

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月24日現在

機関番号：82626
 研究種目：若手研究(B)
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23760062
 研究課題名（和文） 微小球マイクロオプティクスのおンデマンド型レーザー転写作製技術の開発
 研究課題名（英文） On-demand preparation of microspheres by laser-induced transfer
 研究代表者
 奈良崎 愛子 (NARAZAKI AIKO)
 独立行政法人産業技術総合研究所・環境技術研究部門・主任研究員
 研究者番号：40357687

研究成果の概要（和文）：本研究では、微小球マイクロオプティクスの新たなオンデマンド作製法開発を目指し、レーザー転写を利用した酸化物微小球の調製に取り組んだ。これまで酸化物の場合、レーザー照射時の原料膜破砕や転写サイズの微細化に課題があった。そこで有限要素法による原料膜内高温分布シミュレーションを実施、条件最適化を図った結果、ミクロンサイズの酸化物微小球のオンデマンド作製に成功した。

研究成果の概要（英文）：In this work, a novel technique for on-demand preparation of oxide microspheres has been developed by using laser-induced dot transfer. Based on the finite element simulation of laser-induced transient temperature, laser irradiation conditions were optimized for oxide materials, resulting in the site-selective deposition of ITO microspheres. The microsphere has a diameter of 1-3 μm , which was only one-tenth of laser focus size. Therefore, this technique is effective for the on-demand fabrication of oxide microspheres under atmospheric room-temperature conditions.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用光学・量子光工学

キーワード：光プロセッシング、レーザー転写、微小球、酸化物

1. 研究開始当初の背景

情報大容量化が著しい近年、情報通信分野はもちろん医療など各種分野で処理すべき情報は増加の一途であり、これを支えてきた電子デバイスの処理速度は限界に近づいている。そこで、光信号を電気信号に変換することなく、より高速な情報処理を可能にする光回路の実現は喫緊の課題であり、その小型集積化のニーズが高まっている。そのよう

な背景のもと、小型光回路の構成部品として、微小球マイクロオプティクスに期待が集まっている。微小球の特徴である非常に高い光の閉じ込め効果を活用し、小型光回路のアクティブ構成要素としての低閾値レーザーや、パッシブ構成要素としての微小空間での低損失導波を可能とする微小球導波路の開発が期待される。

微小球マイクロオプティクスの主な作製

法としては、あらかじめ配列用溝を微細加工した基板への微小球配列や、有機・無機ハイブリッド等の液体原料を用いたインクジェット法が挙げられる。前者は、サイズの揃った市販のポリスチレンやシリカ微小球を使用できる利点があるが、基板の前処理（微細加工）が必須であり、“欲しいもの（微小球）を欲しい場所に配置できる”オンデマンド方式とは言い難く、光回路の集積化には不利である。一方後者は、インクジェット法の特長であるオンデマンド方式を実現できるが、緻密な無機物質の微小球作製は難しい。最近では、上記手法で得難い高屈折な微小球マイクロオプティクスへのニーズが顕在化しており、高屈折率な酸化ガラスを原料として、その微粉を離型材を塗布した基板上で高温溶解し微小球化する手法も開発されている。この手法では、固体ガラス原料の利用により、酸化ガラスの広範な光物性を活かせる反面、微小球配列には別途煩雑なハンドリングを要するといった課題があった。

2. 研究の目的

そのような背景を鑑み、本研究では、基板前処理が不要、材料自由度が高く緻密な微小球を作製でき、微小球の自在配列が可能（オンデマンド堆積）といった特長を備えた、酸化ガラス微小球の新規作製法の開発を目標とした。

具体的には、独自技術として金属材料を中心に開発実績のある「レーザー誘起ドット転写法」について、酸化ガラス材料への適用を進め、酸化ガラス微小球のオンデマンド作製手法としての可能性を検討した。特に、これまで酸化ガラスの場合、レーザー照射時の原料膜破碎や転写サイズの微細化に課題があったため、その打破を目指した。

3. 研究の方法

本研究目的である微小球マイクロオプティクスのオンデマンド作製技術を開発するため、レーザー誘起ドット転写法における酸化ガラス微小球の形成メカニズムを実験およびシミュレーションの両面から追究し、微小球の精密な形状・位置制御を検討した。

レーザー誘起ドット転写法は、透明支持板上に成膜した固体原料を用い、透明支持板側からナノ秒紫外レーザーパルスで1ショット照射し、対向基板上へ微小球（正確には、底面にテラス構造を有する疑似微小球）を転写堆積させる手法である（図1）。レーザー集光径をミクロンスケールまで減じることで、サブスポット径の微小球転写を可能とし、従来法を凌駕する高分解能を達成できる。しかし酸化ガラスの場合、金属に比べ、レーザー照射

による原料膜の破碎が起こるなどプロセスウィンドウが極めて狭小化し、転写物の形状・堆積位置制御に課題が残る。このことが、国内外を含め、本手法の酸化ガラスへの適用が進められない大きな阻害因子となっている。そこで、実験ならびに有限要素法シミュレーションを併用した徹底した手法解明に取り組み、酸化ガラス転写での最適化を図った。

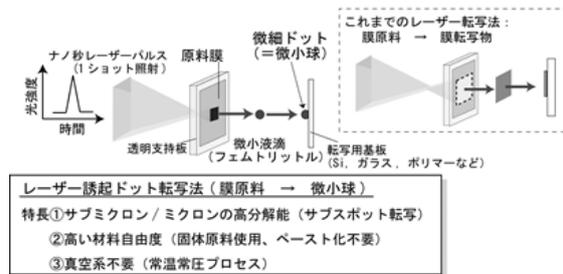


図1 レーザー誘起ドット転写法

(1) レーザー誘起ドット転写法による転写物形状の原料依存性検討：

本手法では、レーザー誘起局所瞬間加熱が転写駆動力となっており、加熱時の原料挙動が重要となる。微小球化には原料の一部溶解と融液状態での放出が必須と考えられる。よって、原料の比熱・融点等の熱物性は極めて重要であり、これらの物性値が既知の材料として、これまで微小球形成実績のある FeSi_2 合金原料膜と、今回酸化ガラスのモデル材料としてITO酸化ガラスを選択し、原料と転写物構造との関連を調べた。

本研究では、微小球を自在に配置できるように、マスクレスかつ高速にレーザー集光位置を制御できるガルバノミラー/ $f\theta$ レンズ走査系と高速描画に適した高繰り返し（ ~ 100 kHz）紫外ナノ秒全固体レーザー、更には原料膜と基板を個別に高速移動可能な高速2軸自動ステージシステムを用いたレーザー転写システムを構築した。

(2) 有限要素法によるレーザー照射時の伝熱シミュレーション解析：

パルスレーザー加熱では、極めて短時間に（本研究で利用しているナノ秒レーザーでパルス半値幅が30 ns程度）、レーザーの膜原料による光吸収とその格子緩和を経て膜の発熱が生じる。その結果、膜の急峻な温度変化はもちろん、過渡的溶解、時には蒸発などの相変化を生じるため、膜の温度変化は非常に複雑となり、レーザー照射パラメータとの相関を実験結果のみから予測することは難しい。また、酸化ガラスのレーザー転写時に生じる膜割れの主要因の一つに、膜の急峻な温

度変化に伴う膜応力の発生が考えられ、膜内の温度分布の様子を知ることは重要である。

そこで、有限要素法 (ANSYS) を用い、膜へのナノ秒レーザーパルス照射時の膜内高温分布のシミュレーションに取り組んだ。具体的には、本研究のレーザー誘起ドット転写法を図2のようにモデル化 (図2) した。実験条件と同様に、レーザー光源としてナノ秒レーザーパルス (波長 266 nm あるいは 355 nm、ビーム集光径 20 μm 、パルス半値幅 30 ns) を設定し、透明支持板であるシリカガラス側からシングルショットのみ照射、シリカガラスでの透過損失をゼロとして、シリカガラス/原料膜界面から入射、膜の光吸収に応じて吸収され、速やかに発熱源となると仮定した。上記の熱源からの発熱は、原料膜内で熱伝導、膜界面からガラスへの熱伝達とさらにはガラス内の熱伝導、膜表面から空気への熱伝達や輻射による損失過程を経るものとした。図2の膜表面以外のモデル境界は全て断熱条件とした。

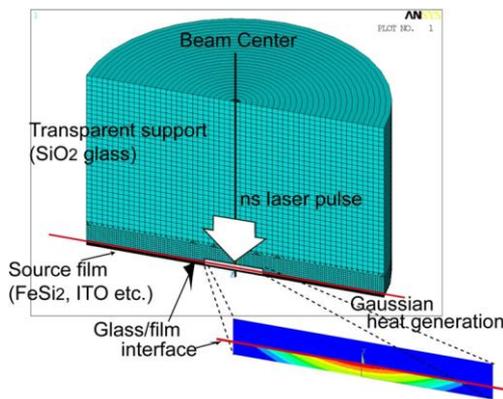


図2 有限要素法解析モデル

シリカガラス透明支持板および原料膜の熱物性値には温度依存性を考慮し、レーザーパルス照射開始時間からその後数 μs まで、非線形非定常解析を実施した。

(3) ITO 酸化物のレーザー誘起ドット転写法による微細ドットのオンデマンド堆積:

前記 (1), (2) で得られた知見をもとにレーザー転写条件 (レーザー照射条件、原料膜厚の調整) を最適化、これまで難しかった ITO 酸化物の微細ドット転写によるオンデマンド堆積を検討した。

4. 研究成果

(1) レーザー誘起ドット転写法では、これま

で我々の FeSi_2 微細ドット (図3) を始め、各種金属・合金原料を用いたドット転写が報告されてきた。それら原料のドット転写法では、本手法がレーザー溶融による微小液滴の基板表面への堆積とそれに続く液滴の固化 (時に結晶化を含む) 現象を基盤とすることから、液滴の表面張力と基板との濡れで細部は決まるが、堆積ドットは微小球に似た形状 (底面にテラス構造を有する微小球形状、以後、微小球と呼称) を有することが見出されている。また、その集光ビーム径、レーザーフルエンス、原料膜厚で微小球径を制御できることも我々が報告してきた。

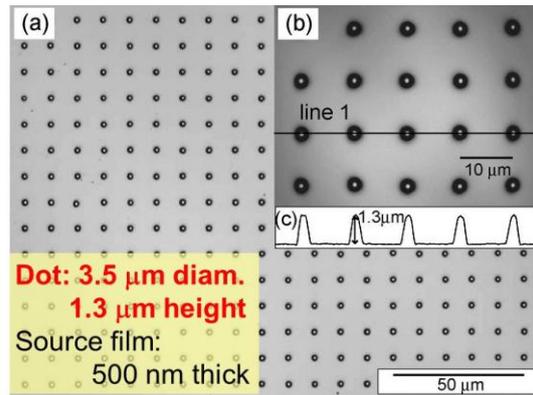


図3 FeSi_2 ドットアレイ (エキシマレーザー/縮小露光システムを用いたレーザー誘起ドット転写法により調製)。

図4に本研究で波長 355 nm の転写用レーザー光源を用いた場合の (a) ITO 酸化物および (b) FeSi_2 の転写微細構造を示す。原料膜厚はそれぞれ 600 nm, 500 nm である。 FeSi_2 の場合、レーザー波長やビーム形状の違いに関係なく、図3同様に微小球形状を有する転写微細構造が得られている。 FeSi_2 ドットの基板面内直径は約 5.5 μm であり、ガウシアンビーム集光径が約 14 μm であることから、集光径に対する転写物サイズの微細化が確認されている。一方 ITO の場合には、 FeSi_2 と異なり、微小球形状ではなく”ITO flower”とも呼称できる特異な形状が確認され、その面内サイズはほぼ集光径と変化が見られず、転写物の微細化は得られなかった。これは、先の”ITO flower”形状が転写後の原料膜に残された貫通孔形状と類似していたことから、以下のように考えている。レーザー照射により ITO 微小液滴を転写形成するほどに十分な溶融が進まず、レーザー照射部分が一部溶融して盛り上がり対向配置された転写用基板に接触し、一部原料膜が剥ぎ取られる。その結果、レーザー集光径と同サイズ且つ特異な構造の転写物が得られている。一方、厚さ 600

nm の ITO 原料膜において、ドット転写に十分な熔融状態を形成するためにレーザーフルエンスを上げた場合、残念ながらドット転写が起こる以前に、膜の破碎が生じてしまうことがわかった。

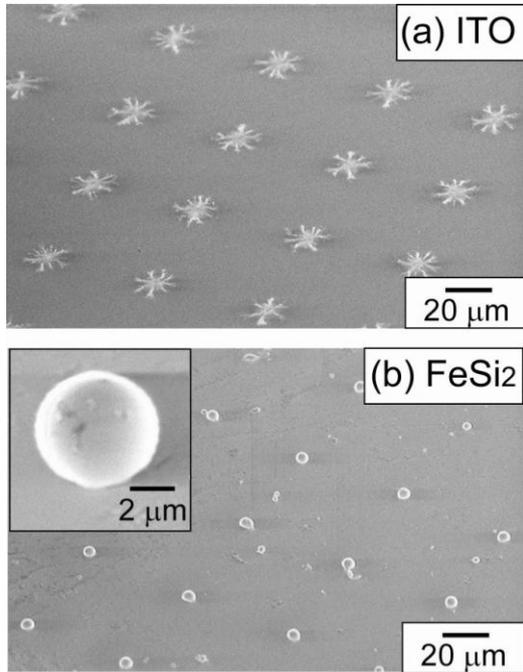
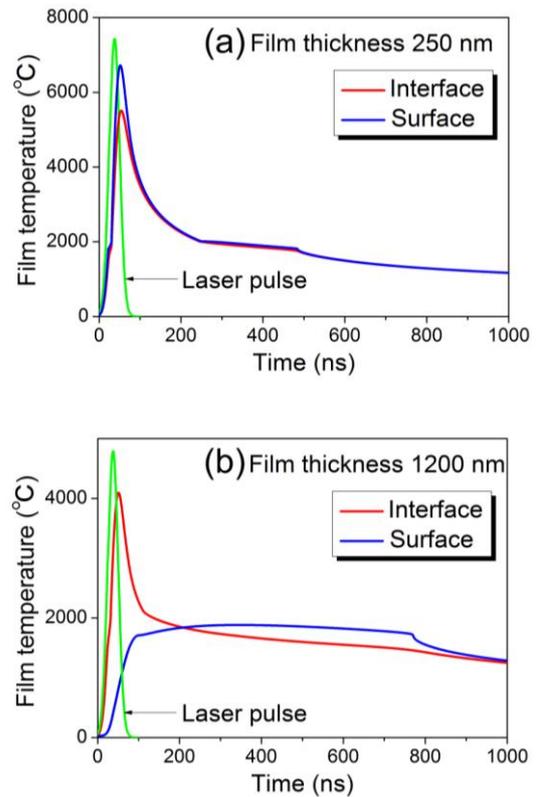


図4 転写用レーザー波長 355 nm の場合の (a)ITO 転写構造 (原料膜厚 600 nm) と (b)FeSi₂ ドットアレイ (原料膜厚 500 nm)。

(2) そこで、破碎の原因ともなるレーザー照射による膜内高温分布を調べドット転写に最適な膜厚を調べるため、有限要素法 (FEM) シミュレーションによる膜温度の膜厚依存性を検討した結果を図5に示す。図5 (a)は ITO 膜厚 250 nm、(b)は膜厚 1200 nm である。膜厚が 250 nm と薄い場合、膜表面温度変化は膜界面での温度変化に追従し、ほぼ同じ温度変化挙動を示す。しかし膜厚が 1200 nm と厚い場合、膜界面はレーザー光吸収による発熱で温度の急激な上昇その後の下降を示すが、膜表面では膜内の熱伝導および膜/ガラス界面での伝熱による熱損失により膜界面ほどには温度上昇が起こらず、その結果膜の界面と表面で大きな温度差が生じていることがわかる。このような温度差により生じる膜応力が酸化原料膜で散見される膜破碎の一要因と考えられる。

図5 波長 266 nm レーザー照射による ITO 原料膜温度変化の膜厚依存性。ITO 膜厚 (a)250 nm と (b)1200 nm の場合の ITO 膜/シリカガラス透明支持板界面 (赤線) と膜表面 (青線) 温度変化。緑線はレーザーパルス。



(3) 以上の結果を基に、酸化原料を用いたレーザー誘起ドット転写の実現を目指し、原料の一層の薄膜化ならびに ITO が高い吸収係数を有する波長 266 nm の転写用レーザー光源を用いた実験に取り組んだ。その結果得られた ITO 微細ドットのレーザー顕微鏡イメージならびに断面プロファイルを図6に示す。

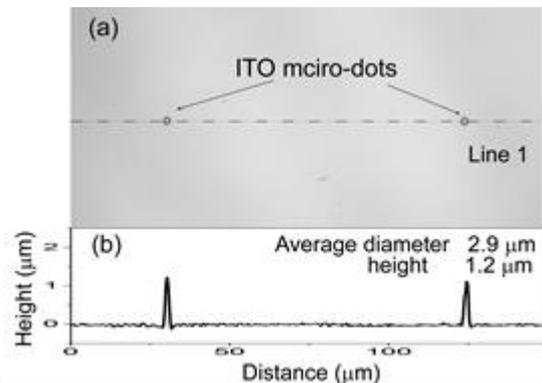


図6 ITO 微細ドット (原料膜厚 250 nm, レーザー波長 266 nm)。微小球形状を有する ITO 微細ドットが得られ、その平均直径は 2.9 μm、高さは 1.2 μm であった。よって、原料薄膜化等の転写条件最適化により、原料膜破碎を伴うことなく酸化

物微小球のオンデマンド堆積を実現することができた。

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1件)

- ① 奈良崎愛子、黒崎諒三、佐藤正健、川口喜三、渡邊歴、新納弘之、On-Demand Preparation of Microdot Patterns by Laser-Induced Dot Transfer、Journal of Laser Micro Nanoengineering、Vol. 7, No. 1, 2012, pp.77-80
DOI: 10.2961/jlmm.2012.01.0015

[学会発表] (計5件)

- ① 奈良崎愛子、レーザー転写による酸化物マイクロドット集積化技術の開発、大阪大学接合科学研究所研究集会、2013年3月18日、大阪大学(大阪府)
- ② 奈良崎愛子、レーザー誘起ドット転写法における転写挙動の考察：ダブルパルス照射効果、レーザー学会学術講演会33回年次大会、2013年1月30日、姫路商工会議所(兵庫県)
- ③ 奈良崎愛子、レーザー誘起ドット転写法の高度化研究：有限要素法による伝熱解析、第6回真空紫外光源およびレーザーアブレーションに関するワークショップ、2012年3月26日、産業技術総合研究所(茨城県)
- ④ 奈良崎愛子、レーザー誘起ドット転写法における転写挙動の考察：有限要素法によるレーザー誘起高温分布シミュレーション、レーザー学会学術講演会第32回年次大会、2012年1月30日、TKP仙台カンファレンスセンター(宮城県)
- ⑤ 奈良崎愛子、On-Demand Preparation of Microdot Patterns by Laser-Induced Dot Transfer、第12回レーザー精密微細加工国際シンポジウム(LPM2011)、2011年6月7日、かがわ国際会議場(香川県)

[産業財産権]

○出願状況(計1件)

名称：酸化物ドットパターンの作製方法及び

酸化物ドットパターン

発明者：奈良崎愛子、新納弘之、佐藤正健、黒崎諒三

権利者：独立行政法人産業技術総合研究所

種類：特許

番号：特願2013-049567

出願年月日：25年3月12日

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

奈良崎 愛子 (NARAZAKI AIKO)

独立行政法人産業技術総合研究所・環境技術研究部門・主任研究員

研究者番号：40357687