왔다<sup>(11)</sup>. 서론에서 전술한 바와 같이, 본 논문에서는 NIL 공정의 캐비티 충전 과정에서 slip의 효과를 조사하는 수치 해석을 수행하기 전에, Schift와 Heydermann<sup>(11)</sup> 및 Kim 등<sup>(12)</sup>에 의해 유도된 스퀴즈 유동 해석식과 동일 조건의 수치해석 결과(압력)를 서로 비교하여 캐비티 충전 해석의 타당성을 간접적으로 검증하는 과정을 갖는다. 이를 위한 해석 모델을 Fig. 1 (a)에 나타내었다. 다음 식은 상판이 누르는 속도에 따른 스퀴징 압력을 나타낸다.

$$P = \eta_0 L^2 \frac{(-\dot{h})}{h^3} \quad (6)$$

여기서, L은 몰드의 너비,  $\dot{h}$ 는 몰드의 속도, h는 폴리머 레지스트의 현재 시간에서의 두께를 나타낸다. Fig. 1 (a)에서 좌우 단은 압력 출구(pressure outlet)로서 몰드의 가압에 의해 폴리머 레지스트가 자유롭게 빠져나갈 수 있다.

한편, 캐비티 충전 과정에 대한 해석 모델로는 줄무늬(line and space) 형상의 몰드를 사용하는 것으로 가정하였다. 이

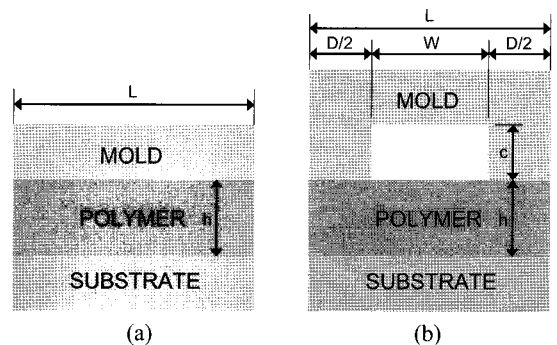


Fig. 1 Computational domain and geometry definition; (a) squeeze flow model, (b) model for cavity filling process of NIL

경우 한 방향으로 몰드의 단면이 일정하게 유지되기 때문에 폴리머 레지스트의 유동은 2차원으로 가정할 수 있다. 2차원 유체관련식과 점도 모델은 2.1과 2.2 절에서 언급한 바와 같다. 주기적으로 반복되는 패턴 중 한 요소만을 선택하고 좌우 대칭 경계 조건을 설정하면 계산 영역은 Fig. 1 (b)와 같아진다. 또한 준정적 평형 상태에서 공정이 진행된다고 가정하면, 임프린팅 압력은 몰드 패턴 벽면에 접촉하고 있는 폴리머의 압력과 전단력의 합으로 구할 수 있다. 몰드-기판 경계에서의 경계조건은, no-slip조건인 경우, 벽면에서의 접선 방향 유속이 0으로 설정되고, full-slip조건인 경우, 벽면에서의 전단력이 0으로 설정된다.

본 논문에서는 몰드의 기하학적 형상 및 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께가 충전 공정 중 폴리머 레지스트의 유동에 미치는 영향을 관찰하기 위해 두 종류의 매개변수를 도입하였다. 먼저, 몰드의 전체 너비 에 대한 캐비티 너비의 비 즉, W/L를 duty ratio(DR)로 정의 하였고, 두 번째로 캐비티의 높이에 대한 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께의 비 즉, h/c를 thickness ratio(TR)로 정의하였다. Fig. 1 (b)의 몰드 형상에서 L과 c는 각각 800nm와 200nm로 고정하였다. 두 매개변수 DR 및 TR의 변화에 대해서는, 캐비티의 너비 W는 400, 500, 600nm 로, 또한 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께 h는 100, 200, 400nm의 각각 3수준으로 고려하였다. 이에 따라 고려되는 DR 및 TR은 각각 0.500, 0.625, 0.750과 0.5, 1.0, 2.0이 되며 이들 각각의 조합에 의해 본 논문에서는 Table 1과 같이 총 아홉 가지의 해석 케이스를 고려하였다.

해석시 공정 환경은 진공 및 등온 상태로 가정하였다. 고려된 폴리머 레지스트는 PMMA로서, 밀도는 1150kg/m<sup>3</sup>, 유리 천이 온도 보다 70~80℃ 높은 상태에서 점도는 10000kg/ms, 표면 장력의 크기는 29.7mN/m 이다. 한편 충전 공정시 몰드의 속도는 200nm/s로 일정한 값을 갖는 정속 NIL 공정을

가정하였다. 모든 해석은 유체 유동 해석 전문 소프트웨어인 Fluent 6.3을 이용하여 수행하였다.

### 3. 해석 결과

#### 3.1 해석 모델 검증

NIL 공정의 캐비티 충전 과정에 대한 해석 모델을 검증하기 위하여 본 논문에서는 두 가지 방법을 취하였다. 첫째, NIL 공정과 유사성이 있으며, 해석식이 존재하는 스퀴즈 유동 모델의 해석식과 동일한 모델에 대해 본 논문에서 수행된 수치 해석의 결과를 상호 비교, 검증하여 캐비티 충전 과정 해석 모델의 타당성을 간접적으로 검증하였다. 둘째, 캐비티 충전 과정에 대한 Rowland와 King<sup>(5)</sup>의 해석 결과와 본 논문의 해석결과를 비교 분석하여 본 논문의 해석 모델을 검증하였다.

먼저 Fig. 1 (a)의 스퀴즈 유동 모델<sup>(11,12)</sup>에 대해서, 해석식 (6)으로부터 계산된 압력과 수치 해석으로 계산된 압력을 비교하여 Fig. 2에 나타내었다. 여기서, 고려된 몰드의 폭은 800nm, 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께는 400nm, 점도는 10000kg/ms, 몰드의 속도는 200nm/s 이다. 해석식과 수치 해석 양자 모두에 no-slip 조건이 사용되었다. Fig. 2에 나타난 바와 같이, 수치 해석과 해석식 양자의 결과는 모두 폴리머 레지스트의 두께가 얇아짐에 따라 스퀴징 압력이 급속도로 증가하는 전형적 양상을 잘 나타내고 있으며, 또한 양자의 차이는 무시할만한 수준이다. 이 결과는 물론 스퀴즈 유동 수치 해석 모델의 검증을 의미하는 것이나, 캐비티 충

Table 1 Analysis Cases

	L = 800nm		
	W = 400nm	W = 500nm	W = 600nm
h = 100 nm	DR = 0.500 TR = 0.500	DR = 0.625 TR = 0.500	DR = 0.750 TR = 0.500
h = 200 nm	DR = 0.500 TR = 1.000	DR = 0.625 TR = 1.000	DR = 0.750 TR = 1.000
h = 400 nm	DR = 0.500 TR = 2.000	DR = 0.625 TR = 2.000	DR = 0.750 TR = 2.000

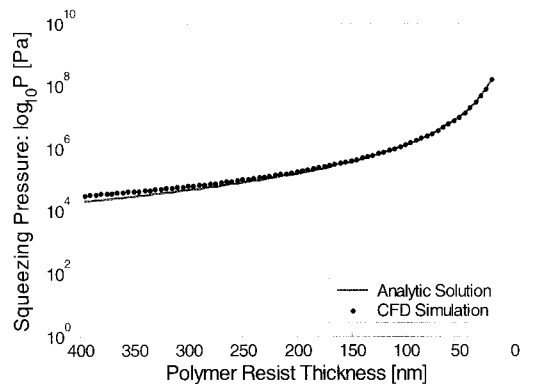


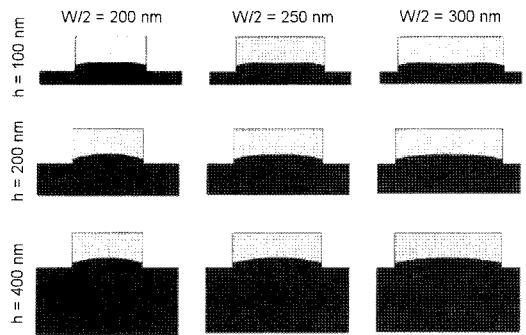
Fig. 2 Comparison between the analytic solution from eqn. (6) and the simulation results; squeezing pressure as a function of polymer resist thickness

전 모델과 스퀴즈 유동 모델의 물리적 유사성에 비추어, 캐비티 충전 모델의 타당성을 간접적으로 뒷받침하는 것으로 사료된다.

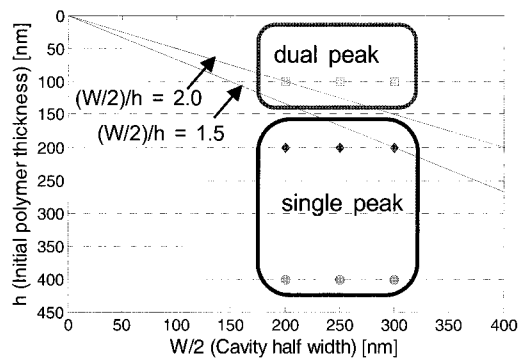
다음으로 본 논문의 캐비티 충전 해석 모델의 타당성을 검증하기 위하여, NIL 분야의 연구 논문에서 널리 인용되고 있는 Rowland와 King<sup>(5)</sup>의 연구 결과와 비교하였다.

NIL 공정은 캐비티를 완전 충전함에 따라 몰드의 형태를 폴리머 레지스트에 등각 복제하는 것을 기본으로 한다. 그러나 여러 가지 원인에 따라 충전 과정이 미충전(under filling) 상태로 종료될 경우, 유동 선단 즉, 폴리머의 자유 표면의 형태는 단일(single) 혹은 이중 피크(dual peak) 형태로 형성된다. 이러한 유동 선단의 형태는 에칭 등의 후공정을 거치면서 기판에 전사되는 최종 패턴에 영향을 미치므로 유동선단의 형태를 예측하는 일은 중요하다. Rowland와 King<sup>(5)</sup>은 유동 선단의 형태에 영향을 미치는 인자로서 세가지 인자 즉, 캐비티 너비 대 폴리머 두께비(cavity width to polymer thickness ratio), 폴리머 공급비(polymer supply ratio) 모세관 수(capillary number)를 도입하여 자신들의 연구 결과 및 이전까지 발표되었던 여타 연구자들의 실험 및 해석 결과에서 보인 폴리머의 변형 형태를 예측할 수 있었다고 주장하였다. 여기에서는 본 연구에서 고려하고 있는 캐비티 충전 과정 수치 해석 모델(Fig. 1 (b))의 타당성을 검증하기 위해 Table 1에 제시된 9가지의 조건에 대해 유동 해석을 수행하여 유동 선단의 형태를 Fig. 3에 나타내었다. 모든 계산에서는 Rowland와 King<sup>(5)</sup>의 연구와 동일하게 벽점착(wall adhesion) 효과를 무시하고, 표면 장력(surface tension)만을 고려하였으며 no-slip 조건을 적용하였다. Rowland와 King<sup>(5)</sup>은 캐비티 절반너비 대 초기 폴리머 도포 두께비 즉,  $W/2h = 1.2$ 를 기준으로 단일 피크와 이중 피크로 유동 선단의 양상이 바뀐다고 주장하였는데, 본 연구에서는 Fig. 3 (a), (b)에 나타낸 바와 같이 1.5 이상에서 분기가 일어나는 것을 관찰할 수 있다. 이는 본 연구와 Rowland와 King<sup>(5)</sup>의 유동 해석에서 사용한 표면 장력 차이(Rowland와 King의 결과에서는 표면 장력 값을 명시하지 않았다)나, 점도 혹은 공정 속도 등의 차이 때문인 것으로 파악되나, 전반적으로는 정성적으로 합치하는 결과이다.

그러므로 스퀴즈 유동 해석식과의 검증 및 Rowland와 King의 연구와의 비교, 검증을 통해 본 논문에서 제시하고 있는 NIL 공정의 캐비티 충전 과정 수치 해석 모델이 간접적으로 또한 정성적으로 검증된 것으로 사료된다.



(a) Flow front shapes at quarter filling rate(25%)



(b) Flow front classified by cavity half width to initial polymer thickness ratio

Fig. 3 Flow front classification of 9 analysis cases in Table 1

### 3.2 No-slip 조건에서의 해석 결과

캐비티 충전 공정에 대한 slip의 영향을 조사하기 전에, 비교를 위하여 no-slip 조건을 적용하여 Table 1에 나타낸 9가지 경우의 해석을 수행하였다. 결과를 분석하는 방법으로 캐비티의 충전율(filling rate)에 따라 임프린팅 압력을 계산하는 것은 NIL 공정 특성을 이해하는데 도움이 되리라 사료된다. 캐비티의 충전율은 폴리머 레지스트를 비압축성 유체라고 가정할 때, 캐비티의 면적( $cW$ )에 대한 임프린팅 공정에 의해 캐비티로 충전된 폴리머 레지스트의 총 면적( $v(t(W+D))$ )으로 나타낼 수 있다. 여기서,  $v$ 는 몰드의 진행속도,  $t$ 는 공정 진행 시간을 의미한다. 몰드와 폴리머 레지스트 간의 접촉각은 소수성인 점을 고려하여  $120^\circ$ , 기판과 폴리머 레지스트 간의 접촉각은 친수성인 점을 감안하여  $30^\circ$ 로 설정하였다.

Fig. 4 (a)-(c)에 계산된 결과를 나타냈다. Fig. 4 (a)는 TR이 0.5 즉, 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께가 100nm

인 경우로, DR이 0.5인 경우를 제외하고는 기판에 도포된 폴리머 레지스트의 체적이 몰드 캐비티의 체적보다 작다. 이 경우 잔류층 두께가 0이 될때까지 임프린팅을 진행하여도 캐비티를 완전히 채울 수 없는 미충전 상태로 공정이 종료된다. TR이 0.5인 경우 55%까지 충전이 이루어졌을 때를 기점

으로, DR에 따라 필요한 임프린팅 압력의 크기 순서가 역전된다. 이러한 현상은 스퀴즈 유동 해석식 (6)으로 설명이 가능하다. 식 (6)에서 임프린팅 압력은 폴리머 레지스트 현재 두께의 3제곱에 반비례 하는 관계 즉,  $P \propto h^{-3}$ 의 관계를 갖는다. 따라서 DR = 0.750인 경우(Fig. 3 (a)의 최우상단)와 같이, 캐비티 폭이 크고 몰드 패턴 돌출부 너비가 작은 경우, 충전률이 증가함에 따라 돌출부 하부의 폴리머 레지스트의 두께가 얇아지는 속도가 가장 빠르다. 따라서 임프린팅 압력은  $P \propto h^{-3}$ 의 관계에 따라 가장 가파르게 커지게 되므로, DR = 0.500, 0.625 일 때의 임프린팅 압력을 역전하게 되는 것이다.

Fig. 4 (b), (c)는 TR이 각각 1.0, 2.0인 경우로(폴리머 레지스트 초기 도포 두께가 200, 400nm), TR이 0.5의 경우에 비해 충전 과정 중 폴리머 레지스트의 두께가 충분히 두껍기 때문에 DR이 커질수록 작은 가압력이 필요해지는 경향이 유지된다. 또한 TR이 1.0 및 2.0인 모든 경우에 있어서 일정하게 가압력이 증가하다가, 충전율이 약 70% 이상이 될 경우 곡선의 기울기가 급격히 증가하는 현상을 보였다. 이는 이 시점부터 폴리머 레지스트의 선단이 캐비티의 천정면에 닿기 때문이다. 즉, 몰드와 폴리머 레지스트 간의 접촉 면적이 가압력 방향으로 늘어나기 때문이다. 이러한 결과는 Young<sup>(13)</sup>의 연구 결과와 정성적으로 합치하는 것이다.

한편 TR의 변화에 따른 임프린팅 압력 대 충전률 곡선을 계산하여 Fig. 5 (a), (b)에 나타내었다. 여기서는 DR을 0.5로 고정하였다. 먼저, TR = 0.5와 1.0인 경우를 비교하면, 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께가 얇은 TR = 0.5 쪽이 동일한 충전률에서 TR = 1.0 쪽에 비해 훨씬 큰 임프린팅 압력이 필요한 것으로 계산되었다. 그러나 TR = 1.0과 2.0의 경우를 비교하면, 임프린팅 압력의 차이는 상대적으로 작았다. 이러한 결과는 기존의 스퀴즈 유동 이론과는 다른 것으로 다음과 같이 설명될 수 있다.

일반적으로 스퀴즈 유동 이론에서는 해석식 (6)에 나타난 바와 같이,  $P \propto h^{-3}$  관계에 따라 폴리머 레지스트의 초기 두께가 두꺼울수록 임프린팅 압력이 급감하게 된다. 그 이유는, Fig. 1 (a)의 스퀴즈 유동 모델에서 보면, 폴리머 레지스트의 양단 경계에 압력 출구 조건이 적용되어 몰드의 가압에 따라 폴리머 레지스트가 자유롭게 빠져나가므로, 초기 두께가 두꺼울수록 즉, 압력 출구가 클수록 작은 압력으로 일정량의 폴리머를 스퀴징할 수 있는 것이다. 반면 Fig. 1 (b)와 같은 캐비티 충전 모델의 경우, 양단은 대칭 경계 조건으로서 물질 이동이 발생하지 않고, 폴리머 레지스트는 오직 캐비티 내부로만 이동할 수 있다. 이 경우 폴리머 레지스트의

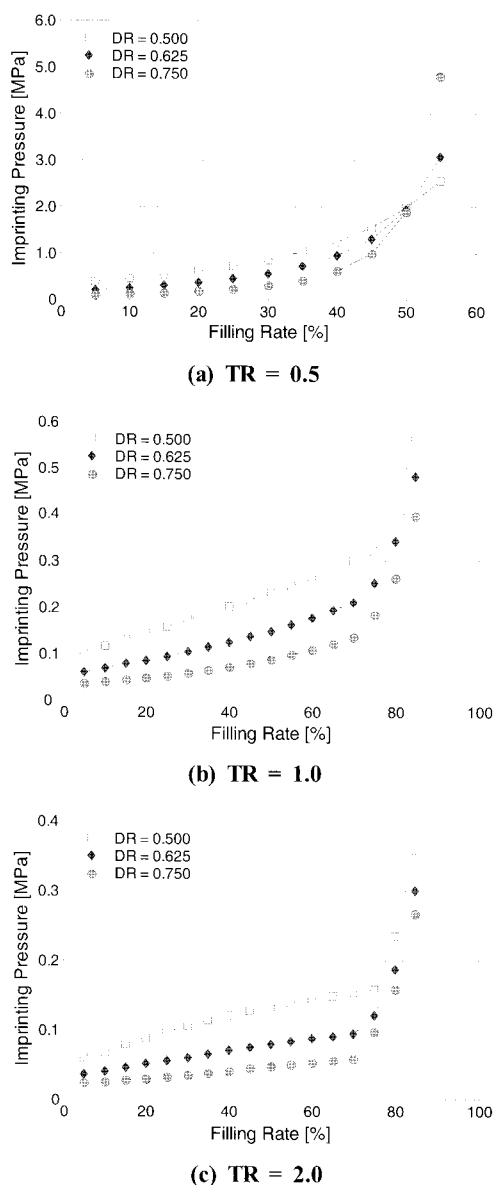


Fig. 4 Imprinting pressure as a function of filling rate for various DR

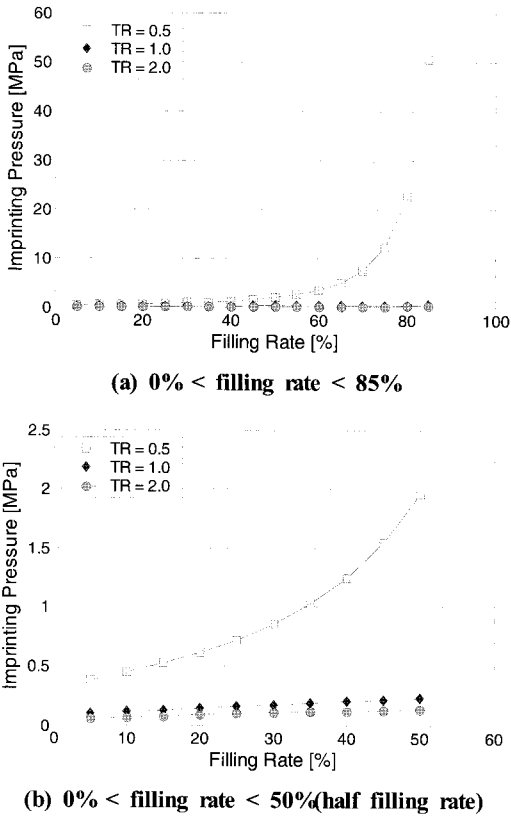


Fig. 5 Imprinting pressure as a function of filling rate for various TR

초기 두께가 일정치 이상 증가하게 되면, 물질 이동 경로의 폭이 되는 캐비티 폭에는 변화가 없으므로 임프린팅 압력에는 큰 변화가 발생하지 않는 것이다.

이러한 결과는 본 논문의 캐비티 충전 과정 해석 모델이 몰드의 주기적으로 반복되는 수많은 패턴 중 하나의 단위 대칭 요소만을 고려한 모델이기 때문에 발생하는 것이다. 실제 NIL 공정에서는 양 끝단 경계가 자유경계이기 때문에 본 해석 모델과는 다른 양상을 보일 것이므로 향후 이에 대한 고려가 필요할 것이다.

### 3.3 Slip 조건에서의 해석 결과

NIL 공정 중, 유체-고체 경계에서는 즉, 폴리머 레지스트와 몰드 또한 폴리머 레지스트와 기판 사이에서는 slip이 빈번하게 일어난다. Slip 속도의 크기는 전단 응력의 크기에 따라서<sup>(13)</sup>, 혹은 패턴의 크기나 폴리머의 분자량 등에 따라서 달라질 수 있다. 본 절에서는 slip이 최대 일어난

full-slip의 경우에 대해 살펴보고, slip을 촉진함으로써 얻을 수 있는 효과의 최대 범위가 어떠한 지에 대해 살펴보고자 한다. 이를 위하여 3.2 절의 no-slip 조건 하에서의 해석 결과와 slip 조건을 제외한 모든 조건을 같게 놓고 해석한 후, 양자의 결과를 비교하였다. Full-slip 조건은 전술한 바와 같이 벽면에서 전단력을 0으로 가정함에 따라 구현된다.

Fig. 6은 full-slip 조건을 적용했을 때, DR과 TR의 변화가 임프린팅 압력에 미치는 영향을 나타낸다. Fig. 7에는 비교를 위하여 no-slip 조건의 결과와 full-slip 조건의 결과를 함께 나타내었다. 각각의 경계 조건 사이에는 두 가지의 뚜렷한 차이점이 보인다.

첫째, full-slip 조건인 경우, 정속 임프린팅에 필요한 임프린팅 압력의 크기가 no-slip 조건인 경우에 비해 현저히 감소한다. 즉, 몰드와 기판에서 slip이 일어나는 경우, 그렇지 않은 경우에 비해, DR 및 TR에 관계없이 동일 충전율 구현에 필요한 임프린팅 압력이 대폭 줄어든다. 이는 다시 바꾸어 말하면 동일 압력하에서 훨씬 빠른 공정 속도를 얻을 수 있음을 의미한다. 스퀴즈 유동 해석식 (6)에서 설명한 바와 같이 폴리머 레지스트의 두께가 감소할수록 임프린팅 압력은 증가한다. 그런데 여기서 만일 slip이 촉진될 수 있다면, 임프린팅 압력이 증가되는 경향이 완화되는 것이다. No-slip 조건일 경우, 벽면에서 마찰에 의해 유체에 전단력이 발생하여 흐름에 저항하는 것에 반해, full-slip 조건에서는 그렇지 않으므로 동일한 충전률에서의 임프린팅 압력 값이 작은 것이다. 이러한 효과는 Kim 등<sup>(12)</sup>에 의해 유도된 slip을 고려한 스퀴즈 유동 해석식 연구에서도 예측된 결과이다. 한편 slip에 의해 임프린팅 압력이 감소하는 경향은 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께가 두꺼운 경우(TR = 1.0, 2.0) 보다 얇은 경우(TR = 0.5)에서 더욱 두드러지게 나타났다. 폴리머 레지스트의 두께가 얇을수록, 유체-고체 경계에서의 no-slip 조건 때문에 유체의 유동에 미치는 마찰 저항은 더욱 크게 나타난다. 이 때문에 만일 slip이 촉진된다면, 폴리머 레지스트가 두꺼운 경우보다는 얇은 경우에서 임프린팅 압력의 감소 효과가 더욱 크게 나타나는 것이다. 실제 NIL 공정에서는 공정 후, 최종 잔류층을 가능한 줄이기 위해, 폴리머 레지스트의 초기 두께를 되도록 얇게 도포하는 경우가 많다. 따라서 실제 NIL 공정시, 기술적 처리에 의해 slip이 촉진될 수 있다면, 생산성을 크게 향상시킬 수 있을 것이다.

둘째, 폴리머 레지스트 초기 도포 두께가 상대적으로 두꺼운 경우(TR = 1.0, 2.0)에 충전율에 따른 임프린팅 압력의 증가 양상이 양 경계조건 간에 서로 다르게 나타났다. No-slip 조건인 경우(Fig. 4 (b), (c)), 폴리머 레지스트의 유

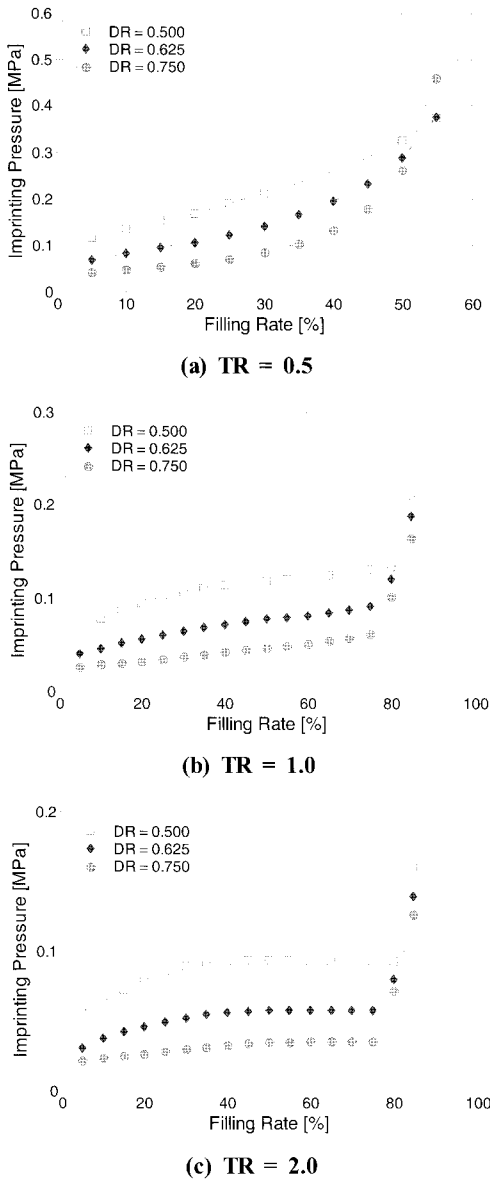


Fig. 6 Imprinting pressure as a function of filling rate for various DR

동 선단이 캐비티 천정면에 닿기 전까지는 임프린팅 압력이 비교적 선형적인 형태로 증가한다.

반면, full-slip 조건인 경우(Fig. 6 (b), (c))에는 공정 초기에만 선형적으로 증가하다가 공정이 진행되면서 그 증가율이 현저히 둔화되는 것을 관찰할 수 있었다. 이러한 현상

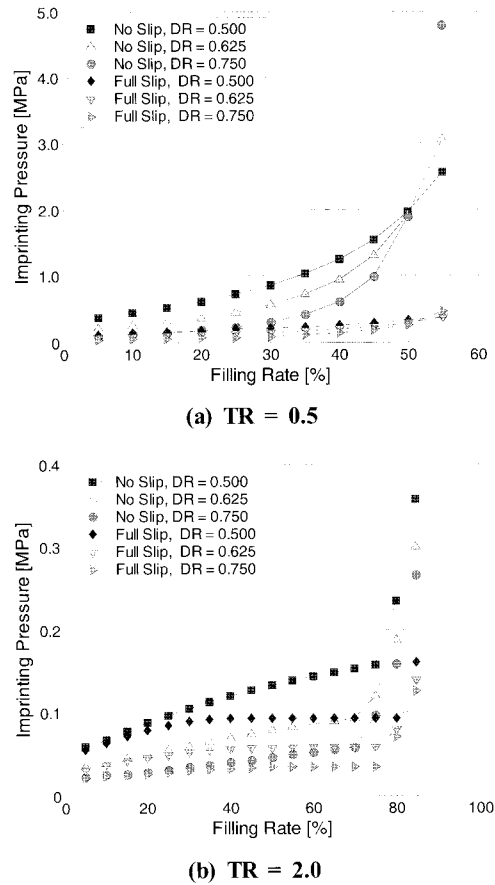


Fig. 7 Comparison of imprinting pressure profiles between full slip and no-slip conditions

은 다음과 같이 설명될 수 있다. 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께가 두꺼운 경우에는 공급되는 유량이 충분하기 때문에 몰드 패턴 돌출부와 접한 폴리머 레지스트의 압력 증가율은 그리 크지 않다. 따라서 NIL 공정 초기에는 slip 조건이 임프린팅 압력에 크게 영향을 미치지 않는다. 이후 충전이 진행됨에 따라 폴리머 레지스트는 캐비티의 옆 벽면을 타고 유동이 진행된다. 이때에는 slip의 유무에 따라 캐비티 옆 벽면 근처 폴리머 레지스트의 전단응력 값에 큰 차이가 발생한다. 따라서 full-slip 조건이 적용되는 경우, 폴리머 레지스트가 캐비티 옆 벽면을 따라 이동하는 시점부터 필요 임프린팅 압력의 증가가 no-slip 조건에 비해 현저히 둔화되는 것이다.



#### 4. 결론

NIL 충전 공정 해석을 통해 고체-유체 경계 즉, 폴리머 레지스트와 몰드 간 또한 폴리머 레지스트와 기판 간의 경계에서의 조건들이 임프린팅 압력에 어떠한 영향을 미치는지 살펴보았다. 해석 결과, slip의 유무에 상관없이 대체적으로 DR(duty ratio)과 TR(thickness ratio)이 작아짐에 따라 정속 공정에 필요한 임프린팅 압력이 증가함을 보였다. 또한 충전 공정이 진행됨에 따라 폴리머 레지스트의 유동 선단은 캐비티의 천정면에 접촉하게 되는데, 이때 정속 공정에 필요한 임프린팅 압력은 급격하게 증가하였다. 이 결과는 일정 임프린팅 압력을 사용하는 실제 NIL 공정에서 충전률이 어느 정도 높아진 시점이 되면 충전 속도가 급격히 줄어드는 현상을 잘 나타내는 결과이다.

한편 full-slip 조건과 no-slip 조건 양자의 해석 결과에서 두 가지의 뚜렷한 차이점이 나타났다. 첫째, full-slip 조건인 경우에 no-slip 조건에 비해 필요 임프린팅 압력의 수준이 현저히 떨어졌다. 특히 초기 polymer 두께가 얇은 경우, 이러한 경향은 두드러지게 나타났다. 실제로 NIL 공정에서는 공정후 최종 잔류층 두께를 가능한 줄이기 위하여 폴리머 레지스트의 초기 도포 두께를 되도록 얇게 형성하는 경우가 많다. 이 경우 만일 기술적인 처리에 의해 slip이 촉진된다면 공정 시간을 대폭 줄일 수 있을 것이다. 둘째, slip의 유무에 따라, 충전율에 따른 임프린팅 압력의 증가 양상에 차이가 있는 것으로 나타났다. No-slip 조건에서는 폴리머 레지스트의 유동 선단이 캐비티 천정면에 닿기 전까지 필요 임프린팅 압력이 거의 선형적인 증가 추이를 보이는데 반해, full-slip 조건인 경우에는 공정 초기에는 임프린팅 압력이 선형적인 증가 추이를 보이다가 충전률이 높아지면 임프린팅 압력의 증가율이 감소하는 모습을 보였다. 이는 충전이 진행되면서 캐비티 옆면으로 폴리머 레지스트가 타고 올라가는데, 이때 발생하는 폴리머 레지스트의 전단응력이 slip 조건에 의해 작아지기 때문인 것으로 사료된다.

이러한 결과에 따라, NIL 공정에서 slip이 발생할 경우, 공정 속도를 향상시킬 수 있다. 나노 스케일의 유동에서 slip은 자연스럽게 일어나는 현상이지만, 경계에서 이를 촉진시킬 수 있다면 생산성을 크게 높일 수 있을 것으로 사료된다.

#### 참고 문헌

- (1) Chou, S. Y., Krauss, P. R., and Renstrom, P. J., 1995, "Imprint of Sub-25nm Vias and Trenches in Polymers," *Applied Physics Letters*, Vol. 67, pp. 3114-3116.
- (2) Kang, J. H., Kim, S. M., Woo, Y. S., and Lee, W. I., 2008, "Analysis of Resin Flow During Nanoimprinting Lithographic Process," *Current Applied Physics*, Vol. 8, pp. 679-686.
- (3) Jeong, J. H., Choi, Y. S., Shin, Y. J., Lee, J. J., and Park, K. T., 2002, "Flow Behavior at the Embossing Stage of Nanoimprint Lithography," *Fibers and Polymers*, Vol. 3, pp. 113-119.
- (4) Hirai, Y., Konish, T., Yoshikawa, T., and Yoshida, S., 2004, "Simulation and Experimental Study of Polymer Deformation in Nanoimprint Lithography," *Journal of Vacuum Science and Technology B*, Vol. 22, pp. 3288-3293.
- (5) Rowland, H. D. and King, W. P., 2004, "Polymer Deformation and Filling Modes During Microembossing," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, Vol. 14, pp. 1625-1632.
- (6) Kim, N. W., Kim, K. W., and Sin, H.-C., 2008, "Finite Element Analysis of Low Temperature Thermal Nanoimprint Lithography Using a Viscoelastic Model," *Microelectronic Engineering*, Vol. 85, pp. 1858-1865.
- (7) Choi, C. H. and Kim, C. J., 2006, "Large Slip of Aqueous Liquid Flow over a Nanoengineered Superhydrophobic Surface," *Physical Review Letters*, Vol. 96, pp. 066001.
- (8) Yao, D. and Kim, B., 2002, "Simulation of the Filling Process in Micro Channels for Polymeric Materials," *Journal of Micromechanics and Microengineering*, Vol. 12, pp. 604-610.
- (9) Jones, R. L., Hu, T., Soles, C. L., Lin, E. K., Reano, R.M., Pang, S. W., and Casa, D. M., 2006, "Real-time Shape Evolution of Nanoimprinted Polymer Structures during Thermal Annealing," *Nano Letters*, Vol. 6, pp. 1723-1728.
- (10) Yu, Z., Gao, H., and Chou, S. Y., 2007, "RIMS (real-time imprint monitoring by scattering of light) Study of Pressure, Temperature and Resist Effects on Nanoimprint Lithography," *Nanotechnology*, Vol. 18, pp. 065304.
- (11) Schiff, H. and Heydermann, L. J. in: C.M. Sotomayor

- Torres (Ed), 1970, *Alternative Lithography*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York.
- (12) Kim, K. W. and Kim, N. W., 2008, "Analytical Approach of Polymer Flow in Thermal Nanoimprint Lithography," *Transactions of the Korean Society of Machine Tool Engineers*, Vol. 17, No. 3, pp. 20~26.
- (13) Young, W. B., 2005, "Analysis of the Nanoimprint Lithography with a Viscous Model," *Microelectronic Engineering*, Vol. 77, pp. 405~411.
- (14) Ferry, J. D., 1970, *Viscoelastic Properties of Polymers*, 2nd ed., John Willey & Sons, Inc. New York
- (15) Hatzikiriakos, S. G. and Dealy, J. M., 1991, "Wall Slip of Molten High Density Polyethylene. I. Sliding Plate Rheometer Studies," *Journal of Rheology*, Vol. 35, pp. 497~523.