

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 12日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（S）

研究期間：2007～2011

課題番号：19106003

研究課題名（和文） 積層微細構造を広範囲一括で金型転写する技術の開発

研究課題名（英文） Molding multi-layered precise structures widely and seamlessly

研究代表者

中尾 政之（NAKAO MASAYUKI）

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号：90242007

研究成果の概要（和文）：

高効率光学素子のための積層微細構造を安価に製造する方法として、型転写することを試みた。具体的には、薄膜に微細構造を転写し、それを積層する繰返し積層法と、あらかじめ屈折率の異なる材料を積層したものに高速で型をプレスし、同時に型転写する一括せん断法の2種類である。また、ロールを用いて連続で微細構造を型転写する方法も開発した。

研究成果の概要（英文）：

New replication methods of large-area multi-layered micro/nanostructures were developed. We proposed and demonstrated two methods; iterative imprint method in which thin films are molded and bonded repeatedly and high-speed shearing method in which multilayered thin films preliminarily deposited are sheared together. We also developed roller-imprinting that continuously replicates micro/nanostructures.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	32,900,000	9,870,000	42,770,000
2008年度	15,400,000	4,620,000	20,020,000
2009年度	13,800,000	4,140,000	17,940,000
2010年度	12,300,000	3,690,000	15,990,000
2011年度	10,600,000	3,180,000	13,780,000
総計	85,000,000	25,500,000	110,500,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・生産工学・加工学

キーワード：ナノ・マイクロ加工 機械工作・生産工学 精密部品加工 超精密金型転写

1. 研究開始当初の背景

申請者は、微細構造を有する光学素子をハンコを押すように生産する方法を開発することを目標としていた。具体的には、ピッチが可視光波長の半分（たとえば200nm）の凸凹を有する導波路、金属のラインアンドスペースを有する偏光板、そして屈折率の異なる材料が波長程度のピッチで3次元に周期配列された多機能光学素子である。これらの微細

構造を大型液晶ディスプレイなどに用いることができれば、明度、偏光、色、視野角などを調整する複数枚のシート群を代替できる。申請者は、研究開始までに、ガラスまたは樹脂の表面に光の波長程度の周期構造を成形することで、新しい表示機用分光素子の開発を行ってきた。それを積層に拡張し、新しい阻止の開発および新しい製造方法の開発に発展させることが必要である。

2. 研究の目的

諸機能を融合した光学素子を製造するために、積層微細構造を広範囲一括で金型転写する技術の開発が、本研究の目的である。具体的には、広範囲一括で転写するためにロール形やブローチ形の金型を設計する。または、積層微細構造を転写するために、成膜プレス反復機構やせん断変形機構を設計して、それぞれの転写工程を実現することである。また、一般的な転写の基礎技術も深耕することも必要である。広範囲に転写可能な新たな金型材料の開発が不可避であり、たとえばロール形には隙間変動を吸収する弾性材料のゴム金型が必要である。

3. 研究の方法

本研究では図1に示すような積層微細構造を実現するために、図3に示すような2種類の方法を用いる。(a)せん断加工を用いた一括成形、(b)繰返し転写・接合を用いた積層微細構造の製造である。また、連続成形を目指したローラを用いた微細構造の製造、光学素子アプリケーションの一つとして反射防止構造の生成を行った。

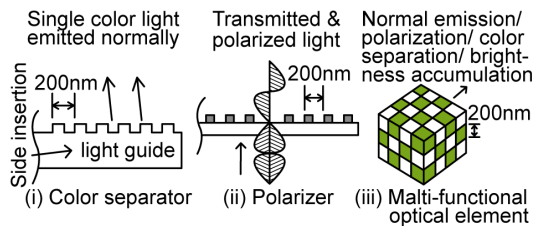


図1. 積層光学素子の例

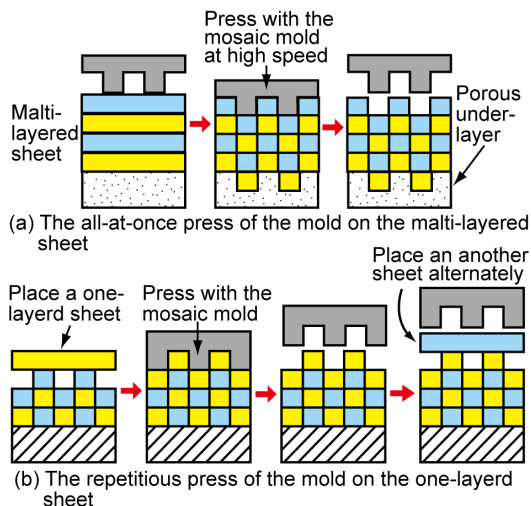


図2. せん断加工と繰返し加工の概要

4. 研究成果

本研究の成果を以下の4点に分けて説明する。

(1) せん断加工を用いた積層微細構造の

製造

- (2) 繰返し転写・接合を用いた積層微細構造の製造
- (3) ローラを用いた積層微細構造の製造
- (4) 酸化鉄ナノワイヤを用いた反射防止構造の生成

(1) せん断加工を用いた積層微細構造の製造

Si と SiO₂ を交互に計8層成膜した。各層の厚さは200nmである。下地膜はAlの蒸着膜で、体積変化することが機能として要求される。型を高速でプレスすることで、上部から下部まで一括でせん断することを試みた結果が図3である。静的にプレスした場合、上面は成形できているが、多層膜の下部はダレていることがわかる。それに対して高速でプレスした場合、上部から下部にかけて多層膜がシフトしていることがわかる。シフトし始める条件は歪み速度で1000/sであることがわかった。

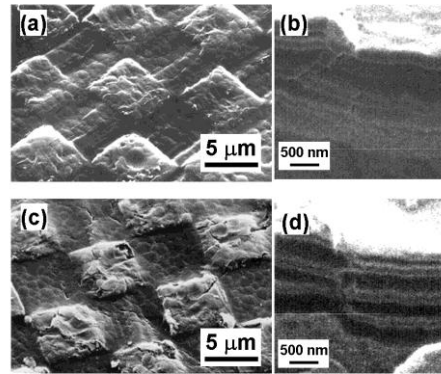


図3. 高速プレスでせん断した積層微細構造 (a)静的プレスした多層膜のSEM像, (b)断面SIM像, (c)高速プレスした多層膜のSEM像, (d)断面SIM像

次に、サブミクロンパターン成形実験を行った。Ni電鍍でピッチ1μm、深さ300nmのモザイクパターンを作製し、プレス実験を行った。厚さ70nmのSiO₂薄膜をAu下地の上に成膜し、速度14m/sでプレスした。その結果を図4に示す。SiO₂膜がせん断され、押されていない部分が上に残っていることがわかる。ただし、SiO₂膜厚100nm以上だと、Ni電鍍型が変形し、加工できなかった。型の強度が課題である。

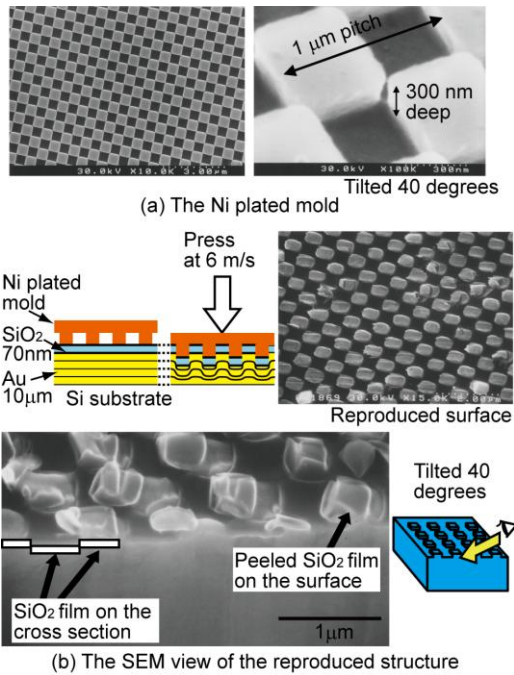


図4. 高速せん断加工を用いたサブミクロンパターンの転写実験結果

(2) 繰返し転写・接合を用いた積層微細構造の製造

転写および接合を繰り返すことで積層微細構造を製作する方法を開発した。その概要を図5に示す。まず、基材になる厚さ $25\mu\text{m}$ のポリメチルメタクリレート (PMMA) フィルムに熱転写する。次に、厚さ $1\mu\text{m}$ の薄いフィルムを同様に転写する。このフィルムを先の $25\mu\text{m}$ のフィルムにのせ、熱接合する。 800nm ピッチのホールパターンを2層接合したものの断面 SEM 像を示す。2層目の穴が元よりも小さくなっているのは、接合時の温度で樹脂が軟化し、変形したと考えられる。

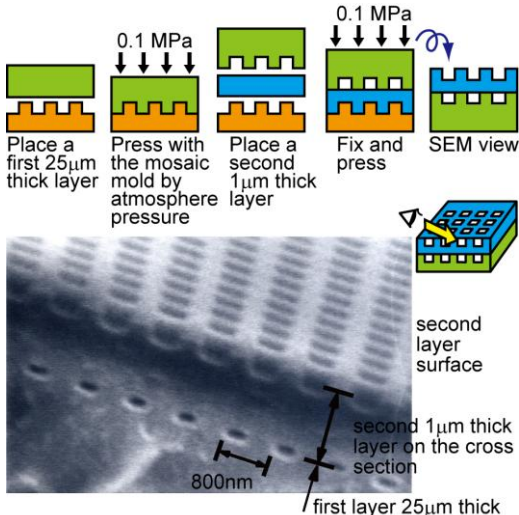


図5. 繰返し成形を用いた積層微細構造

転写中の樹脂の型への充填度合を観察する方法を提案した。型の上に樹脂を乗せ、隙間を真空引きする。すると、樹脂上面に1気圧の圧力がかかる。この方法を用いれば、片当たりが防ぐことができ、均一な成形が可能となる。また上面がフリーであることから、図6のような光学系を作製した。樹脂越しに型の微細構造部に光を当て、反射分光された赤色の光をモニターすることで、充填量がわかる。(a)から、充填されると反射分光量が最初の約0.2に減少することがわかった。次に、成形した樹脂を平坦樹脂に押付け、同様に反射分光量を測定した。加熱速度 $1^\circ\text{C}/\text{min}$ の場合は約 80°C で、 $1.5^\circ\text{C}/\text{s}$ では 95°C で充填されることわかった。すなわち、接合する際には、なるべく加熱速度は大きいほうが良いということがわかった。

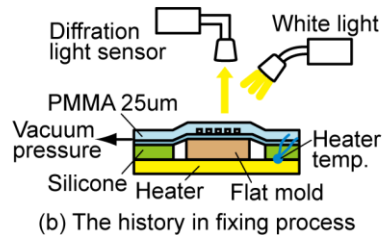
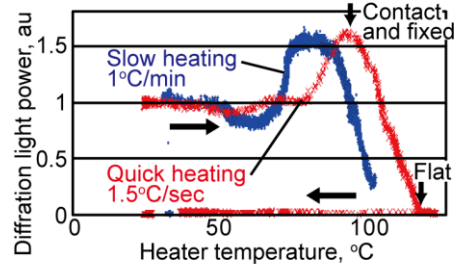
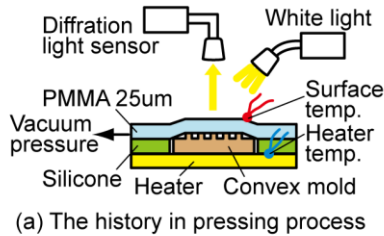
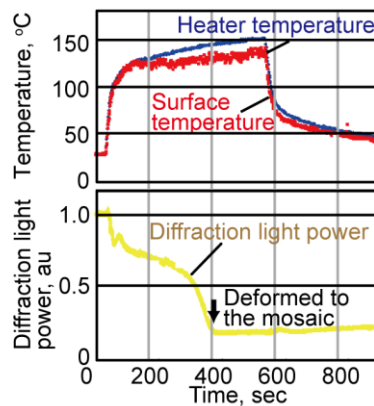


図6. 真空プレスと光干渉法を用いた充填状態の測定

(3) ロールを用いた微細構造の製造

ロール型を用いて、(2)の転写・接合繰返しプロセスを連続的に行う方法を開発した。図7に、その連続プロセスの例を示す。薄いフィルムは、空气中で自身を保持できないので、転写するまでバックアップフィルムに貼り付けておく。成形のための温度と接合のための温度は異なるため、ロール内部には成形用ヒータと接合用ヒータは別に設置する。図8に製作したロール成形装置を示す。幅100mm、送り速度10mm/s、圧力1MPaで成形可能である。図9は、厚さ1 μ mのフィルムを3層接合したものである。穴が塞がらないように、各相の転写直後にSiO₂を50nmずつ成膜した。

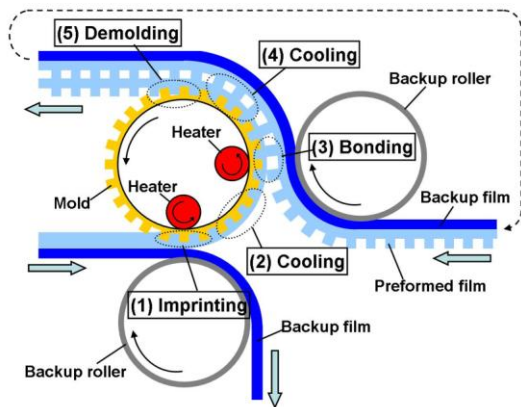


図7. ロールを用いた転写・接合繰返しプロセス



図8. ロール成形装置

(a) Ni mold (pitch: 800 nm)

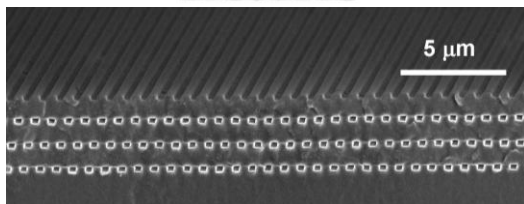
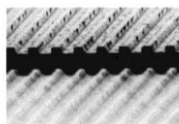


図9. ピッチ800nmのNi電鍍型(上)と4層微細構造の積層結果(下)

(4) 酸化鉄ナノワイヤを用いた反射防止構造の生成

光の波長以下のピッチ、光の波長程度の深さの凸凹は、樹脂が占める平均断面積が徐々に変化するため、平均屈折率が徐々に変化する。その結果、表面でのフレネル反射が抑えることができる。この構造は電子ビーム露光を用いれば生成可能であるが、型とはいえ、大面積で安価に生成しなければ、大形ディスプレイや低コストカバーなどに用いることはできない。そこで申請者はFeを大気中で加熱するだけで生成される酸化鉄ナノワイヤを用いてナノコンアレイを生成することを提案した。図10にその概要を示す。ナノワイヤにCrを成膜し太くする。その後、異方性エッチングによってエッチングとリデポの繰返し効果で、先細りの形状にしつつ基板の平らな面を無くすことに成功した。この構造を型にして、シクロオレフィンポリマー(COP)に熱転写したサンプルの反射率を測定した結果を図11に示す。平坦表面の反射率が4%であったものが0.3%以下にすることができた。この方法を用いれば、リソグラフィを用いずに型を生成することができる。

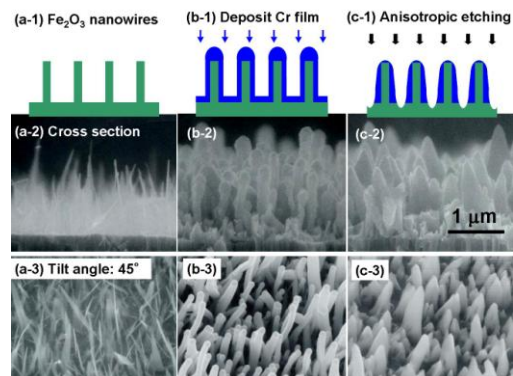


図10. 酸化鉄ナノワイヤへの成膜・エッチングによる反射防止構造の生成

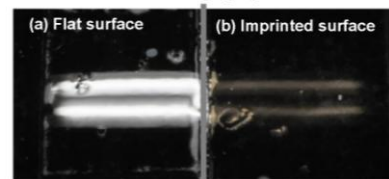
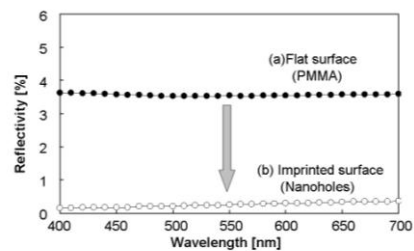


図11. 図10を型として熱成形した樹脂の反射率と蛍光灯を写しこんだ結果

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計21件)

- ① K. Nagato, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Injection compression molding of high-aspect-ratio nanostructures”, J. Vac. Sci. Technol. B, Vol. 29, 06FG10-1-4, 2011, 査読有
- ② K. Nagato, S. Sugimoto, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Iterative roller imprint of multilayered nanostructures”, Microelectron. Eng., Vol. 87, 1543-1545, 2010, 査読有
- ③ S. Hattori, K. Nagato, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Rapid injection molding of high-aspect-ratio nanostructures”, Microelectron. Eng., Vol. 87, 1546-1549, 2010, 査読有
- ④ H. Suzuki, K. Nagato, S. Sugimoto, K. Tsuchiya, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Iterative imprint for multilayered nanostructures by feeding, vacuum forming, and bonding of sheets”, J. Vac. Sci. Technol B, Vol. 26, 1753-1756, 2008, 査読有
- ⑤ T. Hamaguchi, H. Yonemoto, K. Nagato, K. Tsuchiya, M. Nakao, “Single-pass forming for three-dimensional microstructures by high-speed shearing of multilayer thin films”, J. Vac. Sci. Technol B, Vol. 26, 1771-1774, 2008, 査読有
- ⑥ M. Nakao, K. Nagato, H. Suzuki, T. Nishino, H. Yonemoto, H. Kaito, T. Hamaguchi and K. Tsuchiya, “Sub-wavelength Pitched Cubic Mosaic Multi-layer Precisely Pressed by Nano-features Mold for Multi-functional Optical Elements”, The 41st CIRP Conference on Manufacturing Systems, Vol. 1, 449-452, 2008, 査読有
- ⑦ K. Nagato, Y. Kojima, K. Kasuya, H. Moritani, Tetsuya Hamaguchi, and Masayuki Nakao, “Local Synthesis of Tungsten Oxide Nanowires by Current Heating of Designed Micropatterned Wires, Applied Physics Express”, Vol. 1, 014005: 1-3, 2008, 査読有
- ⑧ M. Nakao, K. Tsuchiya, T. Sadamitsu, Y. Ichikohara, T. Ohba, T. Ooi, “Heat transfer in injection molding for reproduction of sub-micron-sized features”, The International Journal of Advanced Manufacturing Technology, Vol. 38, 426-432, 2008, 査読有

〔学会発表〕(計53件)

- ① 中林良太, 下田誠, 長藤圭介, 井ノ上泰樹, 千足昇平, 丸山茂夫, 濱口哲也, 中尾政之, 「光導波路のための高速せん断加工の開発」, 2011年度精密工学会春季大会、2012年3月15日、首都大学東京 南大沢キャンパス
- ② 下田誠, 長藤圭介, 濱口哲也, 中尾政之, 「光学素子のための積層微細構造の製造」, 第3回マイクロ・ナノ工学シンポジウム(日本機械学会)、2011年9月26-27日、タワーホール船堀
- ③ 長藤圭介, 杉本俊太郎, 濱口哲也, 中尾政之, 「繰返しローラインプリントを用いた積層ナノ構造の製造」, 2010年春季第57回応用物理学関係連合講演会、2010年3月19日、東海大学
- ④ 服部俊太郎, 長藤圭介, 濱口哲也, 中尾政之, 「射出成形を用いた高アスペクト比ナノ構造の転写」, 第70回応用物理学学会学術講演会、講演予稿集 9a-D-4, pp.642、2009年9月9日、富山大学
- ⑤ 西野俊樹, 森井洋, 鈴木秀明, 笹井健史, 土屋健介, 濱口哲也, 中尾政之, 「多層一括プレスによるフォトニック回路形成技術の開発」, 精密工学会春季講演会, pp. 895-896、2008年3月17日、明治大

〔その他〕

ホームページ等

<http://hockey.t.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中尾 政之 (NAKAO MASAYUKI)

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号：90242007

(2) 研究分担者

濱口 哲也 (HAMAGUCHI TETSUYA)

東京大学・大学院工学系研究科・特任教授

研究者番号：90345083

土屋 健介 (TSUCHIYA KENSUKE)

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：80345173