研究成果報告書 科学研究費助成事業



交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文):本研究は基板表面に対して法線方向の構造設計自由度が高く、作製速度の速い、新しい3次元微細構造作製技術として磁場アセンブリ法を進化させ、この技術を用いて熱赤外線を選択的に反射するアンテナ構造を基板上に一括形成することにより、経済的に遮熱基板を実現することを目的とした。 従来の微細加工技術を用いて複雑なパターンを形成した2次元部品を、磁場アセンブリおよびUV照射による基板との融着を経て基板上に垂直配置することが出来た。従来法では作製困難な3次元パターンを1ステップで作製できたと言える。しかし、位置制御性が低い課題を克服することが出来ず、光学特性を取得することは出来なかっ た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

研究成果の学術的意義や社会的意義 本課題は2次元部品を基板上の任意の位置に自己配列させる技術を確立する点が最も難所であったため、2次元部 品の内部に設ける構造の複雑さは深く追求せず、ミクロンスケールの中空構造を設けるに留まった。それでも同 様の3次元構造を既存の微細加工技術で作製することは困難である。ミクロンスケールの3次元構造を1ステップ で簡便に作製可能であることを示すことが出来た点は将来の微細加工法の自由度拡大に貢献したと考える。ま た、異種材料を従来の格子整合性や無機/ポリマーの親和性ではなく、磁気的性質を利用して集積する可能性も 示した。

研究成果の概要(英文): The purpose of this research is to realize an economical thermal shielding structure by forming an antenna structure on a substrate that selectively reflects thermal infrared rays using the magnetic field assembly method, which is a new three-dimensional microstructure fabrication technology with a high degree of freedom in structural design in the direction normal to the substrate surface and a high fabrication speed.

Two-dimensional components with complex patterns formed using conventional microfabrication techniques were vertically aligned on a substrate through magnetic field assembly and fusion-bonding to the substrate by UV irradiation. It can be said that 3D patterns, which are difficult to fabricate using conventional methods, were fabricated in a single step. However, we were unable to overcome the problem of low position controllability, and were unable to obtain optical characteristics.

研究分野:光デバイス

キーワード: 磁場アセンブリ 微細加工 ナノマイクロ科学 アンテナ 遮熱 熱赤外線

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

集積回路や Micro Electro Mechanical System(MEMS)を構築するための基盤技術である、結晶 成長、リソグラフィ、ドライエッチングなどの半導体微細加工技術は、全て基板表面の面内あ るいは法線方向のいずれか一方だけを形成あるいは加工する2次元技術である。しかし、近 年、3次元実装、異種チップ集積、3次元フォトニック結晶、3次元メタマテリアル、バイオ チップなど、様々な材料を組み合わせた3次元のマイクロ・ナノ構造作製の需要が高まってき たため、層形成、描画、エッチングを繰り返す非常に煩雑な行程で対応している。3次元微細 構造を直接的に形成できる新しい手段として、収束イオンビームによる切削・堆積、多光子吸 収法による造形技術が出現したが、特殊な装置が必要、逐次処理のため加工速度が遅いなどの 理由で、限定的な利用に留まっている。

申請者は本課題実施前に、材料の磁気的性質を利用して、常磁性材料だけでなく反磁性材料 (一般に磁場に応答しないと認識されている地球上の大半の材料)も自己組織的に基板上に配 列させる技術の開発に取り組んでおり(以後、磁場アセンブリ法と称する。)、マイクロメー トルスケールの粒子を基板上の所定の位置に自己配列させる技術を確立していた。アセンブリ 対象を粒子から半導体プロセス技術で作製した2次元部品に換え、磁場アセンブリ法で基板の 所定の位置に直立させ、固定することができれば、1ステップで3次元微細構造を構築できる 新たな加工技術になると着想した。

2. 研究の目的

従来微細加工技術を用いて作製した2次元部品に磁気異方性を付与し、それを基板表面の所定 の位置に自発的に直立配置させ・固定する技術を確立する。技術の有用性を示すために、波長 8~15μmの熱赤外線を選択的に反射するアンテナ構造をガラス基板上に形成し、その遮熱特 性を評価する。

3. 研究の方法

(1)磁気異方性2次元部品の作製

永久レジストとして普及しているフォトリソ用ネがレジスト SU-8(Microchem 社)に、磁性ナ ノ粒子(Ferrotec 社)を分散し、ガラス基板上にスピンコートした。プリベークの際、図1のよ うに1対のネオジム磁石を配置し、基板面内方向に外部磁場を印加して、フォトレジスト層内 の磁性ナノ粒子を磁場と平行に配列させ、磁気異方性を付与した。フォトリソグラフィ、ポス トベーク・現像を経て2次元パターンを形成した後、基板を現像液に再度浸漬し、2次元部品 を基板から剥離した。



図1 磁気異方性2次元部品作製および基板上への磁場アセンブリの概要

(2)磁場アセンブリによる2次元部品直立配置&固定法の確立

反磁性の基板表面に設けた凹パターンを磁性流体で覆った状態で、基板表面の法線方向に外部 磁場を印加すると、図2(a)に示す有限要素法(Multiphysics ACDCmodule,COMSOL)による数 値計算結果のように、凹パターン内部(特に狭部)の磁束密度が高くなる。常磁性部品は磁気ポ テンシャルエネルギーを低く保つため、磁束密度の高い領域に自発的に移動することを2次元 部品の磁場アセンブリ実施前に常磁性粒子を用いて確認した(図2(b))。この結果を踏まえ、基 板上の凹パターンも反磁性である SU-8 で作製した。常磁性微粒子を基板に半永久的に固定し た方法と同様に、2次元部品が凹パターン溝内で直立した状態で UV を照射すると、凹パター ンと2次元部品の接触している面が融着し、2次元部品を基板に強固に固着することができ る。



外部磁場印加下における磁性流 体中の磁束密度分布 (有限要素法)

常磁性粒子の磁場アセンブリで 得られた規則配列(発表論文掲 載号の表紙に採用された。)

図2 磁性流体で覆った反磁性凹パターン内の外部磁場印加下における磁束密度分布および実際に磁場アセンブリ&UV照射融着した常磁性粒子規則配列の電子顕微鏡像

(3)熱赤外線反射アンテナ構造の設計および作製

厳密波構造理論(DiffractMod,RSOFT)を用いて透過・反射・吸収スペクトルを算出し、8~15 μ mに高反射率を示す最適形状を探索する。図 3(a)に示すような凸パターンの光学特性を試算 すると図 3(b)となり、15 μ mの電磁波を選択的に反射することが分かったため、この形状を 出発点とした。実際の構造の光学特性は赤外・テラヘルツ時間分解分光装置を用いる予定であ った。この数値計算では凸構造の物性値を酸化鉄の値で代用したため、測定結果を数値計算の パラメータにフィードバックし、計算精度を向上することを予定していた。



図3 凸型パターンを正方格子上に配列させた構造の透過・反射・吸 収スペクトルの厳密波結合理論による計算結果。(a)計算に用いた単 位構造。凸パターンの素材は酸化鉄を仮定した。単位構造のx,y方向 に周期境界条件を設定した。(b)得られた反射・透過・吸収スペクトル。 15 µm付近で選択的に反射率が高くなるため断熱ガラス窓としての 応用が期待できる。

4. 研究成果

(1)磁気異方性2次元部品の作製

フォトリソ用永久ネガレジスト SU-8 (SU-8 3005, Microchem)に磁性ナノ粒子 (EMG1400, FerroTec)を加え、6時間以上振とうした。磁性ナノ粒子のこれをガラス基板上に 1,000 rpm、30 秒の条件でスピンコートし、65°C、90 秒→95°C、5 分→65°C、1 分の条件でソフトベ ークした。この際、レジスト層の面内方向にナノ粒子の磁気モーメントを揃えるために、1 対 のネオジム磁石で試料を挟み込むよう配置し、レジスト層に磁気異方性を付与した。続いて、 通常の露光、ポストベーク (65°C、90 秒→95°C、2 分→65°C、1 分)、現像 (Propylene glycol methyl ether acetate, PGMEA で 1 分)を経て、ガラス基板上に磁気異方性 2 次元パターンを 得た。更にガラス基板を現像液 PGMEA に浸し、周波数 28 kHz の超音波洗浄にかけると、ガ ラスと SU-8 の接着性が元々低いため、2 次元部品は PGMEA 中に剥落した。遠心分離と上澄 み液の交換を繰り返し、溶媒を PGMEA からイソプロビルアルコール(IPA)、純水に順次置き 換え、最終的に磁性流体 (EMG707,FerroTec) 中に分散させた。

2 次元部品の磁場アセンブリに先立ち、UV 照射による部品と基板の融着条件の割り出しを行 う際は、市販の常磁性粒子(φ2.8 μm, M-270, Dynabeads)を用いた。

(2)磁場アセンブリによる2次元部品直立配置&固定法の確立

2次元部品を誘導する凹パターンは SU-8 で作製した。SU-8 の塗布、ソフトベーク条件は 2 次元部品を作製した際と同じ条件を適用した。露光にはコンタクトリソグラフィ(内製装置) あるいはマスクレスリソグラフィ装置(DWL66plus, Heidelberg)を用いた。ポストベーク、 現像条件も 2 次元部品作製と同じ条件を用いた。この基板表面を(1)で作製した 2 次元部品を分 散した磁性流体で覆い、更に溶媒の蒸発を防ぐためにカバーガラスを被せた状態で、基板表面 に対して垂直方向に外部磁場を印加した。この状態で UV スポット光源(LC8、浜松ホトニク ス)を用いて紫外線を照射し、基板側の SU-8 と 2 次元部品を融着し、構造を半永久的に固定 した。この後、磁性流体を除去し、乾燥した構造体を得た。

図4に得られた2次元部品が基板上に直立した構造の例を示す。図2(b)の常磁性粒子を用いた磁場アセンブリと同様、常磁性を付与された2次元部品は凹パターンに引き寄せられ、自動的に溝内に収まると予想していたが、問題点が2つ浮上した。



1. 凹パターンの側壁の傾きが急である場合、開口部の縁で局所的に磁束密度が大きくなるため、2次元部品が縁で捕獲され、溝内に侵入できない。

- 2. 外部磁場を印加すると2次元部品は最寄りの凹パターンに接近する。しかし、外部磁場を 印加した際に磁性流体が形成する磁束密度分布は2次元部品の向きを修正する程強力では ないため、2次元部品の方向と凹パターンの方向が一致しない場合が圧倒的に多く、2次元 パターンが凹パターン内に侵入出来ない。
- 3. 外部磁場を印加した際に2次元部品の近傍に凹パターンがない場合は、基板平面上に直立する。

問題点1.はマスクレス露光機で側壁が傾斜した構造を作製することで解決した。問題点2.は対称性の高い球をアセンブリする際は問題にならなかった。アセンブリ対象が球から板へと構造の対称性が低くなったために新たに発生した課題である。2次元部品を磁性流体に分散して供給している限り、2次元部品と凹構造の向きが一致する確率は極めて低いため、アンテナ構造を基板上に密に配列させるまでに至らなかった。そのため、研究計画の(3)熱赤外線反射アンテナ構造の設計および作製 は初期設計の検討から更に進めることは出来なかった。

2次元部品を規則配列させることは達成出来なかったものの、既存の微細加工技術では実現が 難しい複雑な構造を持つ3次元構造を、磁場アセンブリ法で1ステップで基板上に形成可能で あることを示すことが出来た。今後は凹パターン位置に合わせて2次元部品を弱い力で貼り合 わせ、外部磁場を印加した際、2次元部品が直立するのと同時に凹構造内に侵入するプロセス を新たに考案し、2次元部品のアセンブリ収率を向上させる方法を確立する予定である。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件(うち査読付論文 1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 Takidani Shoya、Aoki Kanna、Fujii Minoru | 4.巻 1 |
|---|-------------|
| 2.論文標題 | 5 . 発行年 |
| One-Step Discrete Symmetric Arrangement of Magnetic Microspheres with Nanoscale Spacing Immobilized by Ultraviolet Irradiation toward Plasmonic Resonators | 2018年 |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| ACS Applied Nano Materials | 6055 ~ 6062 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |
| 10.1021/acsanm.8b01166 | 有 |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| 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 | - |

〔学会発表〕 計2件(うち招待講演 0件/うち国際学会 1件)

1. 発表者名

Kanna Aoki, Shoya Takidani, Takuma Yamamoto, Minoru Fujii

2.発表標題

Remote assembly of magnetic and nonmagnetic microspheres into discrete symmetric geometries using external magnetic field, and their permanent fixation

3 . 学会等名

2019 Photonics and Electromagnetics Research Symposium (国際学会)

4 . 発表年 2019年

1.発表者名

青木画奈,瀧谷昇哉,山本琢磨,藤井稔

2.発表標題

磁場アセンブリ法で形成した2次元および3次元マイクロ構造体の微細構造制御

3.学会等名

第66回応用物理学会春季学術講演会

4.発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

学術論文 Takidani Shoya、Aoki Kanna、Fujii Minoru, "One-Step Discrete Symmetric Arrangement of Magnetic Microspheres with Nanoscale Spacing Immobilized by Ultraviolet Irradiation toward Plasmonic Resonators," ACS Applied Nano Materials, 6055~6062, 1 (2018) は掲載号の表紙として採用。

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 |
|---------------------------|-----------------------|----|

7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8.本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|