

令和 2 年 6 月 11 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06091

研究課題名(和文) 量産性に優れたナノ金属パターン積層構造作製技術の開発

研究課題名(英文) Development of high throughput metal nano patterns stacking method

研究代表者

谷口 淳(Taniguchi, Jun)

東京理科大学・基礎工学部電子応用工学科・教授

研究者番号：40318225

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：金属パターン積層構造を量産性に優れたナノインプリント技術と銀インクを用いて形成した。特に、配線積層を実現するために、貫通穴電極を用いた積層配線技術を確立した。その結果、貫通穴電極の両面に配線を擁する3層構造の作製に成功した。作製した銀配線は透過型電子顕微鏡像から配線内の銀にボイドが発生することなく銀が詰まっていることが確認できた。この3層構造はX線CTでも観察し、その結果、貫通穴電極と上下配線は接続していることが確認できた。また、貫通穴電極と上下配線間で導通が確認でき、配線として使用できることも示せた。開発した貫通穴電極作製方法はさまざまなフレキシブルデバイスの積層構造の作製に有用である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

フレキシブルデバイスの上に新たにフレキシブルデバイスを作製し上下間で相互接続させることで1枚の基板に複数の機能を持たせる積層構造が注目されている。しかし、積層構造を作製する際にデバイス間の電気的接続を行う貫通穴電極が必要となるが、貫通穴電極を作製する際に必要な微細な貫通穴をフレキシブルな基板で作製することは困難である。本研究では、銀インクとナノインプリント技術を用いて、大気中で作製できる技術を開発した。大気中で作製できるため、量産性に優れた実用的なプロセスといえる。開発した貫通穴電極作製方法はさまざまなフレキシブルデバイスの積層構造の作製に有用であり、学術的にも社会的にも意義深い。

研究成果の概要(英文)：Demand for printed electronic devices is increasing, likewise the attention being paid to through-hole electrodes as an integration approach. In comparison with wire bonding integration methods, through-hole electrodes occupy smaller surface areas and have lower power consumption rates. Generally, the diameters of through-holes fabricated in flexible substrates are larger than those developed in rigid substrates. In this study, ultraviolet nanoimprint lithography was used to fabricate microscale through-holes in a flexible substrate, and these holes were subsequently filled with silver ink to form through-hole electrodes. The through-hole electrode for wiring was successfully fabricated using silver ink. The resistance value of the integral lower layer wiring to through-hole electrode to upper layer wiring was measured as 55 k $\Omega$ . X-ray CT showed that the three-layer structure was integrated three-dimensionally. Lastly, the TEM image indicates the formation of silver crystals.

研究分野：微細加工学

キーワード：ナノインプリント 銀インク 貫通穴電極 金型 フレキシブルデバイス UV硬化性樹脂 UV-NIL X線CT

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在、ロールトゥロールの印刷技術でフラットパネルディスプレイなどを製造する「プリントド・エレクトロニクス」の研究が盛んにおこなわれている。これは、各種印刷技術を応用したものであるが、パターンサイズはミクロンオーダーである。この分野では、微細化よりもリソグラフィを用いなくて、速く低コストに製品を作ろうという風潮がある。近年、この手法を用いて金属パターンの形成なども進んできてはいるが、銀インクなどでマイクロメートルオーダーのパターン形成が主流である。マイクロオーダーでも電子デバイスやディスプレイなどへの応用は可能ではあるが、競争が多いため優位性が無い。それに対して、ナノオーダーの金属パターニングがプラスチック上にできれば、プラズモンデバイス、メタマテリアルなども可能となってくる。これらのデバイスの作製方法は、現状、電子ビーム露光とリフトオフプロセスを用いた半導体プロセスでの形成方法が多いが、この方法では大量生産が難しくなる。そこで、金型を用いたパターン転写技術がスループット、解像度の点で優れている。現在、このような取り組みを行っている研究グループは少なく、ナノオーダーの金属パターン自体を高効率で転写できる技術が少ない状態である。さらに、これらの金属パターンを積層させると、世界的に見ても有効な技術が無い状況である。このような背景の中、本研究室では、科研費基盤Cの研究(H25年度~H27年度採択、ロールナノインプリント法による金属ナノ構造転写技術の確立)を推進し、ロールナノインプリントにより、金属ナノ構造転写技術を開発した。また、この手法は、金属を積層することも可能にした。

さらに量産性を向上するためには、金属パターンの形成を真空蒸着から金属インクで行えるようにすればよい。さらに、まだ開発されていない技術としてフィルム基板に貫通穴電極を作製して、回路等を積層することが挙げられる。これらが実現できれば、フィルム両面に回路が形成でき、フレキシブルで高性能なデバイスが作製可能となる。

2. 研究の目的

量産性に優れた金属インク材料とナノインプリント技術を用いて、プラスチックフィルム上にナノオーダーの金属パターンを積層する技術を確立することを目的とする。特に貫通穴を用いた配線積層技術は、他所で例が無いため、この技術開発を目指す。

3. 研究の方法

銀インクを用いて配線積層技術の開発を行った。ここでは、貫通穴電極を通じて、上面と下面の接続を確認するために通電試験とX線CTによる確認を行うことにした。これは、微小領域の断面を割って、走査型電子顕微鏡写真を撮ることが難しいためである。X線CTの最高分解能は5ミクロン程度のため、パターンサイズを分解能より大きく設定した。銀インクを用いたのナノオーダーの分離した積層は可能となっており、貫通穴はミクロンオーダーであるが、上面と下面の金属パターンはナノオーダーのパターニングも可能である。ここでは、X線CTでの積層確認を行うため5から10μmの線幅での3層配線積層を行ったので、その実験方法を示す。図1に下層配線、貫通穴電極、上層配線のパターンと積層の模式図を示す。ここでは、フォトマスクによりパターンを起こし、その後、フォトリソグラフィとナノインプリントを用いて金型を作製した。図2に銀インクを用いたパターニング技術を示す。

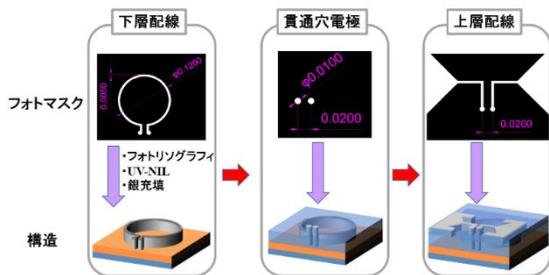


図 1. 3層構造の模式図とフォトマスク

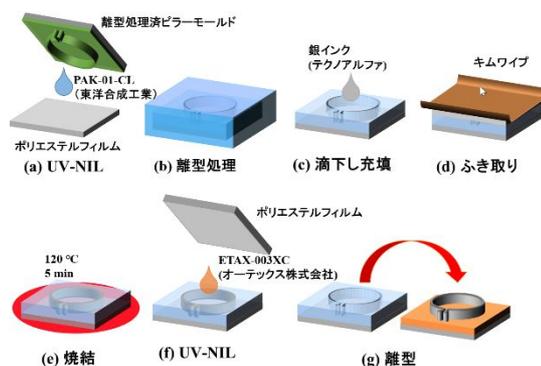


図 2. 銀インクを用いたパターニング技術

図2は、下層配線形成の例であるが、フォトマスクを用いたリソグラフィにより金型を作製し、それをナノインプリントで複製しフレキシブルモールドを作製する。このモールドを用いて、UV硬化樹脂に溝パターンを作製する(図2a)。離型後(図2b)、銀インクをこの溝に埋め込む(図2c)。溝部以外の表面は、キムワイプでふき取る(図2d)。この後、焼結(図2e)をして、この溝部の銀パターンをナノインプリントで掬い取る(図2f)。このパターンをフィルム上に転写して剥がせば、フィルム上に銀パターンが形成される(図2g)。この下層配線の上に貫通穴電極を作製するプロセスを図3に示す。銀のリングパターンの貫通穴電極との接続部分と、貫通穴用のモールドの凸部を光学顕微鏡下で位置合わせを行い、UV硬化樹脂を用いて銀リングパターン部分は樹脂で埋まり、リングの接続部分は樹脂が無くなるように加圧を調整してUVナノインプリントを行った(図3a)。ここで、転写圧力が2.0MPa以上で銀リングパターンの接続部の上に

樹脂が無い状態（残膜無し）を実現することができた。モールド離型後、樹脂の貫通穴ができる（図3b）ので、ここに銀インクを充填し（図3c）焼成すれば銀の貫通穴電極が形成できる。同様にこの貫通穴の上に位置合わせをして、上層配線も形成した。形成した配線は、図4のようにテスターで抵抗値を測定した。また、X線CTで樹脂の内部に配線されている部分を確認した。

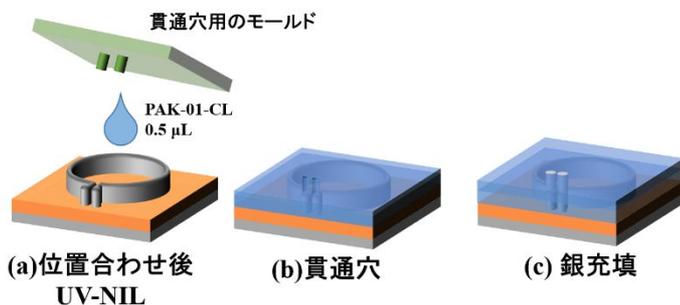


図3. 貫通穴電極の形成方法

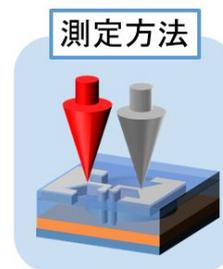


図4. 積層配線の導通確認方法

#### 4. 研究成果

図5に下層配部の走査型電子顕微鏡写真を示す。これにより、幅4.2 μm、高さ2.6 μmの銀リングパターンが形成されているのがわかる。図6に下層配線部の接続部（下の2つの円部分）上に貫通穴電極用の樹脂穴開けパターン（上）を転写したものと、銀インクを充填した結果（下）を示す。これにより、直径9.5 μmの貫通穴電極が形成できた。高さは7 μmであった。また、この貫通穴電極上に上層配線を作製した結果を図7に示す。上図は、樹脂の溝パターンで、下図は、銀充填後のパターンである。この配線は、図4のテスターで測定するための電極パッドとなっている。貫通穴電極部からはL字で広い電極パッド部に接続している。この長さは180 μmである。また、L字部線幅、高さは、図5と同じく、線幅4.2 μm、高さ2.6 μmであった。図8に、これら3層構造を非破壊で導通を確認するため、X線CTで撮影した像を示す。白い部分が銀インク配線であり、上面図から、右にリングパターン、円2つのところが貫通穴電極、L字部の上層配線が左に観察できる。また、下の断面図は、上面図点線部の部分になるが、銀配線が白く右からリングパターン、貫通穴、上層配線部（左）がつながっていることがわかる。

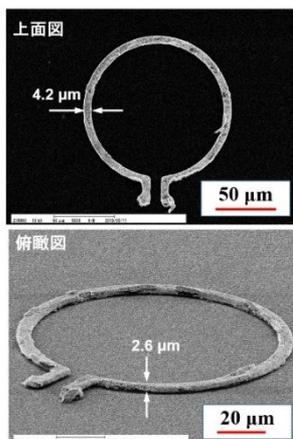


図5. 下層配線



図6. 貫通穴電極



図7. 上層配線



図8. X線CT像

次に図8のように配線積層されたサンプルに対して、テスターで導通確認を行った。図9に図5～図7までの配線形状と銀インクの抵抗率より、計算した抵抗の値を示す。これにより、1.74～8.69 と予想される。実測値は、55～180k と計算値より大きくなった。これは、図8のX線CT像からわかるように、一部配線が狭まっているところがあったりすることが原因と考えている。

以上より、開発した貫通穴電極作製方法はさまざまなフレキシブルデバイスの積層構造の作製に有用である。また、量産のためのロールトゥロールによる貫通穴電極の作製も試みた。こちらは単層で作製できた。

$R = \rho \frac{L}{S} [\Omega]$        $\left\{ \begin{array}{l} R: \text{抵抗} [\Omega] \\ L: \text{長さ} [m] \\ S: \text{断面積} [m^2] \\ \rho: \text{抵抗率} [\Omega \cdot m] \end{array} \right.$       **計算値**

	下層配線(リングパターン)	貫通穴電極	上層配線
構造			
L [μm]	120π + 20	7.0 × 2	180 × 2
S [μm <sup>2</sup> ]	4.2 × 2.6	π × (9.5/2) <sup>2</sup>	4.2 × 2.6

銀インク (Smart Screen F, Techno Alpha Co., Ltd.)  
ρ = 2.5 - 12.5 [μΩ·cm]      **1.74-8.69 Ω**

図9. 配線の計算方法

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kazuki Honjo, Atsuhiko Furuta, and Jun Taniguchi	4. 巻 33
2. 論文標題 Fabrication of Flexible Fine Through-hole Electrodes for Printed Devices using UV-NIL	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Photopolymer Science and Technology	6. 最初と最後の頁 545-550
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Wadayama Hisahiro, Okabe Takao, Taniguchi Jun	4. 巻 193
2. 論文標題 Fabrication of multilayered structure of silver nanorod arrays for plasmon memory	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Microelectronic Engineering	6. 最初と最後の頁 47 ~ 53
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） <a href="https://doi.org/10.1016/j.mee.2018.02.020">https://doi.org/10.1016/j.mee.2018.02.020</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Okabe Takao, Wadayama Hisahiro, Taniguchi Jun	4. 巻 10456
2. 論文標題 Fabrication of overlaid nanopattern arrays for plasmon memory	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Proc. SPIE 10456, Nanophotonics Australasia 2017, 1045655	6. 最初と最後の頁 1045655-1 ~ 7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） doi: 10.1117/12.2281591	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Kazuki Honjo, Jun Taniguchi
2. 発表標題 Fine Flexible Through Electrodes for Printed Devices Using Silver Ink
3. 学会等名 32nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazuki Honjo, Jun Taniguchi
2. 発表標題 Flexible fine through hole electrodes for printed devices
3. 学会等名 The 44th International Conference on Micro and Nano Engineering (MNE2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 本庄 一希, 谷口 淳
2. 発表標題 フレキシブルデバイス用の貫通穴電極の作製
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会 (2018)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hisahiro Wadayama, Takao Okabe, Jun Taniguchi
2. 発表標題 Fabrication of multilayer structure of silver nanorod arrays for plasmon memory
3. 学会等名 43rd Micro and Nano Engineering (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Takao Okabe, Hisahiro Wadayama, Jun Taniguchi
2. 発表標題 Fabrication of overlaid nanopattern arrays for plasmon memory
3. 学会等名 SPIE NanoPhotonics Australasia 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 和田山久広、岡部貴雄、谷口 淳
2. 発表標題 銀インクとアライメントマークを用いた 銀ナノロッドパターンの積層技術の開発
3. 学会等名 2018年度精密工学会春季大会学術講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----