

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2014

課題番号：23246028

研究課題名(和文) 全方位ナノ修正加工を実現する空間光場姿勢制御フォトン励起型マイクロ加工工具の開発

研究課題名(英文) Development of laser-assisted micro removal processing tool controlled by the spatial light field allowing nanoscale correction for 3-D micro objects

研究代表者

高橋 哲 (Takahashi, Satoru)

東京大学・先端科学技術研究センター・教授

研究者番号：30283724

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,300,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ生産工学においてその重要度が高まっているレジスト、高分子、バイオ素材等のソフトマテリアルを加工対象として、50nm以下の空間加工分解能でナノ修正加工が可能な新しい概念の光触媒ナノ粒子工具チップ・マイクロ加工工具の提案およびその有効性検証を目的とした。まず、理論的側面から光放射圧に基づいた提案全方位工具基本構成を決定した。次に検証実験システムを開発し、提案概念を実現する上で最も重要となる、面内加工分解能がレーザー照射スポットサイズではなく、光放射圧により把持された光触媒ナノ粒子径で決定されること、さらに深さ方向に関しては10nm以下の加工分解能での除去加工が実現できることを実証した。

研究成果の概要(英文)：We proposed a new laser-assisted material-removal processing concept, yielding a potential nanoscale correction process for next-generation functional structured soft material such as nanostructured photoresist surfaces and micro 3-D objects fabricated using microstereolithography, which has been required in the nano production engineering. Theoretical analyses suggested the use of TiO₂ photocatalyst nanoparticles trapped by a remotely controlled radiation force, which allows not only remote processing based on an inherent property of light energy, but also fine process resolution beyond the focusing diffraction limit. Experimental analyses verified that the proposed method can provide fine process resolution with the lateral resolution beyond the diffraction limit and with the depth resolution less than 10 nm.

研究分野：機械工学、生産工学・加工学

キーワード：超精密加工 ナノ修正加工 ソフトマテリアル

1. 研究開始当初の背景

大きさが数十 μm から数 mm の微小機械を創製するマイクロマシン技術分野において、次世代の高機能発現微細構造デバイスを実現するため、複雑三次元微細構造加工技術の更なる発展が求められている。そのような中、半導体加工技術の微細性を決定するレジスト構造や、近年発展が著しいマイクロ光造形等の人工的高分子材はもちろん、DNA、タンパク質といった生体分子も含め、ソフトマテリアルからなる三次元微細構造の高精度形状創製技術はますます重要度が高まってきており、特に、微細な修正除去加工を実現できる手法の確立が求められている(図1)。

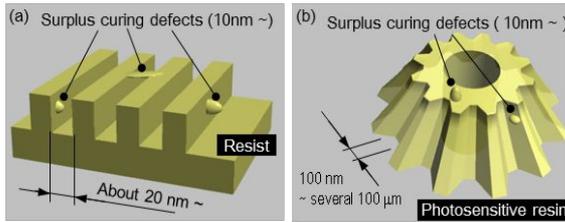


図1. 全方位型の微細修正加工が要求される三次元微細構造の微小欠陥例, (a)半導体プロセスによる微細周期構造, (b)マイクロ光造形による3次元マイクロ構造。

2. 研究の目的

前節の背景の下、具体的な加工技術仕様として、数十 μm から数 mm のソフトマテリアル三次元微小物体に対して、50nm 以下の加工分解能(最小除去加工単位)で、三次元的に除去修正加工が可能な新しい概念の三次元微細加工工具の提案、およびその有効性検証を目的とする。

3. 研究の方法

提案手法は、これまで主に建材の防汚等の比較的マクロな用途に用いられてきた酸化チタン光触媒をマイクロ加工工具の機能性先端チップとして適用するという独創的な特色を有する。特に酸化チタン光触媒の微細加工分野への応用例としては、半導体リソグラフィへの適用を目指した例[1]や、CMPプロセスの機能性スラリーとして適用された興味深い例[Doiら]等が挙げられるが、多くは、二次元面内加工に特化もしくは準じたものである。

本研究においては、酸化チタン光触媒のナノ粒子を、光放射圧で三次元的にハンドリングすることで、ソフトマテリアル構造体に対して全方位からの微細除去加工を実現可能な加工原理を有する新しい概念の空間光場制御フォトン励起型マイクロ加工工具の開発を目指す(図2)。光エネルギー特有のリモートコントロール性を有した加工原理でありながら、ナノ光触媒を介在させ、加工試料への作用サイズを二次的に局所選択させることで、通常、レーザーマイクロ加工において問題となる回折限界律速の影響を回避する。自身は変化をしない触媒作用をチップ加工機能として適用することは、加工時に工

具チップに力学的、化学的な負荷が集中しないことを意味し、従来のAFM応用加工技術等が本質的に有していた加工中のチップ摩耗・破損の問題を、原理的に回避可能といった実践的な特色・意義を有する。

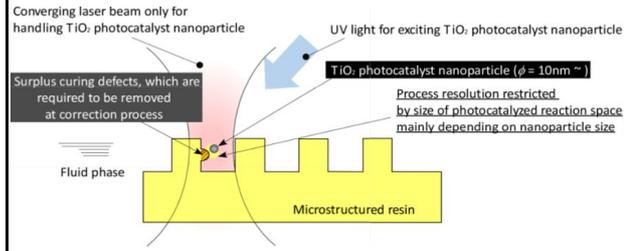


図2. レーザートラップされた酸化チタン光触媒ナノ粒子による全方位ナノ修正加工法の概念図。

4. 研究成果

(1)酸化チタン光触媒ナノ粒子工具ハンドリング特性の理論解析

光放射圧により酸化チタン光触媒ナノ粒子を全方位工具チップとして三次元ハンドリングできるか理論的に解析を行った。図3に解析モデルを示す。従来トラップ実績の多い屈折率 1.5 程度の微粒子(ここでは SiO_2 粒子)と比べ、面内把持(r 方向)に関して大きな違いは認められなかったが、光軸方向把持(z 方向)に関しては特徴的な知見を得た(図4, 5)。粒径が 100 nm のときは、屈折率の極めて大きい TiO_2 粒子(屈折率: 2.97)は、勾配力に比べ相対的に散乱力が大きくなるため、トータルで押し込み力が発生し、三次元ハンドリングができない(図5)が、粒径を小さくすることで、相対的に勾配力の寄与が大きくなり、粒径 50 nm 以下では、 TiO_2 粒子でも全方位加工を実現する三次元ハンドリングが可能となる(図6)ことが分かった。

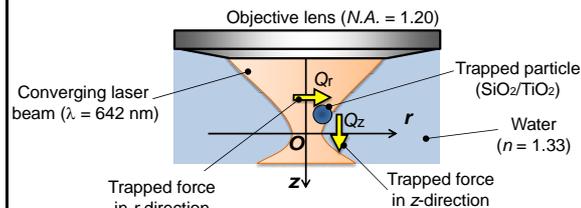


図3. 集光レーザービームがマイクロ/ナノ粒子に及ぼす光放射圧算出モデル。

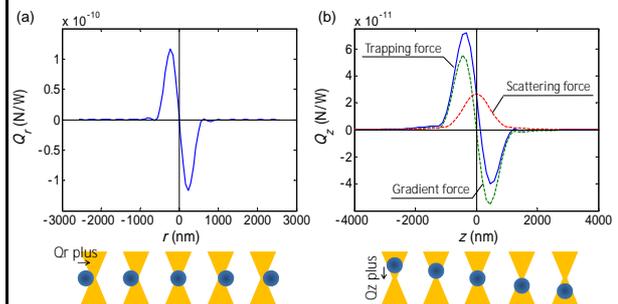


図4. SiO_2 粒子(粒径 100nm)に及ぼす放射圧, (a) r 軸方向, (b) z 軸方向。

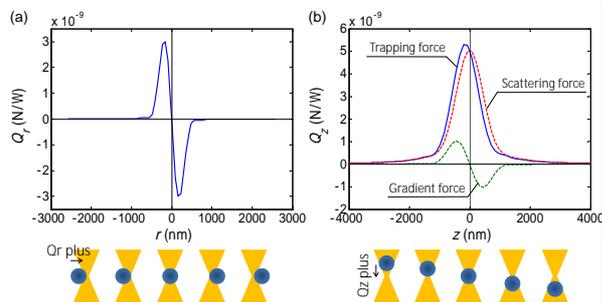


図5. TiO₂ 粒子 (粒径 100nm) に及ぼす放射圧,
(a) r 軸方向, (b) z 軸方向.

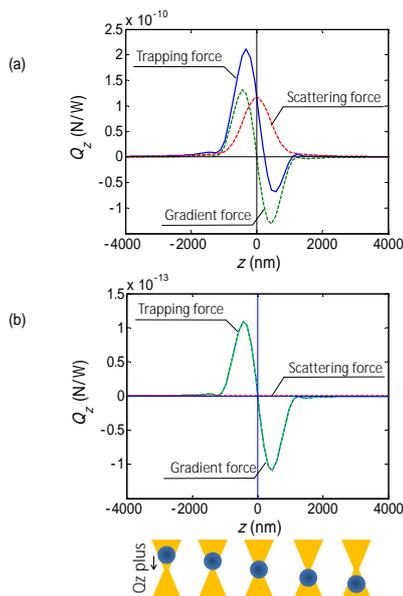


図6. TiO₂ 粒子の z 軸方向に及ぼす放射圧,
(a) 粒径 50 nm, (b) 粒径 5 nm.

(2) 提案工具概念の有効性実証実験

図7に、本研究で開発した提案概念実証用実験システムを示す。波長 642 nm の半導体レーザーをナノ工具放射圧制御用光源として利用した。ナノ工具の動的位置制御ならびにマルチトラップの実現のため、空間位相変調器を介在させた設計とし、水浸型対物レンズ (NA 1.20) により加工セル内において集光される。酸化チタンナノ粒子光触媒作用励起用としては、波長 365 nm の UV-LED 光源を採用した。LED から射出した UV 光を、広がりを持って対物レンズに入射させることで、レーザートラップ用半導体集光レーザーの光軸からのオフセット駆動領域、約 100 μm に亘り励起エネルギーの一括供給が可能となっている。加工セル全体は、XYZ 粗微動ステージに設置され、集光ビームスポットに対して三次元相対変位 (分解能 25 nm, ストローク 4 mm) を実現する。また、集光ビーム生成用対物レンズを、高分解能観察用対物レンズとして併用する無限遠補正型顕微拡大光学系および、落射型白色光源、レーザー光遮光用ノッチフィルターを実装することで、実時間でのインプロセス顕微拡大観察が可能なる構成となっている。

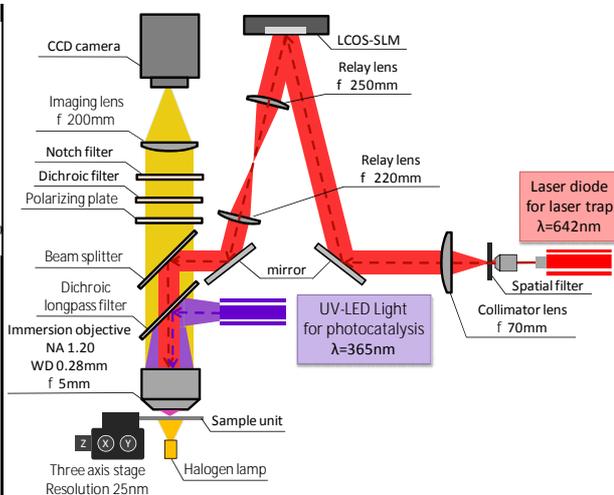


図7. 提案概念実証用実験システム.

本研究では、提案工具概念の有効性実証実験として、最も重要な、加工分解能は、照射レーザースポットではなく、TiO₂ 粒子で決まるのか、さらに 50 nm 以下の深さ除去加工分解能を実現可能なのかの二点に焦点を絞り実証実験を試みた。本実験では、実践性を考慮し、加工対象としては、マイクロ光造形樹脂 (JSR株: KC1162) を採用した。また、厳密な定量的評価のため、同樹脂を平面加工したものを除去加工サンプルとし、加工痕は原子間力顕微鏡 (AFM) で計測した。そして、上述目的の評価を厳密に実施するために、粒径 250 nm の酸化チタンナノ粒子 (ルチル型、昭和タイタニウム株: G1) を用いて、微細除去加工を試みた。図8に光放射圧によりコントロールされている光触媒ナノ粒子の顕微拡大観察像を示す。図9に除去加工部の原子間力顕微鏡測定結果例を示す。これは、コントロールされた光触媒ナノ粒子をサンプル面上加工目標点へ把持し、UV 照射を5分行ったときのものである。この際のビームスポット径は 410 nm であり、加工サイズが照射ビームスポットサイズではなく、工具サイズに依存していることが分かる。さらに、加工液内過酸化水素水濃度を適切に制御 (0.15 wt%) することで、Sub-10 nm 除去加工を実現することも出来た (図10)。

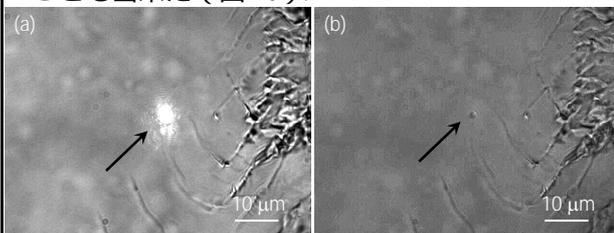


図8. 光放射圧によりコントロールされている光触媒ナノ粒子, (a) トラップビーム遮光フィルタなし, (b) トラップビーム遮光フィルタ設置時.

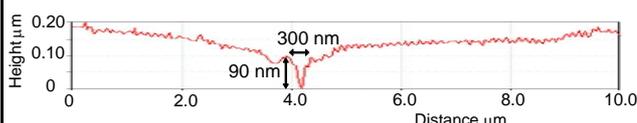


図9. 除去加工痕の原子間力顕微鏡計測像.

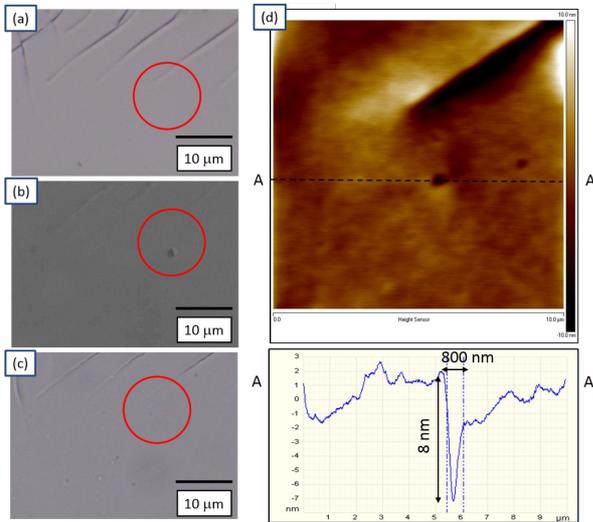


図10. 低濃度(0.15 wt%)過酸化水素水中における加工結果, (a)加工前のサンプル表面顕微鏡像, (b)加工中における光触媒ナノ工具, (c)加工後のサンプル表面顕微鏡像, (d)除去加工痕の原子間力顕微鏡像。

また、空間位相変調素子によりフーリエ変換ホログラフィを作成することでマルチトラップ同時加工が可能であることを確認した(図11)。

提案手法は、対象のソフトマテリアルと屈折率整合を施した液相を利用することで、レーザートラップビーム遮蔽部位のピンポイント除去可能も(図12)であり、今後、本手法の特徴である全方位加工性を更に発展させていく予定である。

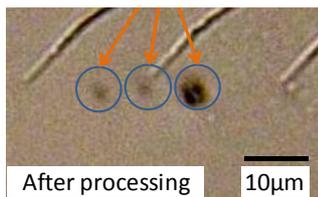


図11. 位相変調による同時多点加工検討実験。

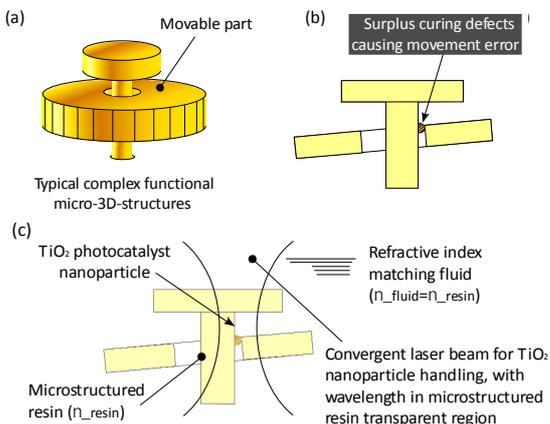


図12. 全方位加工による光路遮蔽部位ピンポイント除去加工の概念図, (a)加工対象, (b)遮蔽部に存在する微細欠陥, (c)屈折率整合溶媒を利用することで光路遮蔽部位への光触媒ナノ工具制御が可能。

<引用文献>

Kubo Wakana, Tatsuma Tetsu, Fujishima Akira, and Kobayashi Hironori. Mechanisms and resolution of photocatalytic lithography. J Phys Chem B, Vol. 108, pp. 3005-3009, 2004

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計4件)

S. Takahashi, Y. Horita, F. Kaji, Y. Yamaguchi, M. Michihata, K. Takamasu, Concept for laser-assisted nano removal beyond the diffraction limit using photocatalyst nanoparticles, CIRP Annals - Manufacturing Technology, 査読有, 未定(掲載決定済み), 2015, DOI: 10.1016/j.cirp.2015.04.041

H. Yoshigoe, S. Kadoya, S. Takahashi, K. Takamasu, Fabrication and Composition Control of Three-Dimensional Dielectric Metal Microstructure Using Photocatalyst Nanoparticles, 査読有, International Journal of Automation Technology, 8, 4, (2014) pp. 523-529, <http://www.fujipress.jp/IJAT/IJATE0080004.html>

S. Takahashi, Y. Kajihara, K. Takamasu, Submicrometer thickness layer fabrication for layer-by-layer microstereolithography using evanescent light, CIRP Annals - Manufacturing Technology, 査読有, 61/1, 2012, 219-222, DOI: 10.1016/j.cirp.2012.03.069.

T. Sekino, S. Takahashi, K. Takamasu, Fundamental study on nanoremoval processing method for microplastic structures using photocatalyzed oxidation, Key Engineering Materials, 査読有, 523-524, 2012, 610-614 DOI:10.4028/www.scientific.net/KEM.523-524.610.

[学会発表](計25件)

堀田陽亮, 加地史弥, 高橋哲, 高増潔, 光触媒ナノ工具に関する基礎的研究(第7報) - 回折限界を超えた微細除去加工の検討 -, 2015年度精密工学会春季大会学術講演会, 2015年03月17日, 東洋大学(東京都, 文京区)。

加地史弥, 堀田陽亮, 高橋哲, 高増潔, 光触媒ナノ工具に関する基礎的研究(第8報) - 放射圧動的制御による高安定トラップ -, 2015年度精密工学会春季大会学術講演会, 2015年03月17日, 東洋大学(東京都, 文京区)。

高橋哲, エバネッセント光の工学応用 ~

一括露光型マイクロ光造形法の露光エネルギーへの展開とその展望～,第 82 回レーザー加工学会講演会,2015 年 01 月 13 日～2015 年 01 月 14 日,産業技術総合研究所・臨海副都心センター(東京都,江東区).

堀田陽亮,吉越久倫,高橋哲,高増潔,レーザー集光点近傍の光触媒反応を用いた 3 次元微細構造創製に関する研究,日本機械学会 第 10 回生産加工・工作機械部門講演会,2014 年 11 月 15 日,徳島大学(徳島県・徳島市).

吉越久倫,堀田陽亮,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ粒子を用いた 3 次元微細構造創製に関する研究(第 4 報) - THz 波制御素子への応用可能性の検討 -,2014 年度精密工学会秋季大会学術講演会,2014 年 09 月 16 日,鳥取大学(鳥取県,鳥取市).
加地 史弥,山口 祐樹,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ工具に関する基礎的研究(第 6 報) - インプロセス工具位置観察ユニットの実装 -,2014 年度精密工学会秋季大会学術講演会,2014 年 09 月 16 日,鳥取大学(鳥取県,鳥取市).

Fumiya KAJI, Yuki YAMAGUCHI, Satoru TAKAHASHI, Kiyoshi TAKAMASU, Analysis of TiO₂ nanotool handling characteristics for microplastic structures based on laser trapping technique, the 15th International Conference on Precision Engineering, 2014 年 07 月 24 日, Kanazawa(Japan).
Hiroyuki TAHARA, Kodai MIYAKAWA, Toshimune NAGANO, Satoru TAKAHASHI and Kiyoshi TAKAMASU, Theoretical Analysis of the Spatial Process Resolution of Evanescent Light Exposure for Nano-Stereolithography, the 15th International Conference on Precision Engineering, 2014 年 07 月 23 日, Kanazawa(Japan).

S. Takahashi, H. Tahara, K. Miyakawa, Y. Kajihara, and K. Takamasu, Fundamental study on the world's thinnest layered micro-stereolithography using evanescent light, ASPE2014 Spring Topical Meeting, 2014 年 04 月 15 日, Berkeley(USA).

高橋哲,光によるマイクロ製造科学の新展開,第 34 回 理研シンポジウム「マイクロファブ리케이션研究の最新動向～光応用加工・精密計測,レーザー加工の最前線～」,2014 年 05 月 23 日,理化学研究所和光研究所(埼玉県,和光市).

加地史弥,山口祐樹,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ加工工具に関する基礎的研究(第 4 報) - 光放射圧による TiO₂ 工具チップ把持特性 -,2014 年度精密工学会春季大会学術講演会,2014 年 03 月 18 日,

東京大学(東京都,文京区).

山口祐樹,加地史弥,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ工具に関する基礎的研究(第 5 報) - 光放射圧制御加工の実験的検証 -,2014 年度精密工学会春季大会学術講演会,2014 年 03 月 18 日,東京大学(東京都,文京区).

Yuki Yamaguchi, Takahiro Sekino, Satoru Takahashi, Kiyoshi Takamasu, Study on Photocatalyzed Nano-removal Processing Tool for Microstereolithography, 5th International Conference of Asian Society for Precision Engineering and Nanotechnology (ASPEN2013), 2013 年 11 月 13 日, Taipei(Taiwan).

吉越久倫,門屋祥太郎,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ粒子を用いた 3 次元微細構造創製に関する研究(第 2 報) - 創製構造物の機能化に向けた実験的検討 -,2013 年度精密工学会秋季大会学術講演会,2013 年 09 月 11 日,関西大学(大阪,吹田市).

山口祐樹,加地史弥,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ工具に関する研究(第 3 報) - 微小除去加工特性の実験的解析 -,2013 年度精密工学会秋季大会学術講演会,2013 年 09 月 11 日,関西大学(大阪,吹田市).

H. Yoshigoe, S. Takahashi, K. Takamasu, Experimental Analysis of Laser-Assisted Microfabrication Using TiO₂ Nanoparticles, the 13th euspen International Conference (euspen2013), 2013 年 05 月 29 日, Berlin(Germany).

吉越久倫,向井康仁,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ粒子を用いた 3 次元微細構造創製に関する研究,2013 年度精密工学会春季大会学術講演会,2013 年 03 月 13 日,東京工業大学(東京都,目黒区).

関野貴宏,高橋哲,高増潔,光触媒ナノ工具に関する基礎的研究(第 2 報) - 光放射圧を利用した加工位置制御法の検討 -,2013 年度精密工学会春季大会学術講演会,2013 年 03 月 13 日,東京工業大学(東京都,目黒区).

宮川幸大,松澤亮,高橋哲,高増潔,エバネッセント露光型ナノ光造形法に関する研究(第 16 報) - 可変 NA 伝搬光・エバネッセント光ハイブリッド露光システムの開発 -,2013 年度精密工学会春季大会学術講演会,2013 年 03 月 13 日,東京工業大学(東京都,目黒区).

向井康仁,吉越久倫,高橋哲,高増潔,高誘電率マイクロ機能構造の創製に関する研究,2013 年度精密工学会春季大会学術講演会,2013 年 03 月 13 日,東京工業大学(東京都,目黒区).

21 高橋哲,回折限界超越を狙ったレーザー応用技術,日本オプトメカトロニクス協

- 会フotonテクノロジー技術部会講演会，
2013年03月05日，機械振興会館(東京都，港区)。
- 22 関野貴宏，高橋哲，高増潔，光触媒ナノ
工具に関する基礎的研究，2012年度精密
工学会秋季大会学術講演会，2012年09
月14日，九州工業大学(福岡県，北九州
市)。
- 23 宮川幸大，高橋哲，高増潔，エバネッセ
ント露光型ナノ光造形法に関する研究
(第15報)-エバネッセント露光におけ
る樹脂硬化メカニズムの解析-，2012年
度精密工学会秋季大会学術講演会，2012
年09月14日，九州工業大学(福岡県，北
九州市)。
- 24 高橋哲，光励起型三次元ナノマイクロ加
工法の新展開，第126回ラドテック研究
会講演会，2012年04月17日，学士会館
本館(東京都，千代田区)。
- 25 関野貴宏，高橋哲，高増潔，局在光制御
によるセルインマイクロファクトリに関
する基礎的研究(第1報)-酸化チタン
光触媒ナノ粒子による微細除去加工基本
機能の検証-，2011年度精密工学会秋季
大会学術講演会，2011年09月20日，金
沢大学(石川県，金沢市)。

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.photon.rcast.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 哲 (TAKAHASHI, Satoru)

東京大学・先端科学技術研究センター・教
授

研究者番号： 30283724

(2) 研究分担者

高増 潔 (TAKAMASU, Kiyoshi)

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号： 70154896

(3) 連携研究者