

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 23 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2015

課題番号：26709004

研究課題名(和文) レーザ表面加熱を用いた超高速ロールナノ転写

研究課題名(英文) High-speed roller nanoreplication using laser surface heating

研究代表者

長藤 圭介 (NAGATO, Keisuke)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50546231

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、ナノ構造型表面をレーザーで直接加熱することを利用して超高速でロール連続熱転写する技術を開発することである。幅100mmの金型が設置可能なロール成形装置を設計・製作し、ガラスロール越しに100Wのレーザーを集光照射、アクリル系光学樹脂表面にサブミクロン～10ミクロンのパターンを転写することに成功した。レーザーの加熱・冷却現象を有限要素法を用いて解析し、パワー密度が高く、照射時間が短いほど転写速度が早いことがわかった。また、反射防止構造、光取出し構造を実際に成形し、光学特性を調査した。

研究成果の概要(英文)：This project developed a method of replication of nanostructures by direct heating surface of roller mold. We designed and assembled a roller replication system, in which 100-mm-wide mold is setup and 100W laser is focused and irradiated on the surfaces of the optical polymer film. The system successfully replicated submicron - 10 micron patterns. The phenomena of laser heating and cooling of the polymer surface by finite element method. It is clarified that high power density and short irradiation time resulted in high replication speed. Furthermore, an antireflection structure and light extraction structures were replicated and their optical properties were investigated.

研究分野：ナノ成形加工学、ナノ材料加工学

キーワード：超精密金型転写 高速組立成型 マイクロ・ナノデバイス トライボロジ ナノ材料

1. 研究開始当初の背景

表面にナノ構造を有する基板は、高密度光記録媒体、高効率偏光子、無反射表面などの先進光学素子だけでなく、次世代磁気ディスクの候補であるパターンドメディア、細胞培養プレートなどとして期待されている。これら高付加価値の基板を安価に生産する方法としてナノ構造を有する金型を樹脂薄膜に押し当て転写させるナノインプリントリソグラフィ (NIL) が盛んに研究されている。一方で、バルク表面に構造を刻印する熱プレスは、レジストパターンニング・エッチングというプロセスに対して、直接加工であり、高価な半導体プロセス装置が不要である。申請者はこれまでに、最低限の熱源での転写と、冷却時間を短縮することを目的に、型表面を直接加熱して T_g 以上にしその後ただちに深さ方向の熱伝導で冷却するレーザーアシスト/成形法を開発してきた。図1に示すように、型と基板をその外から加熱・冷却する従来方法では、システムの熱容量と深さ方向の熱伝導率の下限界から、サイクルタイムの短縮に限界があった。それに対して、表面のみを直接加熱冷却する方法では、転写したい箇所のみ加熱し、直ちに深さ方向に冷却を起すので、原理的に短サイクルタイム・低エネルギーでの成形が可能となる。

一方、ロール成形は、(i)送り方向の連続加工のため、大面積の高スループット加工に有利であること、(ii)接触原理が1次元であるため片当たりを抑えられること、(iii)樹脂の流動が送り方向に順番に行われるため離型が容易であるというメリットがあり、有効な加工法といえる。ただし、従来の熱ロール成形をナノ構造に用いようとする、金型の熱伝導率が樹脂のそれよりもはるかに高いため、転写後の冷却時間が足りず、離型後リフローを起こし転写できない。

ロール成形で、微細構造を転写することができれば、ディスプレイ用低反射フィルム、照明用光取出しフィルムなどの光学フィルムのみでなく、今後期待されているフレキシブルディスプレイのための配線フィルムの製造にも応用可能である。

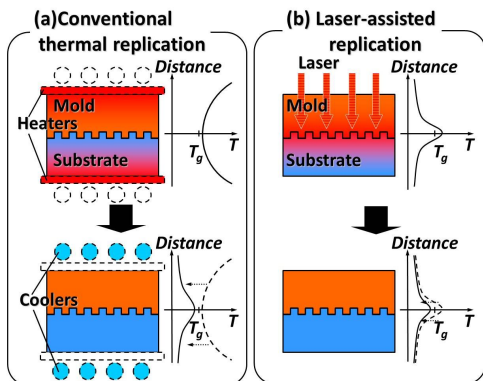


図1 従来の熱成形とレーザーアシスト表面加熱の熱の流れの違い

2. 研究の目的

本研究では、レーザー表面加熱を熱ロール成形に応用し、コスト面で有利な円柱状ロールを用いてかつ超高速で大面積ナノ構造を成形する技術を開発することが目的である(図2)。具体的には、ロール型表面に DLC (ダイヤモンドカーボン) 熱吸収層を設け、透明ガラスロールで樹脂フィルムを抑えながらその裏面からレーザーを照射する。接触部分の前半にレーザーをスキャンしながら照射し型表面を加熱、成形完了直後にレーザー照射領域を抜けた部分は型および樹脂の深さ方向に熱伝導で冷却され、その直後に離型する。

ところで申請者はこれまでに、レーザーアシスト成形だけでなく表面加熱射出成形、ロール成形なども用いて、回折格子分光素子、反射防止構造、照明用光取出し構造などの大面積ナノ構造アプリケーション用に PMMA (ポリメチルメタクリレート) を主とする光学用樹脂に対し高スループット加工を行ってきた。本研究は、これらの大面積ナノ構造で発揮する光学フィルムをこれまでにない高速で成形することを目的とする。大面積ナノ構造の用途として、フレキシブルディスプレイやフレキシブルセンサ、高効率燃料電池の電極など次世代のデバイスも現在注目されている。

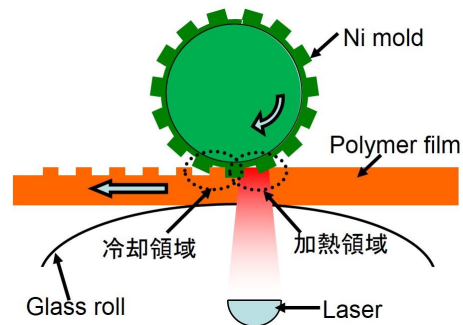


図2 レーザ加熱を用いた微細構造転写

3. 研究の方法

設計・製作したロール成形システム(図3)を用いて、レーザーパワー密度、照射時間すなわちスキャン速度、フィルム搬送速度を転写に与える影響を明らかにする。現在、転写範囲は実験後上部から光学顕微鏡または走査形電子顕微鏡 (SEM) を用いて観察、原子間力顕微鏡 (AFM) で測定する方法を用いている。しかしこれでは、高速転写時に懸念されるナノパターンの転写率を調べるには不十分で、アスペクト比1であれば AFM で観察可能であるが、それ以上の反射防止構造などの場合は集束イオンビーム (FIB) で断面を作製し、今回導入予定の高解像度 SEM を用いて測定する必要がある。パワー密度が高いほど、また照射時間が短いほど転写速度が高いことが考えられるが、本研究で開発する方法で

定量的に明らかにする。

また、金型表面にレーザーがあたり、熱を吸収しフィルム表面を加熱、熱伝導で冷却する様子を実験的に示すことは難しいため、非定常熱伝導解析を用いて、加熱・冷却現象を予測、実験における樹脂の転写幅と比較することで、その確からしさや金型とフィルムの接触熱抵抗の見積を行う。

さらに、光の波長以下の凹凸形状を有する反射防止構造、直径 30 ミクロンのマイクロレンズアレイ形状を有する光取出し構造の金型を用意し、レーザーアシストロール成形でパターン転写し、光学特性を実際に測定する。

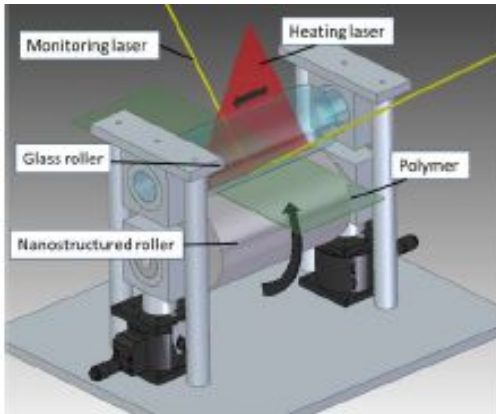


図3 レーザアシストロール成形システムの概要

4. 研究成果

図4に、レーザーアシストロール成形を用いて得られた、ナノスケールドットパターンおよびマイクロスケールレンズパターンのPMMAへの転写結果を示す。ナノスケールパターンでは転写率100%が達成されたのに対して、マイクロスケールパターンでは転写率は93%であった。ただし、マイクロスケールにおいて、表面の1ミクロン以下の凹凸も転写されていることから、樹脂は一度金型パターンへ充填され、ヒケが起きたものと考えられる。これは、樹脂への熱伝導およびガラス転移点以上への加熱が不十分で、残留応力が原因であると考えられる。

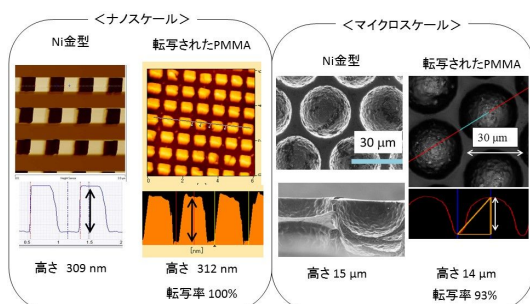


図4 レーザアシストロール成形を用いたナノマイクロスケール構造の転写結果

次に、有限要素法解析を用いて、金型表面からの加熱、および金型・フィルム内部への冷却現象を計算した。図5(a)に100 Wのレーザーを照射し、33 ms たったときの温度分布を示す。この後、加熱条件を解除すると、熱は、Ni および PMMA 内部へ伝導し、Ni および PMMA の表面の温度は下がる。この100 W以上であった範囲を照射時間で割った値、すなわち転写速度をレーザーパワーと照射時間に対してプロットしたものが図5(b)である。このグラフに、実験結果を重ねて記入した。計算結果と実験結果の傾向は近いことがわかる。レーザーパワーが高く、照射時間が短いほど、転写速度が大きいことがわかる。これは、表面からの加熱速度が高いほど、内部への温度勾配が大きくなり、入熱量が少なくても表面の上昇温度が高くなることから説明できる。

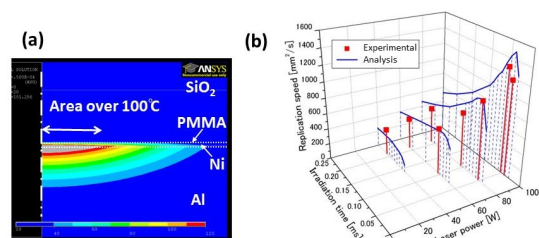


図5 レーザを照射したときの金型内部およびフィルム内部の熱伝導解析および、転写幅のレーザーパワー密度・照射時間依存性の実験結果・解析結果

次に、反射防止構造を転写した結果を図6に示す。図6(a)は、レーザーのスキャン軌道ピッチを十分広くし、転写幅を測定したものである。光学顕微鏡像から、転写されている範囲が黒くなっている。これを電子顕微鏡で観察すると、転写されている範囲は幅200 μm程度であった(図6(c,d,e))。このことから、スキャン軌道のピッチを160 μmに設定し、隙間なく転写することを試みた。その結果が図6(b)である。光学顕微鏡像では、転写が重なあわされた部分が観察することができず、隙間なく転写できることがわかった。

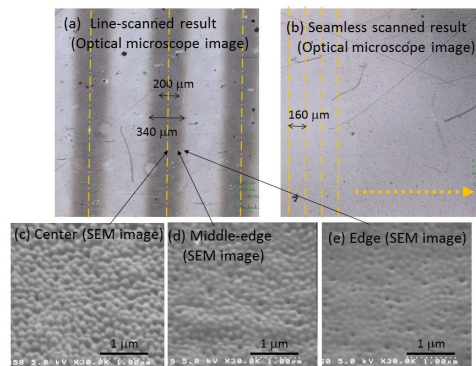


図6 反射防止構造のレーザーアシスト成形結果(スキャン軌道ピッチが広い場合と狭い場合)

この反射防止構造の光学機能を測定した。図7に、フィルム表面のみの可視光線の反射率を測定した結果を示す。パターンがない場合は、可視光全域において反射率は約4%で、パターンがある場合は、0.5%以下であった。パターン無しの4%は屈折率1.5程度の表面のフレネル反射率に相当しており、パターンがあると、その反射が抑えられていると言える。

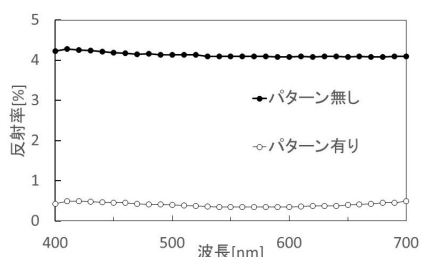


図7 反射防止構造ありとなしの反射率の実験結果

直径 $30\ \mu\text{m}$ 、高さ $15\ \mu\text{m}$ の半球状のマイクロレンズアレイの型を用いて、転写を試みた。レーザスキャン速度を変化させ、照射時間を変化させることで、どのタイミングでどのような充填が起きているかを調べた。その結果が図8である。0.035~1.4 s 相当の照射において、樹脂流動をとらえることができた。樹脂は金型表面を伝って、レンズ表面を優先に流れ、最後にレンズの形に成形された。これは、レーザが金型表面を直接加熱し、加熱された金型と接触した箇所の樹脂がまず加熱されガラス転移点以上になり、流動が起きる。次に、流動した樹脂は、金型との接触面積が増加しさらに加熱され流動する。この発散現象を説明する結果である。10 μm スケールにおいて、樹脂の流動が樹脂の熱伝導に比べて早いことがわかった。逆に、サブミクロンスケールでは、このような現象が観察されなかったため、そのスケールにおいては、樹脂の流動が樹脂の熱伝導と同程度または遅いことがわかる。

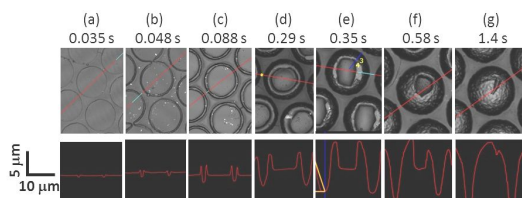


図8 光取出し構造の照射時間と転写形状の関係

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4件)

K. Takahashi, K. Nagato, T. Hamaguchi, M. Nakao, “High-speed replication of

light-extraction structure with thermal roller nanoimprinting”, *Microelectron. Eng.* 141 (2015) 285-288. 査読有, DOI:10.1016/j.mee.2015.03.069

K. Nagato, K. Takahashi, T. Sato, J. Choi, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Laser-assisted replication of large-area nanostructures”, *J. Mater. Process. Technol.* 214 (2014) 2444-2449. 査読有, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2014.05.025>

〔学会発表〕(計19件)

K. Nagato, “Laser-Assisted Imprinting of Microstructured Polymer Films”, World Expo on Materials Science & Polymer Engineering, Nov. 28, 2015, Dubai, UAE. (Invited)

Y. Yajima, K. Nagato, K. Takahashi, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Effect of Pressing Pressure on Filling Ratio of Microstructures by Laser-Assisted Imprinting”, *Micro Nano Engineering (MNE)*, Sep. 23, 2015, Hague, Holland.

K. Nagato, Y. Yajima, K. Takahashi, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Replication of antireflection structure for solar cells by laser-assisted imprinting”, *Asian Symposium on Materials and Processing (ASMP)*, Aug. 11, 2015, Lombok, Indonesia.

K. Takahashi, K. Nagato, T. Hamaguchi, M. Nakao, “High-Speed Replication of Light-Extraction Structure with Thermal Roller Nanoimprinting”, 40th *Micro and Nano Engineering (MNE)*, Sep. 25, 2014, Lausanne, Switzerland.

K. Takahashi, K. Nagato, J. Wang, T. Hamaguchi, and M. Nakao, “High-Speed and Low-Energy-Consumption Replication of Nanostructures with Laser-Assisted Roller Nanoimprinting”, The 58th international conference on electron, ion, and photon beam technology and nanofabrication (EIPBN), May. 30, 2014, Washington DC, USA.

〔その他〕

ホームページ等

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長藤 圭介 (NAGATO, Keisuke)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授
研究者番号: 50546231