

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6月2日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2012

課題番号：24656099

研究課題名（和文） レーザを用いたガラス・樹脂へのナノ構造の超高速転写技術の開発

研究課題名（英文） Rapid thermal replication of glass and polymer nanostructures by laser irradiation

研究代表者

長藤 圭介 (NAGATO KEISUKE)

東京大学・大学院工学系研究科・講師

研究者番号：50546231

研究成果の概要（和文）：

高速でナノ構造をガラスまたは樹脂表面に転写する方法としてレーザ加熱成形を提案した。レーザは型表面を直接加熱し、転写後型および基板内部に熱伝導で冷却される。本研究では転写速度のレーザパワー密度と照射速度の影響を具体的に調査した。さらに、Ni電鍍型をロールに巻きつけ、押付用ガラスロールおよび樹脂フィルムの裏面からレーザを照射するロール装置を実際に作製し、樹脂表面への微細構造連続転写に成功した。また、フィルムおよびロールを予備加熱しておくことで、表面の加熱に必要な照射時間を短縮でき、結果的に転写速度を上げることができることを示した。

研究成果の概要（英文）：

A laser-assisted replication method for rapidly replicating nanostructures on glass or polymer surface was developed. A laser was irradiated on a mold surface and the surface is directly heated, and after replication, the surfaces of mold and substrate are cooled by inside of them. In this study, laser-assisted spot/scan replication was quantitatively demonstrated. Furthermore, a roller replication system involving Ni electroplated mold and glass roller was actually set up and continuous replication of nanostructured PMMA was demonstrated. And, by preliminary heating under glass transition temperature of polymer, it was demonstrated that the replication speed could be increased.

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	3,100,000	930,000	4,030,000

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：レーザ、転写、マイクロ・ナノデバイス、省エネルギー、ガラス

1. 研究開始当初の背景

UVリソグラフィの代替技術として期待されているナノインプリントリソグラフィの研究が今日盛んである反面、Si表面のVLSI用レジストパターンニングだけでなく、バルクのガラスや樹脂表面に微細構造を直接熱成形すると、低コストの次世代光学素子やバイオプレートなどの新デバイスにも応用可能とされている。型と基板をパンチで押さえつ

け、加熱・冷却するという従来方式では、それらの熱容量低減の限界や装置の大型化による平面度・平行度の限界から、サイクルタイムや、基板大面積化が難しい段階にきている。それに対して、レーザ加熱成形やロール成形は、サイクルタイム短縮化や大面積化に多いに貢献すると考えられるが、基板種類やパターン形状により設計指針が異なるため、装置メーカーによる開発は遅れていると言え

る。研究開始時点で、微細構造を Si や樹脂レジスト表面に直接熱転写させる高速プロセスとして、レーザ加熱インプリントは他の研究グループにより実証されており、当研究グループでもバルクのガラス表面に微細構造を転写する方法は提案されていた。ただし、他研究グループでは Si または Si 上のレジストへのパターンニングを目的として石英型を用いたもので、基板表面をレーザで加熱するもの、当研究グループは熱吸収層として石英基板の DLC 膜上にパターンを形成し、石英裏面からレーザを照射し間接的に基板を加熱するものであった。また、大面積成形を目的とした成形は実証されていない。大形のレーザビームを用いてたとえば $20 \times 20 \text{ mm}^2$ の基板全体を加熱することも考えられるが、低いパワーのレーザでもある程度の面積の成形が達成されることも求められる。そのためにはレーザスキャンによる成形が考えられ、実用化のための諸条件を実験的に求める必要がある。

さらには、スキャン成形を拡張しロール成形にレーザ加熱を実装することも今回の大きな目的であるため、より安価な型またはロール成形のためのフレキシブル型に展開するためには、Ni 電鍍型を用いたプロセスが求められる。なお、レーザ加熱を用いたロール連続成形を提案・実証した例は過去にない。

2. 研究の目的

本研究では、石英+DLC 薄膜の型を用いたレーザスキャン成形のレーザパワーと照射時間に対する転写効率の定量化、および Ni 電鍍型をロール形状に実装してレーザ加熱連続成形を提案・実証することが目的である。

3. 研究の方法

ピッチ 600 nm、深さ 250 nm の回折格子形状の型を用いてレーザ加熱成形実験を行う。レーザスキャン成形の実証および、レーザ成形効率を定量化するために、石英基板に DLC を成膜、EB リソグラフィ、ドライエッチングで作製した回折格子形状型を作製した。スポット成形からスキャン成形、さらにエリア成形を行うことで、成形速度のレーザパワー密度、照射時間の影響を調べた。レーザは波長 1064 nm の Nd:YAG レーザを用いた。ガラスとして、ガラス転移点約 510°C の光学ガラス、樹脂としてガラス転移点約 100°C のポリメチルメタクリレート (PMMA) を用いた。プレス圧力は 8 MPa とした。

Ni 電鍍スタンプをロールに巻き、ガラスロールで樹脂を押付け、ガラスロールの反対側からレーザを照射した。概要を図 1 に示す。レーザはガルバノミラーによって接触部分をスキャンさせる。さらに、より高い転写速度を目指すためにフィルム自体を予加熱し

ておくことを考えた。室温からガラス転移点以上に昇温するよりも、オフセット温度を持たせることで、ガラス転移点まで昇温するエネルギーを小さくする狙いである。ガラス転移点が高いガラスでは、装置の耐熱性の制約が多いため、今回は樹脂での実証にとどめた。

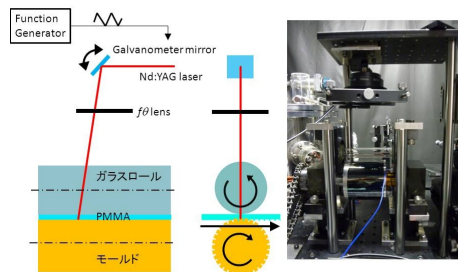


図 1. ロール成形実験装置の概要

4. 研究成果

図 2 に、パワー密度 1.4 kW/cm^2 、照射時間 100 ms、スキャン速度 10 mm/s 、それを 0.8 mm のインターバルで重ねたものの PMMA への転写結果を走査形電子顕微鏡 (SEM) 像で示す。それぞれ、樹脂の転写としては同じ照射時間に相当し、転写幅等も同程度のものであることがわかった。

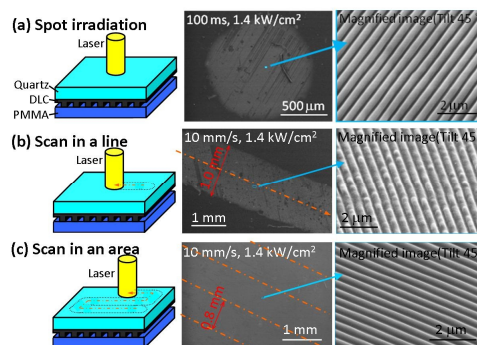


図 2. スポット成形、レーザスキャン成形、スキャンを重ねたエリア成形結果の SEM 像。

次に、スポット成形を用いて、レーザスキャン成形の設計指針を得るために、レーザの照射時間とパワー密度が、転写径にどう影響するかをガラスおよび PMMA に対してそれぞれ実験を行った。ガラスと樹脂 (PMMA) のスポット成形結果を単位時間あたりの転写範囲に直して、図 3 と図 4 にそれぞれ示す。x 軸を照射時間 (ms)、y 軸をパワー密度 (kW/cm^2)、z 軸を単位時間当たりの転写面積としてプロットした。ガラス、PMMA いずれの実験からも、照射時間が短いほど、またレーザパワー密度が高いほど、時間当たり

の転写面積が大きいことがわかる。ただし、照射時間が短すぎる、あるいはガラスパワーが低すぎると、基板表面が十分に加熱されないため、転写できない領域がある。もちろん、ガラスのほうがPMMAよりもガラス転移点が高いため、ガラスのほうが転写速度が低い。

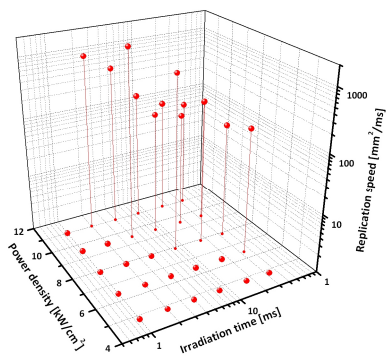


図 3. ガラス表面への転写効率

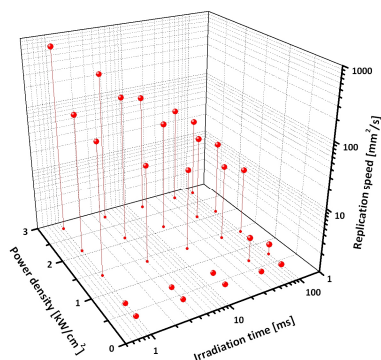


図 4. 樹脂表面への転写効率

次に、図 1 に示した装置を用いて、PMMA のロール連続成形を試みた。厚さ 0.2 mm の Ni 電鍍型をロールに巻き、厚さ 0.1 mm の PMMA フィルムをガラスロールで押付けた。レーザーは、ガラスロール裏面から照射し、Ni 電鍍型表面を直接加熱することで、熱転写する。この Ni 電鍍表面はレーザーの吸収率が 30% 以下であるため、Ni 電鍍の微細構造パターン上に DLC を 100 nm 成膜し吸収率を 44% にした（実測で確認）。押付けた部分の上流側をスキャンすることで加熱する。このとき、レーザーはガルバノミラーでスキャンし、fθ レンズでスポット径が変化しないように照射した。ただし、Ni 表面への入射角度を一定にすることは実験室レベルの光学設計上難しく、スキャン長さ 21 mm に対して、入射角度は±3°であった。この入射角度によって、ガラスロール表面へのレーザー透過率、Ni 表面のレーザー吸収率の変化が懸念されるが、実際に転写実験を行うことで、ナノ構造の転写率および転写幅がほとんど変化しないことを確認した。

Ni は石英に比べて熱伝導率が 10 倍以上あ

るため、同じ転写範囲に必要なレーザーパワー密度は大きくなる。図 5 に成形結果の例を示す。レーザースキャン速度 17 mm/s、スキャン長さ 21 mm とした。PMMA フィルムの送り速度は 0.1 mm/s とした。転写速度は 2 mm²/s に相当する。SEM で観察したところ、スキャン箇所重なった部分のパターン崩れはなかった。また、フィルム自体のゆがみがないことから、表面のみの加熱・冷却が行われたと言える。

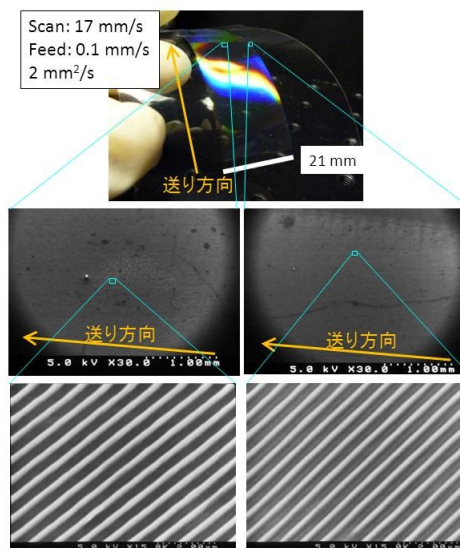


図 5. ロール成形結果（室温）

さらに、より高い転写速度を目指すために、フィルムを予加熱しておくことを考えた。図 6 は、石英基板+DLC 薄膜の型を用いて PMMA フィルムに対して、成形システム全体を加熱しておくことで、転写径が大きくなることを確認したものである。オフセット温度は 25°C（室温）、50, 75, 100°C と温度を上げるほど、転写径が大きくなる、すなわち転写面積あたりにかかる時間が短くできることを示している。ここで、オフセット温度が 100°C でも、レーザーを照射しない限り成形はされなかった。ガラス転移点 100°C の加熱は、このプレス圧力での樹脂の流動には不十分であったと考えられる。成形部分の温度を直接測定し、微細構造転写に必要な温度を確かめることが重要であるが、微細熱電対を用いたとしてもその熱容量の影響で正確に測定することは困難であるし、放射温度径を用いる場合でも、赤外線レーザーを照射しているため熱放射と切り分けるのが難しいため、これは今後の課題である。

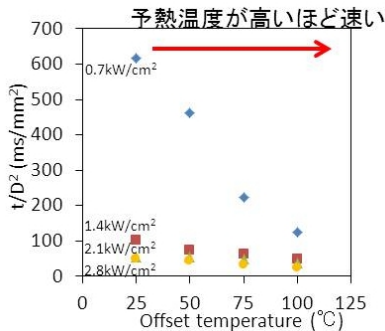
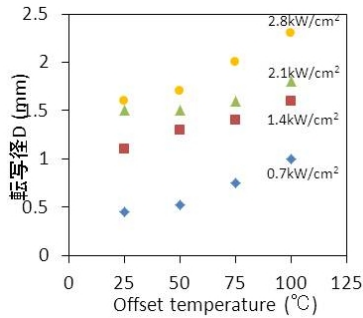


図 6. スポット成形の予加熱の影響

これを受けて、フィルムおよび微細金型ロールを予加熱し、ロール成形することを試みた。予加熱を 70°C としたところ、レーザスキャン速度を室温の場合の 10 倍の 170 mm/s、送り速度を 0.76 mm/s で成形できた(図 7)。転写速度に直すと、15 mm²/s である。これ以上の温度に予加熱すると、今度は冷却に要する時間が長くなり、レーザのスポット径を小さくする必要があると考えられる。回りの温度が低いほど、内部への温度勾配が大きくなり、結果的に熱流束を大きくできる。

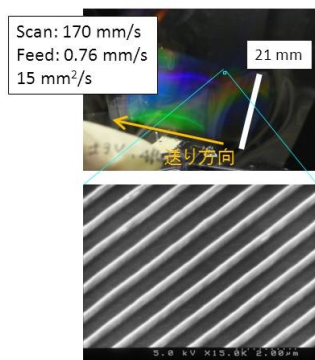


図 7. 予加熱を行ったロール成形結果 (オフセット温度：70°C)

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 0 件)

[学会発表] (計 5 件)

① K. Nagato, T. Sato, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Effect of offset temperature on replication of laser-assisted imprinting”, Digest of the 56th international conference on electron, ion, and photon beam technology and nanofabrication (EIPBN), 2012/5/30, Waikoloa, Hawaii, USA.

② T. Sato, K. Nagato, J. Choi, T. Hamaguchi, M. Nakao, “Laser-scanning imprinting for large-area nanostructures”, Digest of the 56th international conference on electron, ion, and photon beam technology and nanofabrication (EIPBN), 2012/5/30, Waikoloa, Hawaii, USA.

③ Keisuke Nagato, Daisuke Suehiro, Toshimi Sato, Shota Ikeshima, Yasuaki Watanabe, Masayuki Nakao, Roller Replication of Nano/Microstructures of Polymers, Glasses, Metals, and Ceramics, The 3rd International Conference on Nanomanufacturing (nanoMan2012), 2012/7/26 Saitama, Japan

④ 長藤圭介, 佐藤淑美, 濱口哲也, 中尾政之, レーザアシスト成形によるナノ・マイクロ構造の高速転写, 第 23 回プラスチック成形加工学会年次大会, 2012/6/13 タワーホール船堀, 東京

⑤ 高橋賢, 長藤圭介, 末弘大介, 濱口哲也, 中尾政之, ロール熱ナノインプリントにおける成形状態のリアルタイム測定, 精密工学会 2013 年度春季大会, 2013/3/13 東京工業大学, 東京

[その他]

ホームページ等

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・講師
 研究者番号：50546231

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：