

令和 6 年 6 月 15 日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20H02511

研究課題名（和文）3Dプリンタによるテラヘルツ波無線通信素子の形成に向けた金属コーティング技術

研究課題名（英文）Development of metallic coating technique onto 3D-printed polymer for fabrication of Terahertz wireless communication devices

研究代表者

百瀬 健（Momose, Takeshi）

熊本大学・半導体・デジタル研究教育機構・准教授

研究者番号：10611163

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,700,000円

研究成果の概要（和文）：3Dプリンタによりポリマー3次元構造体を形成し、表面を金属薄膜により被覆することにより、従来の金属切削加工では成しえなかった微細かつ複雑な構造を形成し、テラヘルツ波デバイス形成手法を検討した。伝搬損失を定量的に導出できる物理モデルを構築し、銅が最適膜材料であること、必要膜厚は膜のバルク比抵抗に依存し変化するが100-300nm程度であることを見出した。また、優れた段差被覆性を持つ超臨界流体薄膜堆積法(SCFD)を低抵抗な銅薄膜を3Dプリンタにより作製した複雑な3次元構造を有するテラヘルツ波デバイス内に均一に形成する技術を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代の高速無線通信技術としてテラヘルツ(THz)波通信の開発が各国で行われている。THz波通信システムは送受信機、導波管、アンテナなどからなるが、極細(数百 μm)かつ超高アスペクト比(数百)な導波管形成が課題となっている。ミリ波デバイスは金属の切削加工によりデバイスを形成してきたが、寸法の小さいテラヘルツ波デバイスでは難しい。本研究で構築した3Dプリンタによるポリマー3次元構造とSCFDによる金属膜被覆の組み合わせは本問題を解決できる可能性を秘めている。

研究成果の概要（英文）：We have investigated a method of forming terahertz wave devices by forming a polymer 3D structure using a 3D printer and coating the surface with a thin metal film to form fine and complex structures that could not be achieved by conventional metal cutting. A physical model was constructed to quantitatively derive the propagation loss, and it was found that copper is the optimum film material and that the required film thickness is 100-300 nm, depending on the bulk resistivity of the film. We also developed a supercritical fluid thin film deposition (SCFD) technique with excellent step coverage to form low-resistance copper films uniformly in terahertz wave devices with complex three-dimensional structures fabricated by a 3D printer.

研究分野：反応工学

キーワード：超臨界流体薄膜堆積法 金属コーティング テラヘルツ波 導波管 3Dプリンタ

1. 研究開始当初の背景

日本に限られた資源の中から新たな価値を創出し、持続可能な社会を構築するためには、情報の適切な収集、解析、活用が必須である。IoTの登場によって、センサ等の大量のIoTデバイスから得られるビッグデータを人工知能によってリアルタイムに解析・予測し、新たな価値を生み出す次世代社会像が見えてきた。ユーザー・膨大なセンサ群・データセンター間の大容量データトラフィックが喫緊の課題であり、中でも、ネットワーク末端の無線通信がネックである。そのため、現行のマイクロ波(cm波長)・ミリ波(mm波長)に代えて、次世代の高速無線通信技術としてテラヘルツ(THz)波通信の開発が各国で始まっている。

THz波はエレクトロニクス分野の高周波極限である一方、フォトニクス分野の低周波極限であり、技術開発の難しい周波数領域であった。しかし、電子回路(エレクトロニクス)の高速化やレーザー技術(フォトニクス)に基づいた波長変換技術の高度化等によりTHz波を発生・検出する技術が急速に発展している。結果、THz波通信システムをなす送受信機、導波管、アンテナのうち、極細(数百 μm)かつ超高アスペクト比(数百)な導波管形成が課題となっている。導波管寸法はIEEE規格で定められており、導波管長さを2cmと仮定すると、通信周波数1THzでのアスペクト比は160と非常に大きい(管径は $125 \times 250\mu\text{m}$)。加えて、将来的な高速・大容量化に向けて更なる高周波化が計画されており、さらに断面寸法が縮小すると共にアスペクト比が増大する。例えば4THzでは、管径は $20\mu\text{m}$ と細く、アスペクト比は700にも達する。

3次元構造形成技術としては金属の切削加工や半導体のリソグラフィが知られるが、外形は大きく内部は小さい導波管への使用は難しく、さらに曲管・クランクを形成できないなど構造自由度に本質的課題を抱えている。そのため、3Dプリンタによる構造形成と金属コートを組み合わせた新規手法への期待は大きい。各種3Dプリンタの中でも、解像度が高いポリマーの光造形が本用途には適しているが、THz波はポリマーを透過してしまうため、管内壁に金属膜をコートする必要がある。3Dプリンタの性能向上により微細構造形成の用途は既に立っている。一方、極細・超高アスペクト比管への金属コートは既存手法では難しく、新たな製膜技術が求められている。研究代表者の検討してきた超臨界流体薄膜堆積法(Supercritical Fluid Deposition, SCFD)は、超臨界流体中における金属化合物の化学反応を利用した製膜法であり、特にナノスケールの超高アスペクト比構造への均一製膜や埋め込みに優れており、各種材料系にて実証してきた。一方で、本研究で取り扱うマイクロスケールの構造への適用ならびにポリマー表面への製膜については知見がない。

2. 研究の目的

ポリマー微細構造形成と金属コートからなる本手法は寸法、自由度ともに制約が限りなく小さく、さらに簡便かつ安価であるため理想的である。本研究では、SCFDを発展させ、独自の導波管形成手法として確立することを目的とした。なお、最適コート材料およびその必要膜厚も不明であり、材料選定から手法構築、デバイス実証まで包括的に検討した。

3Dプリンタの開発により我々は、如何なる"形状"の構造も形成する技術を得た。造形材料は多岐に渡るが、こと高解像度に限れば、"材料"はポリマーに限定される。そのため、機能性材料の表面コートが可能になれば、"形状"×"材料"の無限の選択性が生まれることになり、新たなデザインルールに基づく新規材料・デバイスの創成が可能となる。そのためには、超高アスペクト比構造に適用可能な表面コート技術が必須であり、SCFDはそれを実現する高い可能性を有している。本研究では、その典型例としてTHz波無線通信に注力した。

3. 研究の方法

研究は以下4点からなる。

- (1) コート材料の選定： 材料に入射した電磁波が e^{-1} に減衰する距離を表皮深さと呼び、小さい金属ほど染み出しを効率的に防げる。しかし、THz領域での物性は不明な点が多く、また低周波の電波工学、高周波の光工学での表式が異なるため、計算による絞り込みは難しく実験的に追及する。両式の外挿、常磁性/強磁性体、自然酸化膜の有無を考慮し、5-10種の候補材料を決める。SCFDにより各種材料を製膜するには都度原料選択・条件探索が必要となるため、既存のスputタリングを用いても評価できる手法を用いる。具体的には、Si基板上に浅溝を複数形成し、候補材料を製膜した後に重ね、THzスペクトル測定機により透過率を測る。膜厚の異なるサンプルを複数用意し、表皮深さおよび材料固有の伝搬損失を切り分けて評価した。
- (2) 超臨界流体中におけるポリマー構造の変形防止： 超臨界 CO_2 はポリマーに触れると内部に含浸し、その後の減圧時に膨張することでポリマーに亀裂や変形を生む。既報の溶解度データに基づき、極力溶解させない加圧・昇温および減圧・降温経路を設定し、 CO_2 を導入・排出する。また、昇降圧速度も検討する。
- (3) 製膜手法の検討： 超臨界 CO_2 中において有機金属化合物を H_2 還元し薄膜を形成するSCFDは、反応場である超臨界流体が液体と気体の性質(溶解能と拡散能)を併せ持つため、原料を

高濃度かつ高速に3次元構造内に供給でき、アスペクト比100の溝に対しても均一な膜形成が可能である。3次元構造内では、原料の深部への拡散と内壁面での製膜による消費が同時進行しており、このバランスにより濃度分布ひいては膜厚分布が決まる。SCFDによる金属膜堆積はLangmuir-Hinshelwood(LH)型という非線形反応に従い、高濃度では成長速度が原料濃度に依存しない0次反応となるため、構造深部での濃度低下に対しても成長速度は低下しない。そのため、従来は特段の条件調整は必要なかったが、アスペクト比数百に対しては詳細検討が必要である。また、拡散係数も重要であり、独自開発した拡散係数測定手法を用い評価した。また、従来の製膜手法では、高アスペクト比構造への製膜が難しいことが分かり、新たな製膜手法を検討した。

4. 研究成果

研究成果を3. 研究の方法に示した4点に分け記述する。

(1) コート材料の選定:

既存の金属導波管での伝搬損失モデルに、THz波の金属薄膜表面・金属薄膜/ポリマー界面での反射、ならびに金属薄膜の実効的な電気伝導率を加えることにより、金属被覆誘電体THz波導波管内の伝搬損失モデルを構築した(図1.)。また、自然酸化の影響を受けないAuをモデル物質として本モデルの妥当性を実験的に検証した。本モデルは膜厚に依存した伝搬損失が算出できるため、損失を最小化するために必要な金属薄膜の厚さを決定できた。さらに、得られたモデルから、伝搬損失は金属薄膜からTHz波が染み出すことにより生じる侵入損失および金属薄膜の電気抵抗に由来するオーミック損失から説明できることを示し、金属薄膜の電気伝導率が必要膜厚と伝搬損失のいずれにも大きな影響を与えることも明らかにした(図2.)。膜厚だけでなく膜質の重要性を定量的に示したことは、実用化に向けて重要な示唆である。また、本モデルは様々な周波数にも応用でき、ミリ波では侵入損失が必要膜厚を決める一方で、THz波ではオーミック損失が必要膜厚を決めるなど、周波数に応じて主要な伝搬損失因子が異なることも明らかにした。続いて、金属薄膜の最適材料を検討した。前章で構築した伝搬損失モデルを使用し、複数の材料を検討した。まずはモデルがAu以外の材料にも適用できることを実験的に示した。続いて、必要膜厚、伝搬損失の両面から各金属材料を定量的に評価した。いずれも薄膜の実効的な電気伝導率に大きく依存するため、THz波デバイス用金属薄膜材料としてCuとAuは同等かつ最適であることを理論、実験の両面から示した(図3.)。

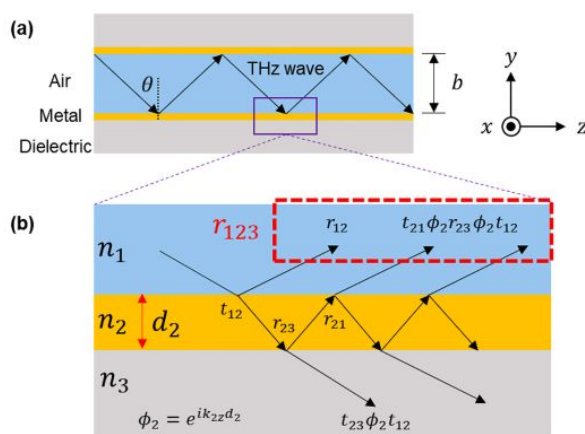


図1. 伝搬損失モデル

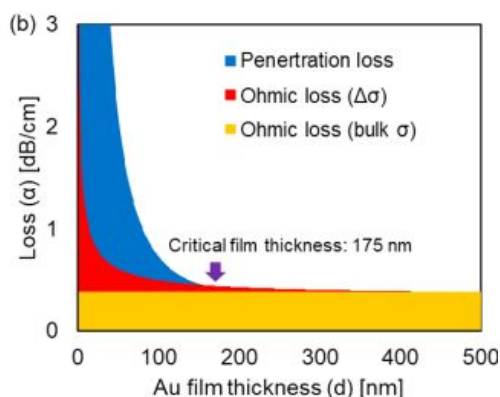


図2. 伝搬損失の内訳

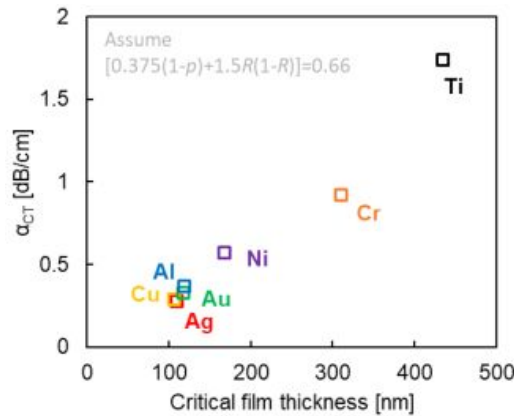


図 3. 各種薄膜材料における伝搬損失と必要膜厚の関係

(2) 超臨界流体中におけるポリマー構造の変形防止：

製膜材料および必要膜厚を選定できたことから，続いて 3D プリントにより造形したポリマーへの SCFD による金属膜体積について検討した。超臨界 CO₂ はポリマー中に溶解することが知られており，変形の原因であると考えた。反応器への基板搬送後は，CO₂ が導入され低温低压から高温高压へと変化する。CO₂ のポリマーへの溶解度を参照すると，低温低压で高く高温高压で低いため，昇温に伴い一旦ポリマー中に溶解した CO₂ が気化・発泡しポリマーを変形させる可能性が示唆された。そのため，CO₂ 導入温度，圧力，排気速度を変化させて基板の変形を調べた。反応器をプロセス温度まで昇温した後に CO₂ を加圧導入した場合に変形をある程度防止できた。さらに，準静的に減圧を行うべく排気速度を低下させたところ破断を完全に防止できた。

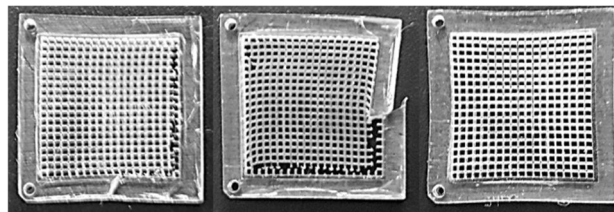


図 4. ポリマーメッシュ構造の超臨界の変形の様子：左；低温 CO₂ 導入 & 急速減圧，中；高温 CO₂ 導入 & 急速減圧，右；高温 CO₂ 導入 & 準静的減圧

(3) 製膜手法の検討：

SCFD 法による金属被覆誘電体 THz 波デバイス形成について検討した。従来通りの流通式製膜手法により製膜を試みたところ，良好な段差被覆性が得られなかった。検討を重ねたところ，LH 型を含む本系では，原料濃度が鍵であることが分かった。流通式製膜装置では，装置上流で原料を超臨界流体中に溶解させた後に反応器に原料を供給するが，原料の無用な分解を防ぐため，上流では低温，基板は高温に保つのが一般的である。しかしながら，原料の超臨界流体への溶解度は温度上昇と共に増加することが分かった。つまり，上流の原料溶解時点では原料溶解度が低く，高濃度で原料供給が難しいことが分かった。そのため，ナノスケール構造への製膜では流通式製膜装置で問題ないが，マイクロスケール構造への製膜を目指す本系では不適であることが分かった。そのため，閉鎖系製膜装置を検討した。粉末原料を設置した反応器を準備し製膜を試みた。原料が基板まで拡散するまでの間に反応器内内壁等に製膜し消費されるため，原料濃度が低下することが分かった。そこで，反応器を基板サイズより少し大きい程度の極々小さなものへと変更し，さらに溶解度に対して過剰量の原料を基板極近傍に設置することとした。これにより高アスペクト比構造への製膜が可能となった(図 5.)。以上，小体積・均熱型・閉鎖式 SCFD 反応器に大過剰の原料を導入する新たな製膜手法を開発した。これによりアスペクト比 100 の方形導波管に対しても均一薄膜形成可能なことを示した。このことは複数の THz 波素子を一体成型できることを示す重要な知見である(図 6.)。

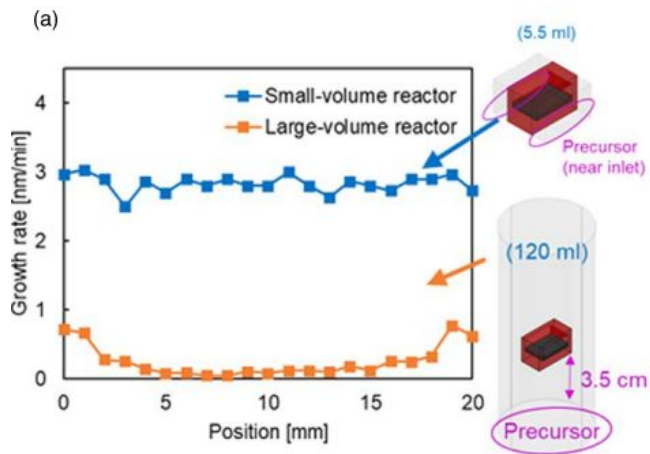


図5. 小型反応器と大型反応器を用いた場合の微細構造内の膜厚分布の違い

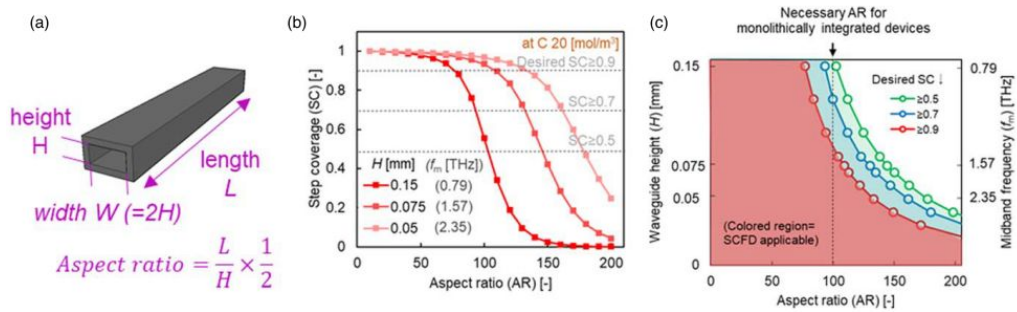


図6. 製膜結果から得られた物性値をもとに推算した均一な製膜が可能な構造範囲

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Huang Yuyuan, Deura Momoko, Shimoyama Yusuke, Shimogaki Yukihiro, Momose Takeshi	4. 巻 15
2. 論文標題 Supercritical fluid deposition for conformal Cu film formation on sub-millimeter-scale structures used to fabricate terahertz waveguides	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 075502 ~ 075502
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac737b	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 Huang Yuyuan, Konishi Kuniaki, Deura Momoko, Shimoyama Yusuke, Yumoto Junji, Kuwata-Gonokami Makoto, Shimogaki Yukihiro, Momose Takeshi	4. 巻 130
2. 論文標題 Development of a model for evaluating propagation loss of metal-coated dielectric terahertz waveguides	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 055104 ~ 055104
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0058662	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 Huang Yuyuan, Konishi Kuniaki, Deura Momoko, Shimoyama Yusuke, Yumoto Junji, Kuwata-Gonokami Makoto, Shimogaki Yukihiro, Momose Takeshi	4. 巻 131
2. 論文標題 Suitability of metallic materials for constructing metal-coated dielectric terahertz waveguides	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 105106 ~ 105106
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0075639	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 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Investigation of Cu coating by supercritical fluid deposition on high aspect ratio features for THz wave devices
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 師井 滉平, Huang Yuyuan, 出浦 桃子, 下山 裕介, 霜垣 幸浩, 百瀬 健
2. 発表標題 高アスペクト比構造へのCu-SCFDプロセス最適設計に向けたCu(tmhd)2のscCO2への溶解度と拡散係数の測定
3. 学会等名 化学工学会第53回秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中嶋佑介, Huang Yuyuan, 霜垣幸浩, 百瀬健
2. 発表標題 超臨界流体薄膜堆積法を用いた誘電体上の低抵抗率銅薄膜形成に向けた前処理条件の検討
3. 学会等名 化学工学会第88年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 3.Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Physical Model For Evaluating Propagation Loss Of Metal-coated Dielectric Terahertz Waveguides
3. 学会等名 46th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Propagation loss mechanism in metal-coated dielectric terahertz wave parallel-plate waveguide
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Suitability of metallic materials for metal-coated dielectric terahertz waveguides
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Huang Yuyuan・Deura Momoko・Shimoyama Yusuke・Shimogaki Yukihiro・Momose Takeshi
2. 発表標題 Supercritical fluid deposition of Cu for sub-millimeter-scale features
3. 学会等名 第52回化学工学会秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Material evaluation for inner metallic coating of hollow dielectric THz waveguides
3. 学会等名 45th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takeshi Momose, Kuniaki Konishi, Yu Zhao, Hirotaka Morishita, Tetsuya Tsuchida, Yuyuan Huang, Hiroyuki Yasukochi, Kentaro Soeda, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, and Yukihiro Shimogaki
2. 発表標題 Supercritical fluid deposition technique enabling metallic coating onto 3D-printed polymer for fabrication of high-aspect-ratio THz devices
3. 学会等名 45th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Film thickness dependence on propagation loss of coated metal in terahertz waveguides
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Impact of surface oxidation on wave propagation of Cu-coated THz waveguides
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuyuan Huang, Kuniaki Konishi, Momoko Deura, Yusuke Shimoyama, Junji Yumoto, Makoto Kuwata-Gonokami, Yukihiro Shimogaki, Takeshi Momose
2. 発表標題 Propagation loss of metal-coated dielectric parallel-plate waveguide in transverse-electric (TE) mode
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021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
研究分担者	小西 邦昭 (Konishi Kuniaki) (60543072)	東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・准教授 (12601)	

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
---------	---------