

平成21年度戦略的基盤技術高度化支援事業

「ナノインプリント装置微細ロール金型の増幅技術の構築」

研究開発成果等報告書

平成22年 3月

委託者 関東経済産業局

委託先 財団法人千葉県産業振興センター

目 次

第1章 研究開発の概要

1-1	研究開発の背景・研究目的及び目標.....	3
1-2	研究体制..... (研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者)	4
1-3	成果概要.....	5
1-4	当該研究開発の連絡窓口.....	5

第2章 本論

1	小ロール形状でのEB露光技術の構築	
1-1	小ロールに対するEB露光装置の開発	6
1-2	EB露光した小ロールの製作.....	7
2	小ロールから大ロールへの転写技術の構築	
2-1	ロール転写装置の開発及び大ロールの製作.....	9
2-2	転写後の表面処理方法の構築及びめっき装置の製作 及び大ロールのめっき.....	11
2-3	大ロールの改質処理.....	15
3	試作した大ロールでのインプリントの実証	
3-1	テスト用ロールプリント装置の設計製作.....	18
3-2	UV硬化樹脂による試験サンプルの製作.....	21
3-3	製作したフィルムの製品判定.....	21

最終章	全体総括.....	23
-----	-----------	----

第1章 研究開発の概要

1-1 研究開発の背景・研究目的及び目標

本研究開発の背景として、三井電気精機株式会社は平成15年文部科学省産学連携研究事業「三次元ナノ構造量産プロジェクト」に参加しこのナノインプリント装置の業界へ参入した。その後、テスト研究用ナノインプリント装置の販売を開始し、大学、民間企業の研究所に装置の販売を行なってきた。その中で、上記に記載した通り、ナノインプリント装置の研究が進むにつれ量産化又は産業化に対し簡易に作成できる金型技術の遅れがこの業界での問題点となっている。特にロールインプリントは、ノキア等で本格検討されている例があり、欧米が一步進んでいる。また、韓国、台湾、中国でもロールの研究が盛んで欧米へ猛追をかけている。一方日本では、まだ、本格的なロール研究が開始されていない状況である。日本の現状としては、ロール金型の技術が各企業における最も重要な要素であり機密な事項であるため、なかなか外へ情報が出てこないことも考えられる。

しかし、ナノオーダーのロールを作製するためには、巨額な研究費（EB露光装置*2やフォトリソグラフィ装置）を投じる必要があり、実際には微細化の研究に踏み込んでいない可能性もある。

その中で、今回の研究開発は極一般的な研究設備を使用し、微細小ロール金型より増幅し製作されるロール金型を作成し、これによりロールtoロール又はロールto平板（フィルム等）によるナノインプリントが可能と成れば、更に各分野における量産化又は産業化に大きく貢献できるものと思われる。

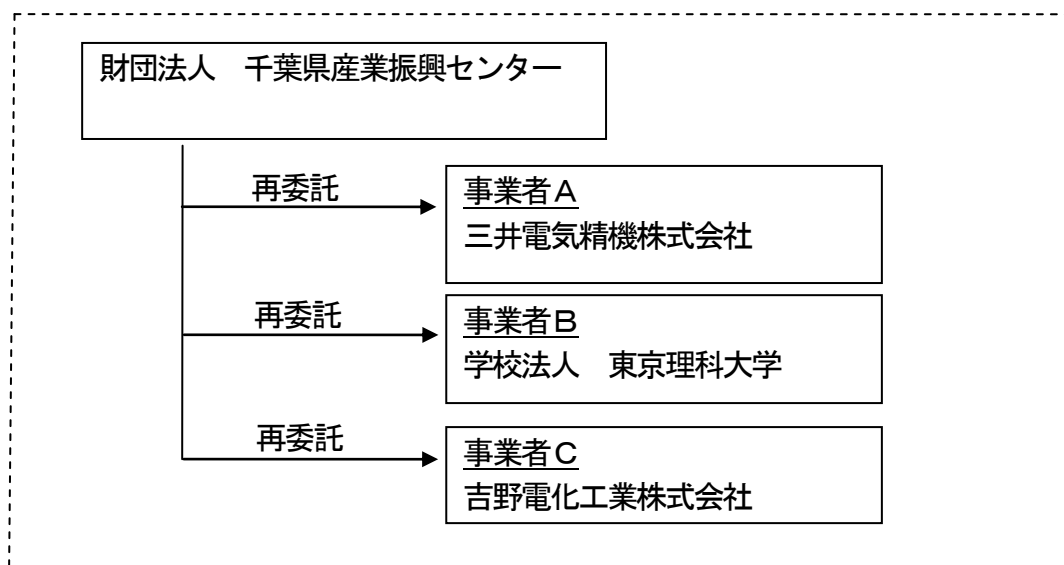
これらの研究背景に伴い、本研究目的としては金型に係る技術に関し、情報家電等の高精度化、微細化、大型化、低コスト化の課題やニーズに対し、研究開発の高度化目標として「高精度化、微細化に対応した金型及び成型技術の構築」及び「金型の低コスト化や短期間製造等を可能とする新素材、新製造技術の構築」に対する研究開発を行なう。

その具体的な研究課題として、下記の内容が研究目標となる。

- 【1】 微細化に対応した金型及び成型技術の構築の目標として、ナノインプリント装置におけるロール形状での EB 露光技術の構築を目標とし、小ロール（直径φ30mm×30mm）の表面上でナノサイズのパターンを EB 露光により転写し、小ロールの金型を製作する技術の構築。
- 【2-1】 金型の低コスト化や短期間製造等を可能とする新製造技術の構築目標として、1 で製作された約φ30mm×30mm の小ロールから約φ150mm×30mm ロールへの転写技術の構築を行なう。更に面長方向に対しても増幅を行いφ150mm×90mm ロールの転写技術の構築。
- 【2-2】 転写したロールの表面処理を行いロールナノインプリント装置としてのロール金型を製作する技術の構築
- 【3】 ロールナノインプリント用テスト装置を設計、製作し、3 で製作したロール金型によりフィルム上にインプリントを行い、1 で転写したナノパターンが製品に転写できる実証実験を行なう。

1－2 研究体制

研究体制は次の通りである。(研究組織・管理体制、研究者氏名、協力者)



氏名	所属・役職	備考
早川 一成	三井電気精機株式会社 代表取締役	PL ☐ 委
三井 保宏	三井電気精機株式会社 営業部長	☐ 委
阿部 久勝	三井電気精機株式会社 技術開発部長	
大滝 康之	三井電気精機株式会社 技術開発部	
金杉 弘典	三井電気精機株式会社 製造部	
谷口 淳	学校法人 東京理科大学 准教授	SL ☐ 委
高木 道則	吉野電化工業株式会社 研究開発部課長	☐ 委
出利葉 理子	吉野電化工業株式会社 研究開発部	
小川 正太郎	富士フィルム株式会社 生産技術本部 主任研究員	アドバイザー
坂井 信支	東洋合成工業株式会社 感光剤研究所 リーダー	アドバイザー
長谷川 利之	財団法人 千葉県産業振興センター 東葛テクノプラザ プロジェクトコーディネーター	☐ 委

1－3 成果概要

(1) 研究実施方法

従来、高額な予算により行われてきたロールインプリント装置の金型製作方法に変わり、一般的な実験室レベルでの設備により微細ロール金型の増幅技術の構築として、東京理科大学のシーズ及びアドバイザーからの知見を参考に、設備技術の検討及びめっき技術の検討から開始し、増幅技術構築に伴う機械設備開発及びめっき技術開発を実施した。その結果、EB露光装置、ロール転写装置、金型ロールめっき装置、表面改質装置、ロールインプリント装置の開発ができた。また、それらの各設備を使用した実証実験を行い、小ロールのEB露光実験、大ロールへの転写実験、めっき実験、フィルムへの転写実験を行うことができた。

(2) 成果概要

当初計画していた研究開発フローに基づき成果の概要を下記に列記する。

【1】 小ロール形状でのEB露光技術の構築

EB露光装置の設備技術の検討を行い装置開発ができた。更にその装置を使用し小ロール金型上に 200 nmのラインを露光することができた。今後は、EB露光装置の条件を更に模索し、より微細なパターンの露光条件を見出す必要がある。

【2】 小ロールから大ロールへの転写技術の構築

ロール転写装置、金型ロールめっき装置、表面改質装置の設備技術の検討を行い装置開発ができた。更に、それらの装置を使用し転写実験、めっき実験を行うことができた。転写実験において μm 単位の転写実験まではできているが、更に色々な条件の検討を行い微細パターンの転写精度の向上に伴う研究が必要である。

【3】 試作した大ロールでのインプリント実証

ロールインプリント装置の設備技術の検討を行い設備開発ができた。更にその装置を使用し大ロール金型の転写精度が確認できていないので、フィルム金型からフィルムへの転写実験を行い 500 nmのパターン転写を行うことができた。

1－4 当該研究開発の連絡窓口

〒278-0015 千葉県野田市西三ヶ尾 233-10

三井電気精機株式会社

代表取締役 早川 一成

URL <http://www.mituieco.co.jp>

第2章 本論

【1】 小ロール形状での EB 露光技術の構築

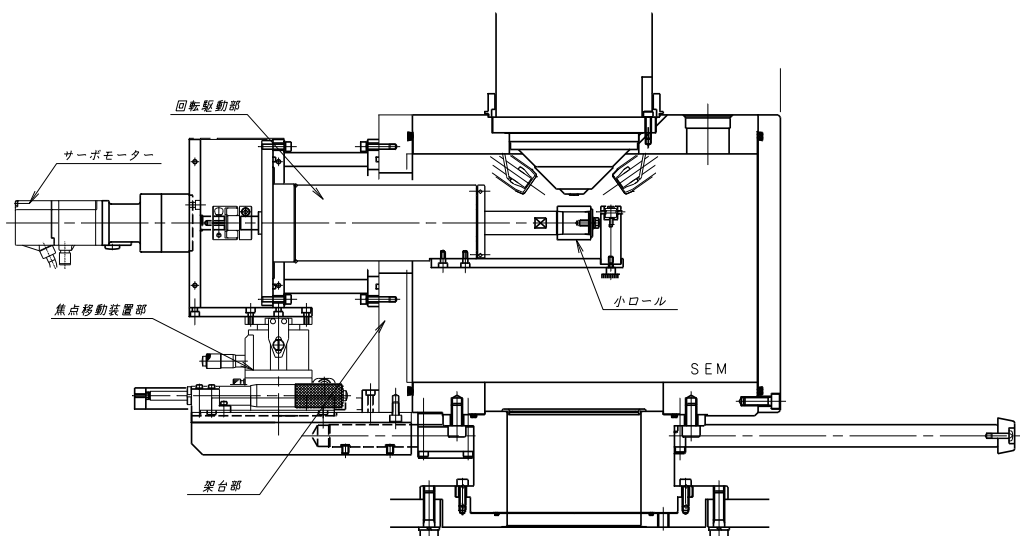
【1-1】 小ロールに対する EB 露光装置の開発 (担当：三井電気精機株、東京理科大学)

開発装置の概要

小ロール上に電子ビームにより、微細なパターンを露光させるための装置として、EB 露光装置の研究開発を行った。EB 露光装置の全容は東京理科大学所有の電子ビーム発生装置が取り付けられている電子顕微鏡 SEM 内に回転偏芯量が少なく、回転振動の少ない状態で小ロールが回転出来る構造の装置を製作した。SEM 内は高真空状態で使用するため真空に対応する装置構造となっている。

開発装置の構造

EB 露光装置の構造は下図の通りで、モーターからの回転を伝達し、小ロールを回転させる回転駆動部とそれらの回転部を SEM 内での焦点距離の調整や、ロール周長方向に対し焦点位置を変化させるための焦点移動装置部及び SEM とのセッティングが可能な架台部及び回転制御装置から構成されている。

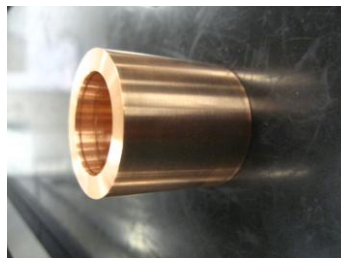


EB露光装置

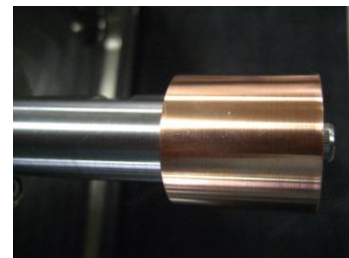
小ロールの固定方法は、テーパ構造により固定する方法で、中心位置への偏芯度を出来るだけ抑える構造となっている。同様に、小ロールにも同じ構造により加工を施してある。



EB露光装置シャフト



小ロール



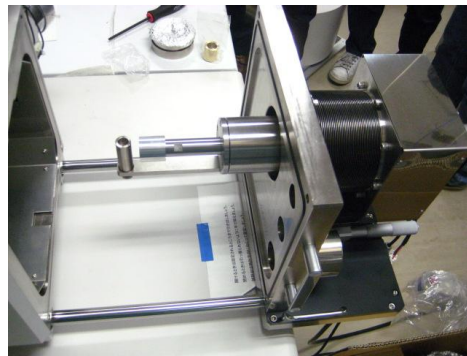
セットされた小ロール

回転駆動部における、駆動源は回転精度や角度制御が可能なサーボモーターを使用し、そのサーボモーターにより作りだされた回転をカップリング及び真空シールケースを介し SEM 内の回転シャフトを回転させる。真空シールケースのシールは高真空度を保持するため、磁気シールを使用している。また、これらの駆動部は、X-Y-Z 方向の移動に追従させるため、外周部の一部はベローズ管を使用し、高真空度を保持しながら、焦点を移動できる構造となっている。また、X-Y-Z 方向に対する移動装置は、クロスローラー方式のステージを組み合わせ、移動についてはマイクロメーターによる細目ねじの移動により位置の調整を行う方式を使用している。

架台関係は東京理科大学所有の電子顕微鏡 ESA-8800FE（エリオニクス社製）に互換性を持たせた構造となっており、並行ピンやスライドガイドベアリングの構造により、着脱性を向上する構造となっている。（下段の写真は電子顕微鏡に取り付けられた EB 露光装置）



SEMに装着した装置

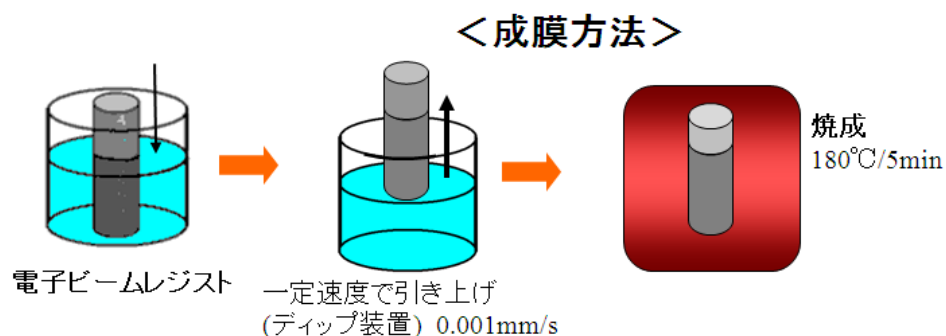


SEM内の部品

【1-2】 EB 露光した小ロールの製作 （担当：三井電気精機株、東京理科大学）

HSQ 成膜方法

電子ビームに露光するために銅ロールの表面に成膜する必要があり、今回の実験で行った方法は下図の通りである。



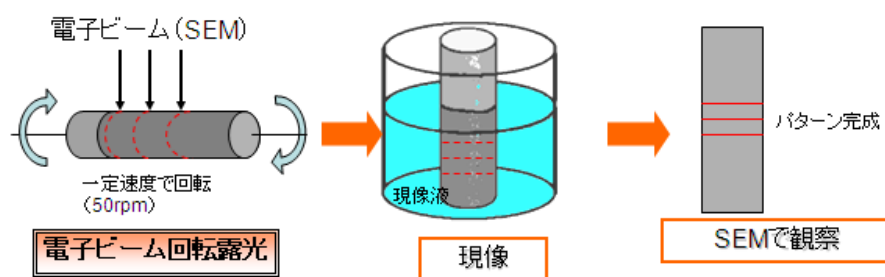
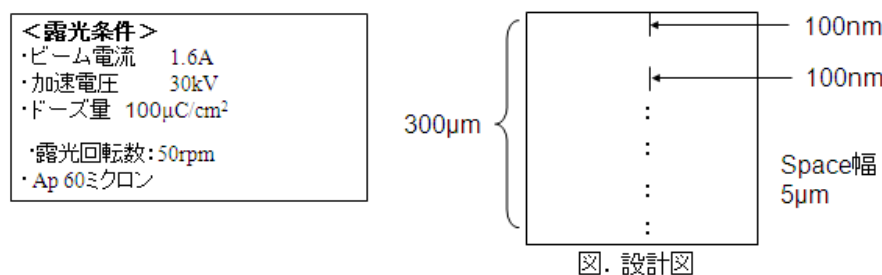
ロール基板へのレジストの塗布方法

小ロールを超音波洗浄機で表面を洗浄した後、水素化シルセスキオキサン（Hydrogen silsesquioxane: HSQ）HSQ Fo x 14 Flowable Oxide（東レダウコーニング社製）を

ディッピング容器に入れ、ディッピング装置で 0.001mm/s の速度で引き上げる。 引き上げた後、180℃のオーブンで約5 分間焼成する。

小ロールの描画

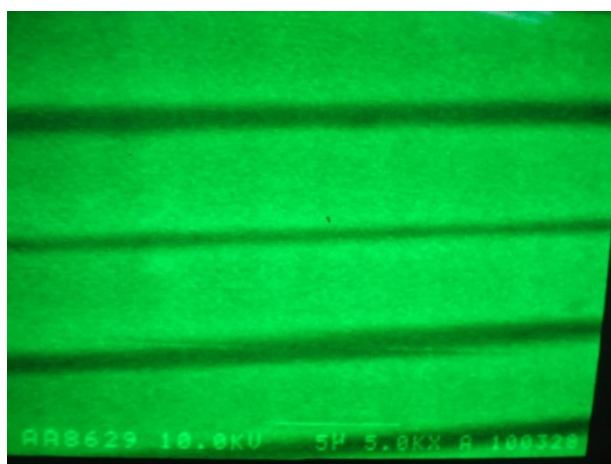
その後、SEM、ESA-8800FE に取り付けた EB 露光装置で小ロールの表面に露光し描画を行った。露光条件および方法は下図の通りである。また、現像液は、TMAH-NMD-3（東京応化工業） 2.38% 溶液である。



小ロールの描画方法（露光条件、露光パターン）

露光結果

露光結果は、下記になった。黒い部分が、露光されたレジスト部分である。この画面内のパターンは平均 655nm となった。ところによっては、200nm の部分もある（下図、真中の黒い線は、200nm）。また、このパターンは、ロールの一周にわたってシームレスで作製できているのが確認できた。



小ロール上へ描画したレジストパターン（下のスケールバーは5ミクロンである）

【2】 小ロールから大ロールへの転写技術の構築

【2-1】 ロール転写装置の開発及び大ロールの製作 （担当：三井電気精機株）

開発装置の概要

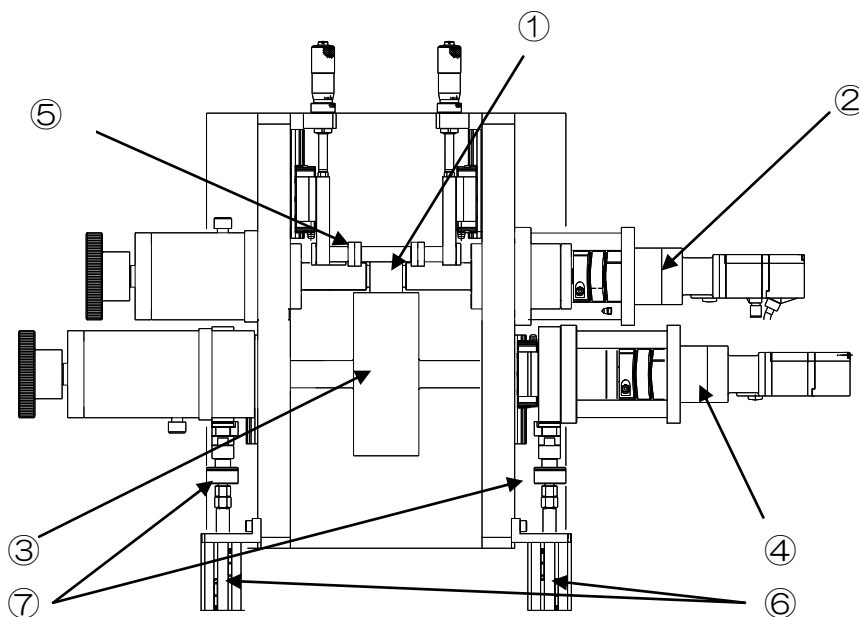
小ロール上に電子ビームで露光したパターン等を大径ロールに転写する為のロール転写装置を開発した。今回の開発テーマとして円周方向に繰り返し転写する為、小ロールの外形 30mm に対し大径ロールは外形 150mm と円周にして 5 倍の長さに増幅転写を行う。また、増幅の際に樹脂を軟化させる必要があるための加温装置、温めたロールを冷却する冷却装置が取り付けられている。



ロール転写装置外観

開発装置の構造

装置の構成は、下図装置構造図（上面図）の通りで、電子ビーム露光装置で転写された小ロール①を固定し回転させる小ロール駆動部②、その小ロールに大径ロール③が押し当てられた際の機械的変形を取り除くための変位調整が可能な補助加圧部、大径ロールを回転させる大径ロール駆動部④、高温の熱風を作り出す熱風発生ノズル、冷却ノズル、風量を供給するエアーコンプレッサー、それらを制御する制御盤により構成される。

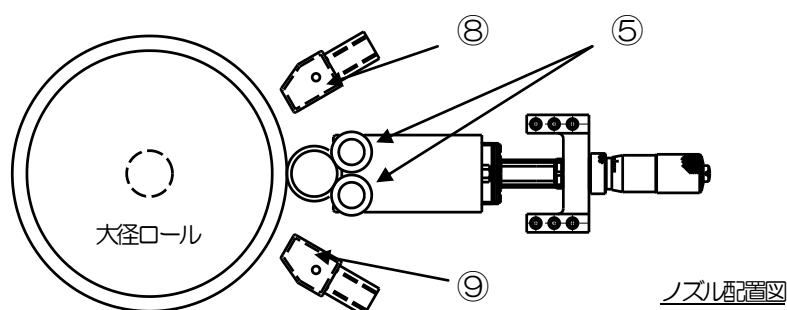


装置構造図（上面図）

小ロールの取り付けは、EB 露光装置同様シャフト部にテーパ構造を設けた 2 本のシャフトの間に取り付け。駆動モーター側シャフトは固定シャフトとし、反対側のシャフトがねじ構造により移動する構造で、左右の中心に対し同心が取れるよう、移動部は平行に動く構造となっている。駆動モーターは角度制御や 1 回転制御が行えるサーボモーターを使用している。更に、小ロールを大径ロールに転写する際の印加加重に対し、小ロールを固定し回転させるシャフトの変形を押さえるために、マイクロジャッキ方式のサポートローラー⑤を取り付けた。

大径ロールの取り付けは小ロール同様シャフト部にテーパ構造を設けた 2 本のシャフトの間に取り付け。駆動モーターは、小ロール駆動モーターと同様に角度制御や 1 回転制御及び小ロール回転と同期をとる必要からサーボモーターを使用した。

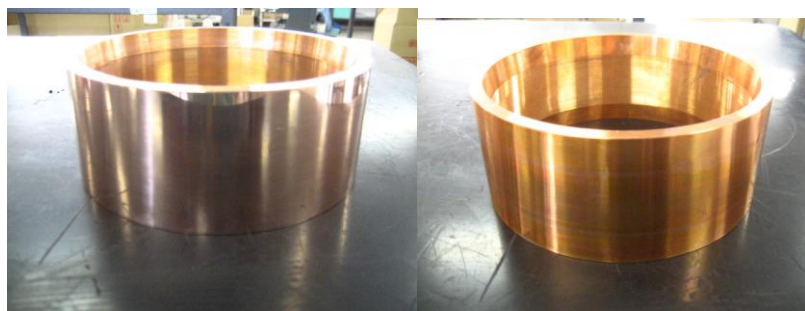
また、大径ロールは小ロールに対し平行に移動する構造をスライドベアリングで行い、小ロールとの接触圧力（転写圧力）を 2 本のエアシリンダー⑥及び精密レギュレーターにより調整できる。更に、その印加荷重は左右独立の圧力センサー⑦により計測し表示する。



上記ノズル配置図はロール表面の加温及び冷却ノズルの取り付け構造を示す。大径ノズルに塗布された樹脂を小ロールと大径ロールの接触する直前に軟化させる目的として熱風ノズル⑧を設け、荷重を印加し転写後は硬化させる目的で冷却ノズル⑨を取り付けた。

大ロールの製作

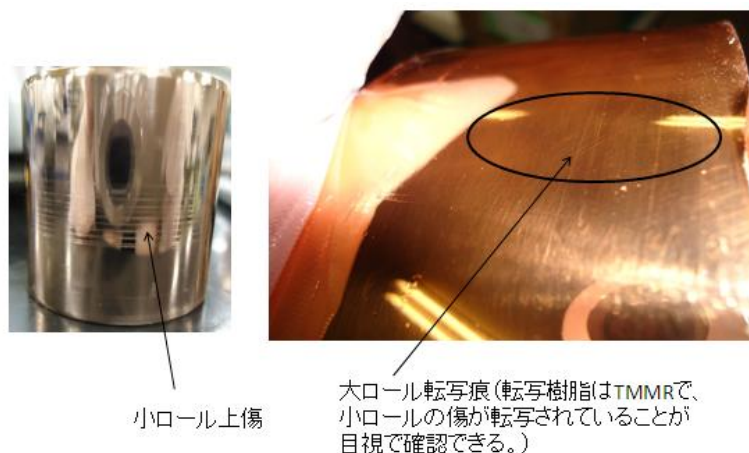
ロール転写装置を使用し、EB 露光装置で露光した小ロールのパターンを下記の要領で大径ロールへの転写を下記の通り行った。転写前と転写後の大径ロールの外観は下記の通りで、樹脂を塗布し軟化させ小ロールの表面を転写されている様子が見られる。転写用の樹脂には、TMMR S2000（東京応化工業）を用いた。下記の転写結果では、転写後のロールの真ん中付近に小ロールの長さと同じだけの樹脂が残っているのがわかるが、しかし、大ロールが観察装置に入らないため、SEM や共焦点顕微鏡で観察することは難しい。



転写前の銅製大ロール

転写後の銅製大ロール

そこで、まずは、パターンの転写を確認するため、目視でわかるパターンを小ロール上に作製し、大ロールへ転写した。その結果を下図に示す。



ロール間転写の確認

この結果から、小ロールから、大ロールへパターン転写が可能ながわかった。

【2-2】 転写後の表面処理方法の構築及びめっき装置の製作及び大ロールのめっき (担当：吉野電化工業(株)、東京理科大学)

レジスト選定とめっき処理方法の構築

〈耐めっき薬品性レジスト剤選定〉

微細加工を施した Cu 基板にめっき処理を行うにあたり、EB 露光方式ナノパターニングに用いる耐めっき薬品性のあるレジスト剤の選定及びレジスト特性に合わせためっき処理方法の構築を行った。

レジスト剤	PMMA	TMMR	ZEP	HSQ
耐めっき薬品性	×	○	×	○

めっき処理液に耐性のあるレジスト剤は TMMR 及び HSQ (ともにネガ型レジスト) に絞られた。

〈めっき処理工程の決定〉

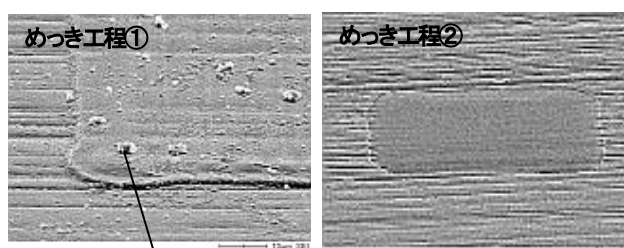
めっき処理後のレジストパターンはリフトオフするため、レジスト上へのめっき析出はリフトオフの妨げとなる可能性がある。そこでレジスト上へのめっき析出はさせず、Cu 表面上のみにめっき析出させるめっき工程を確立した。

めっき工程① 脱脂処理⇒表面活性化処理⇒触媒化処理 A*⇒無電解ニッケルめっき処理

めっき工程② 脱脂処理⇒表面活性化処理⇒触媒化処理 B*⇒無電化ニッケルめっき処理

* 触媒化処理 A は B より触媒吸着力が強い。

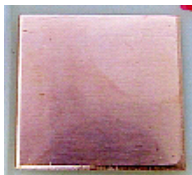
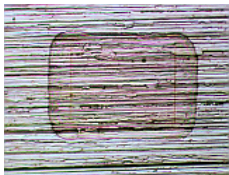
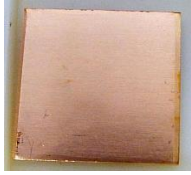
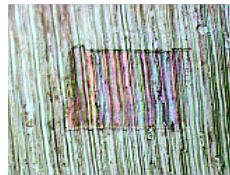
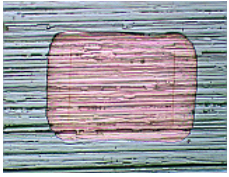
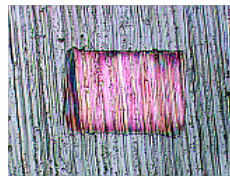
	めっき工程 ①	めっき工程 ②
レジスト上への めっき析出有無	有	無



11 レジスト上へのめっき析出

上記結果より、レジスト上へのめっき析出の無い②に決定。

〈レジストパターンニング基板へのめっき性確認とレジスト決定〉

	TMMR		HSQ	
	外観写真	パターン部拡大写真	外観写真	パターン部拡大写真
めっき前				
めっき後				

めっき処理液に耐性のあるレジスト TMMR と HSQ を Cu 平板にパターンニングしたサンプルにめっき工程②でめっきを行い、それぞれめっき性の確認を行った。

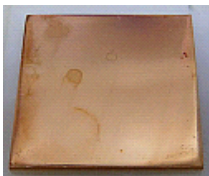
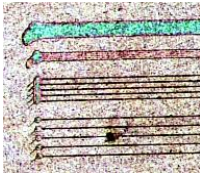
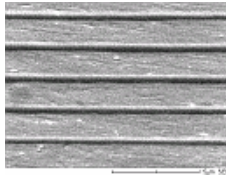
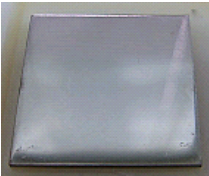
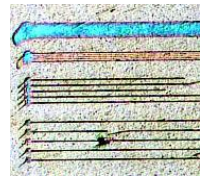
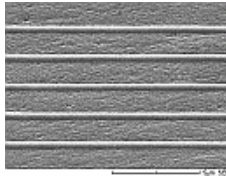
前頁表の写真のとおり、TMMR パターンニング基板はめっき外観にムラが生じ易いのに対し、HSQ パターンニング基板は全体に均一にめっきが出来た。これらの結果から、微細パターンニングに用いるレジストはHSQに決定した。

〈微細パターンニング基板へのめっき方法の構築〉

微細パターンニング基板めっき試験を実施。めっき工程及びパターン詳細は以下のとおり。

めっき工程	②	パターンライン幅	2.5~4.5 μ m
レジスト	HSQ	パターンスペース幅	1.5~2.0 μ m

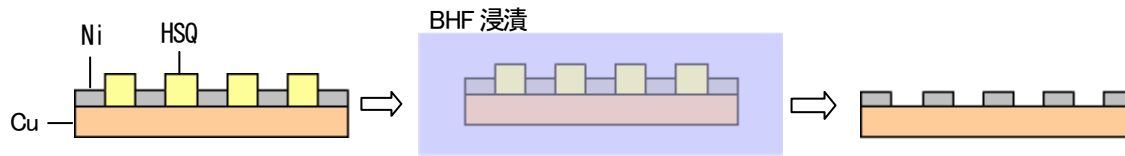
めっき処理結果を以下に示す。

	外観写真	パターン部拡大写真	SEM写真
めっき前			
めっき後			

基板全体にめっきはムラなくつき、微細パターンスペース内にも析出している。また、レジスト（ライン）上へのめっき析出も確認されていない。

レジストパターンのリフトオフ

めっき処理後のレジストパターンのリフトオフを実施。リフトオフ方法は以下のとおり。

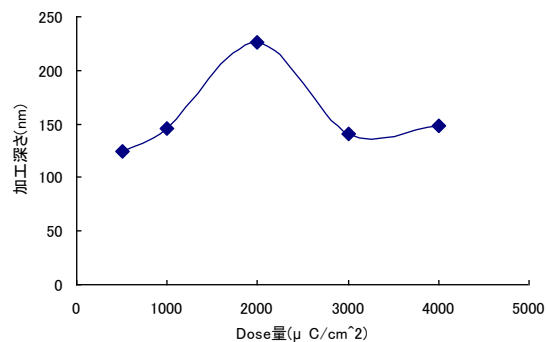
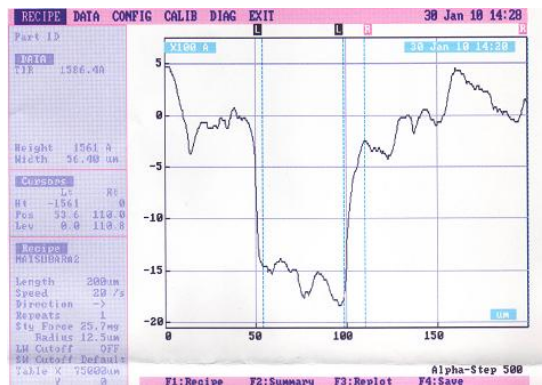


<BHF 浸漬時間によるパターン変化>

BHF浸漬前	BHF浸漬1min	BHF浸漬3min	BHF浸漬5min

BHF 浸漬時間とともに HSQ パターンが溶解していくことが分かる。

完成パターンの断面図及び加工高さ測定結果（ α -ステップ測定）



HSQ パターンドーズ量とBHF浸漬後加工深さの関係

HSQ が BHF で溶け、全てのパターンで加工深さが得られた。

⇒BHF 浸漬により HSQ のリフトオフが可能

めっき装置を使用した微細ロール金型へのめっき検討

<微細ロール金型へのナノオーダー膜厚めっき処理およびリフトオフ>

新規導入しためっき装置（右写真）を用いて微細ロール金型へのナノオーダー膜厚のめっき処理を実施。ロールサイズは以下のとおり。

	ロールサイズ
小ロール	$\Phi 10 \times 30\text{mm}$
中ロール	$\Phi 30 \times 30\text{mm}$ (厚さ 10mm中空状)
大ロール	$\Phi 150 \times 60\text{mm}$ (厚さ 10mm中空状)



めっき処理結果を以下に示す。

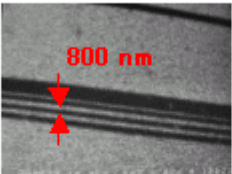
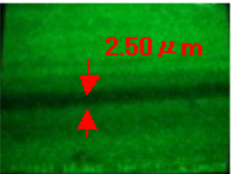
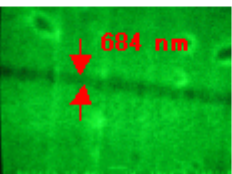
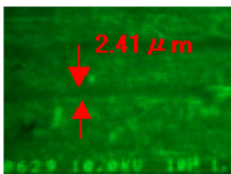
Niめっき膜厚測定結果(蛍光 X 線測定)

	小ロール	中ロール	大ロール
Niめっき膜厚	130nm	140nm	140nm

外観写真

	小ロール	中ロール	大ロール
めっき前			
めっき後			

パターン部SEM写真

	小ロール	中ロール
めっき前		
めっき及びリフトオフ後		

小ロールではドーズ量 $1000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 以上でリフトオフ後もパターンを確認。ドーズ量が $1000 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ より小さいとめっき処理及びリフトオフ工程中にパターンが流れてしまう。
 中ロールではドーズ量 300、400、 $500 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ でそれぞれリフトオフ後もパターンを確認。
 以上の結果より、めっき装置を使用したロール全体へのナノオーダー膜厚の均一めっき手法を構築、さらにめっき～リフトオフ処理工程時にパターン維持可能なドーズ量の傾向を見出すことができた。

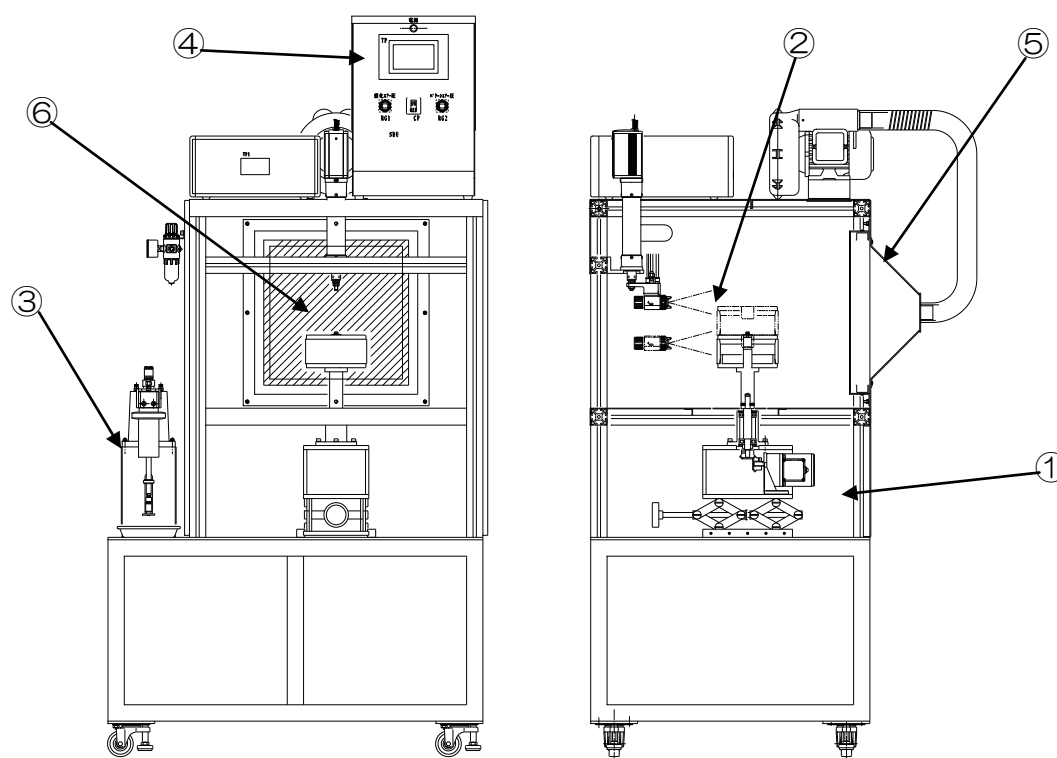
【2-3】 大ロールの改質処理 （担当：三井電気精機株、東京理科大学）

表面改質装置の概要

大径ロールをロールインプリントの金型として使用する場合、描画、転写、めっき処理を施したロール金型の表面に離型処理（剥離剤の塗布）が必要になる。平板での離型処理は一般に真空蒸着方法やスピコート方式で行われているが、ロール状の金型の場合はそれらの方法では行うことができない為、ディッピング方式が主な方法であった。今回の研究ではこの方法以外の方法として、一般的な複写機の感光体ドラムの製造方法等で使用されているスプレー方式の表面改質装置の開発を行った。

表面改質装置の構造

表面改質装置の構造は下図表面改質装置外観図に示す通りで、大径ロールを回転させるワーク回転部①、大径ロールにスプレーにより樹脂を塗布するスプレー部②、スプレーに少量且つ精度よく樹脂を送り込むシリンジポンプ部③及びそれらをコントロールする制御装置④、余剰霧化樹脂を回収するブース⑤及びフィルター部⑥の構成となる。



表面改質装置外観図

スプレー部は少量塗布が可能なタイプを使用し、先端のニードルのクリアランスを1回転18分割により調整が可能なノズルを使用した。また、金型の大きさにより安定した塗布膜を作り出すために上下に可変させる直動ロボットを取り付けた。更に、この直動ロボットは、上下変位及び速度を可変出来る構造となっている。

このノズルに少量且つ安定した樹脂の供給を行うシリンジポンプ部は、カップ部に樹脂を

投入しピストンで押し出す構造となっている。押し出す速度や変位を安定的に供給する為、ピストンの移動にはサーボモーターを使用しその回転を精度よく伝達させる為、ボールねじの構造を使用している。また、このシリンジポンプのカップ部は、様々な樹脂に対応でき、洗浄性を工夫し、カップ部内部の接液部は全てフッ素樹脂を使用し、カップ及びピストン部は極簡単に取り外せる機能となっている。

ワーク回転部はロールの位置をスプレーに対し前後及び上下に可変出来る構造とし、ロールの回転数はインバーター制御により樹脂の塗布されるブース外に取り付けられたモーターにより制御する。

それらの装置は霧化した樹脂を吸引するブース部に取り付けられている。

表面改質装置の塗膜量

表面改質装置の適切な諸条件を得るために下記の通り塗布実験を行った。

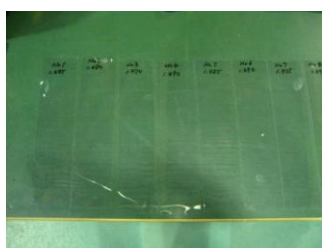
1) 膜圧の調整

表面改質装置における膜圧の調整条件は次の3条件による。

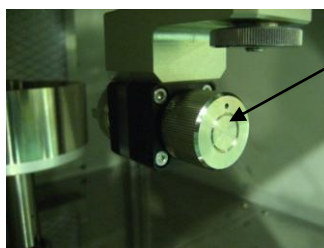
- ① ・ノズルの解放度合い
- ② ・噴射時間
- ③ ・噴射エア圧力

2) 膜圧の測定方法

試験ロール表面に 5cm×21cm のフィルムを張り付け、その状態で水を噴霧し直後の重量を計測し、面積より膜圧を換算する方法にて実験を行った。写真は計測用フィルムの形状で、各々の重量を記載。



計測用フィルム



ノズル部

ノズルのニードル弁の解放度合い調節
1回転で18ノッチ

3) 測定結果

①ニードル解放-膜厚特性

ニードル解放位置 ノッチ位置	No	試験片 重量 (g)	塗布後の重量 g	膜厚換算 μ
12	6	1.490	1.600	10.5
14	7	1.470	1.580	10.5
16	8	1.480	1.600	11.4
18	9	1.490	1.600	10.5
20	10	1.500	1.620	11.4

塗布時間：8sec

噴射圧力：140KPa

ロール回転数：33Hz

②噴射時間-膜厚特性

噴射時間 s e c	No	試験片 重量 (g)	塗布後の重量 g	膜厚換算 μ m
10.0	1	1.485	1.730	23.3
8.0	2	1.480	1.660	17.1
6.0	3	1.470	1.605	12.9
4.0	4	1.490	1.555	6.2
2.0	5	1.485	1.505	1.9

ノッチ位置：16

噴射圧力：140KPa

ロール回転数：33Hz

③噴射圧力-膜厚特性

噴射圧力 K P a s	No	試験片 重量 (g)	塗布後の重量 g	膜厚換算 μ
80	1	1.510	1.565	5.2
100	2	1.495	1.600	10.0
120	3	1.465	1.600	12.9
140	4	1.515	1.620	10.0
160	5	1.475	1.650	16.7

ノッチ位置：16

噴射時間：8sec

ロール回転数：33Hz

<実験結果の考察>

以上の結果より、安定した状態で塗布できる条件として、下記の設定値により塗布時間を調整しロール表面の膜厚を決定する方法とした。

ノズル解放位置：16ノッチ

噴射時間：8sec

噴射圧力（霧化圧力）：120KPa

ロールへの塗布

以上の結果から小ロールの表面に樹脂を塗布した。下図は塗布の状況である。



塗布の様子

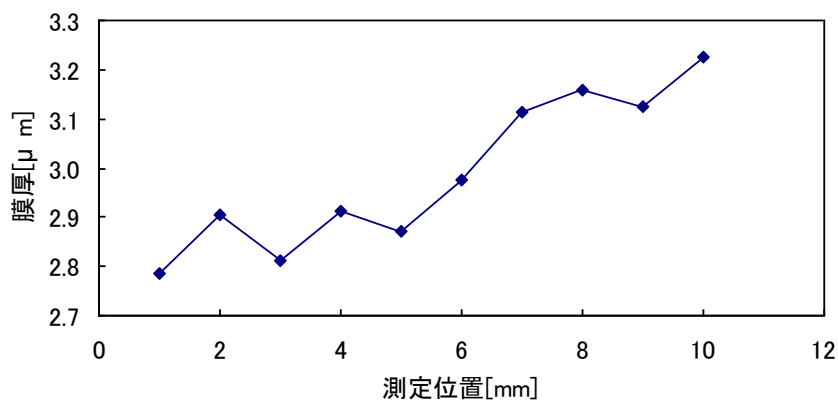
塗布したレジストは、TMMR S2000（東京応化工業社製）を TMMR S2000:PM シンナー＝1:4 で希釈したものを用いた。条件は、噴出量：10cc/min、霧化：120KPa、パターン：100、回転数 60Hz、噴霧時間 5s であった。塗布前と塗布後の結果を下記に示す。



塗布前

塗布後

目視では、ほとんど変化がわからない。そこで、光学干渉式膜厚計（スペクトラコープ社製）で、塗布後のロールの膜厚を調べた結果下記になった。



ロール上の膜厚分布

測定位置は、ロールの片端からの距離である。この結果より、ばらつきはあるものの 3 ミクロン前後の膜厚でレジストの塗布ができていることがわかる。

【3】 試作した大ロールでのインプリントの実証

【3-1】 テスト用ロールプリント装置の設計製作 （担当：三井電気精機㈱）

テスト用ロールインプリント装置の概要

装置構想は弊社でこれまで実績のある製紙用研究開発用テストコーターや電池用表面コーティング装置を基本に、更にアドバイザー所有のロールインプリント実験装置を見学させていただき、細部の構造、動作状況等を参考に開発を行った。

テスト用ロールインプリント装置の構成

テスト用インプリント装置の構成は図-1 の通りで、フィルムを巻き取るワインダー部①、送り出すリワインダー部②、それぞれのテンションをコントロールするテンションセンサー部③、フィルムに樹脂を塗布するコーター部④、大径ロールを取り付け、実際にインプリントを行う転写部⑤、転写した樹脂を乾燥させるUV発生装置部⑥、巻取り位置を一定にするEPC装置⑦、フィルムのしわ防止としてのダンサーロール部⑧、から構成されている。

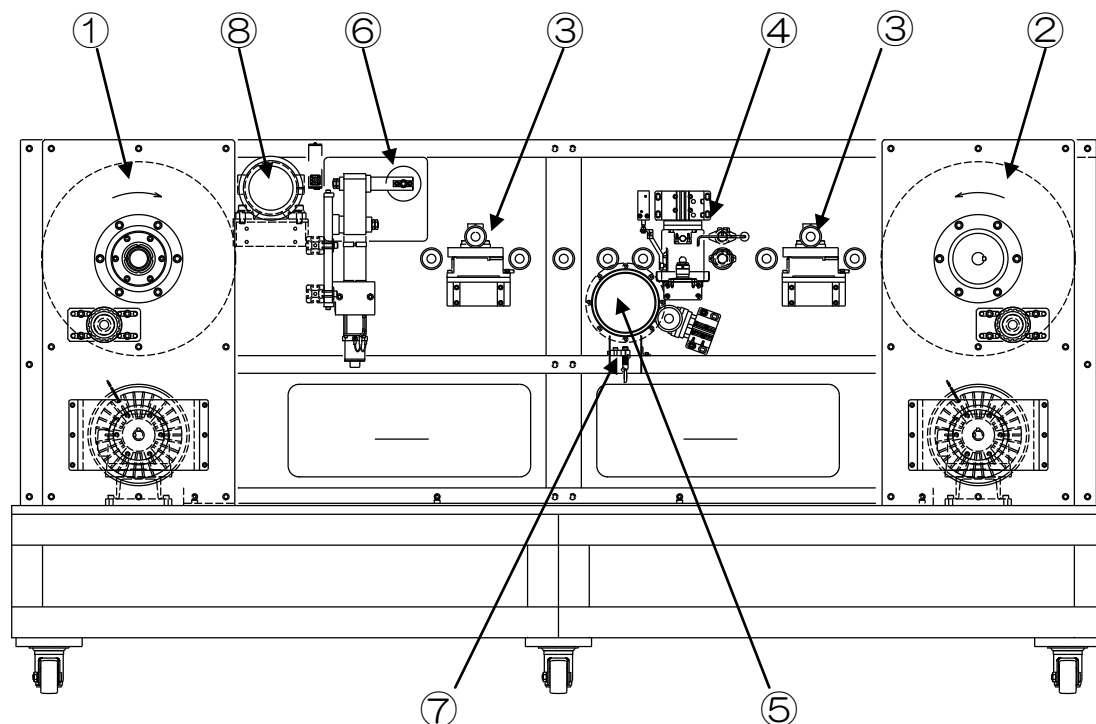
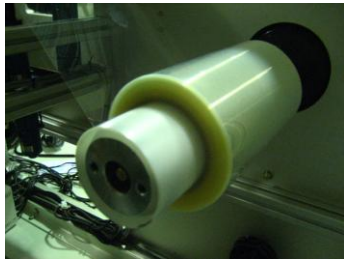


図-5

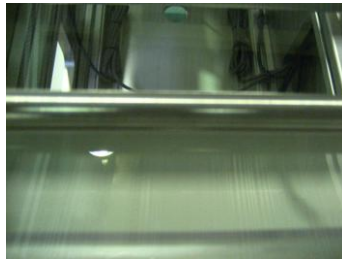
ワインダー部①及びリワインダー部②はフィルム原反の装着が簡易な片軸エアーチャックシャフトを使用し、駆動モーターを回転させながらテンションセンサーより計測された荷重とパウダークラッチによる伝達する力を調整することによりフィルムのテンションを決定する構造となっている。

コーターヘッド部④はワイヤーバーにより樹脂の膜圧を管理し、樹脂の滴下は外部のローラーポンプにより行う。また、滴下調整中に起こる裏側への樹脂の回り込みに対し樹脂ブレードにより掻き取る構造になっており、以後のローラーへの汚れ防止対策となっている。

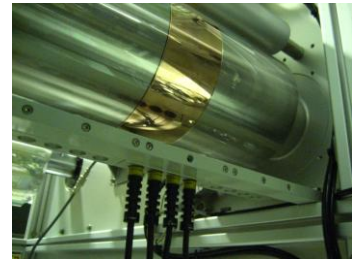
転写部⑤はロール転写装置と同様のテーパー構造により大ロールを取り付ける構造となっている。アドバイザーの指摘により、樹脂とフィルムと大ロール金型のニップ圧を決定する為のニップロールを取り付けた。更に、樹脂を硬化させるUV照射部⑦はLED方式を採用した。



ワインダー・リワインダー



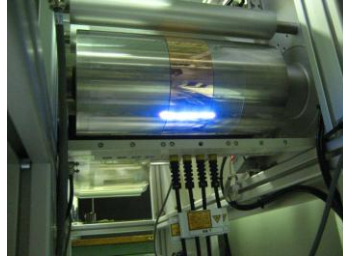
転写部



コーターヘッド部



ローラーポンプ



UV照射ヘッド



UV照射コントローラー



フィルムが装着された様子

また制御盤及び操作画面はタッチパネル方式で、操作を簡易にできる構造を採用している。



制御盤面



タッチパネル部

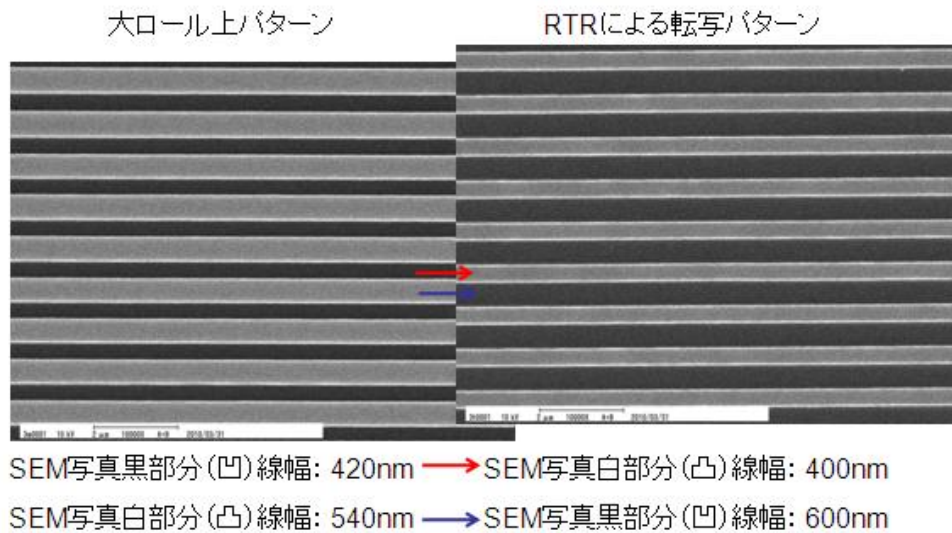
【3-2】 UV硬化樹脂による試験サンプルの製作（担当：三井電気精機㈱、東京理科大学）

今回は、小ロールにナノオーダーのパターンを作製し、大ロール上の TMMR 樹脂へパターン転写を行ったが、そのパターンを用いて、ロール to ロール（RTR）による連続転写を行ったところ、パターンの高さが 100 nm 程度であるため、コントラストがとれず目視でのマーカerpターンの確認が困難であった。

そこで、500 nm 線幅、500 nm 高さのシリコンモールドを PET 上の光硬化樹脂へ転写して、このフィルムを大ロールに貼り付けて、RTR 装置で転写を行った。PET 上の光硬化樹脂には、オプツール DSX（ダイキン工業社製）0.1% で離型処理した。また、RTR で転写される側の樹脂も光硬化樹脂とした。光硬化樹脂は PAK-01（東洋合成工業社製）である。

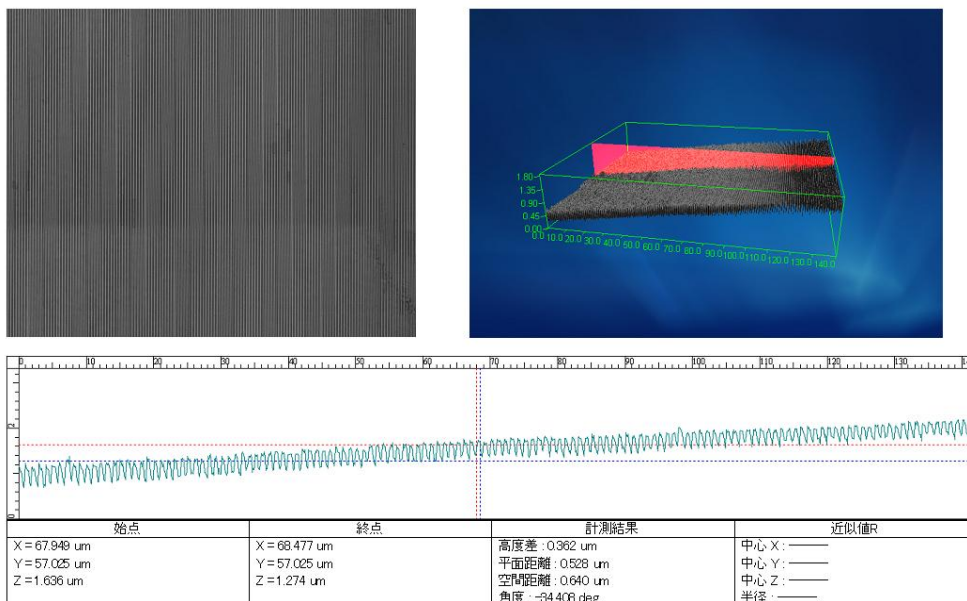
【3-3】 製作したフィルムの製品判定（担当：東京理科大学）

RTR の転写条件、送り速度：3m/min、ワインダー：16%、リワインダー：14%、ニップ：0.05MPa のときの転写結果を下図に示す。



大ロール上のパターンと RTR による転写パターンの比較

この SEM 写真より、大ロール上のパターンが精度良く転写されていることがわかる。また、RTR による転写パターンの共焦点顕微鏡（レーザーテック社製）による観察結果を下図に示す。



共焦点顕微鏡による RTR 転写されたフィルム上パターンの測定結果

この三次元像より、500 nm線幅と 500 nmスペースの回折格子状パターンが均一に作製できていることがわかる。また、高さは、362 nmであった。モールドの高さが 500 nmのため、まだ転写不足であったと考えられる。これは、ニップ圧を大きくすれば改善できると考えられる。

最終章 全体総括

ロールインプリント装置の金型製作方法に変わり、一般的な実験室レベルでの設備により微細ロール金型の増幅技術の構築として、東京理科大学のシーズ及びアドバイザーからの知見を参考に、設備技術の検討及びめっき技術の検討から開始し、増幅技術構築に伴う機械設備開発及びめっき技術開発を実施した。その結果、EB露光装置、ロール転写装置、金型ロールめっき装置、表面改質装置、ロールインプリント装置の開発ができた。また、それらの各設備を使用した実証実験を行い、小ロールのEB露光実験、大ロールへの転写実験、めっき実験、フィルムへの転写実験を行うことができた。

その成果を下記に列記する。

- ・EB露光装置の装置開発ができ、その装置を使用し200nmのラインを露光し確認することができた。
- ・ロール転写装置の開発ができその装置を使用しパターンの転写が行えることが確認できた。
- ・ロール金型用めっき装置を導入し、ロール金型上に上に薄膜めっきが出来、更に薬液でリフトオフし金型を作ることができた。
- ・表面改質装置の装置開発が出来、その装置を使用し金型表面に樹脂を塗布することができた。
- ・ロールインプリント装置を開発し、その装置を使用し500nmのパターンが転写ができた。
- ・これらの結果よりナノインプリント装置微細ロール金型の増幅技術の構築を行うことができた。

一方、それらの成果を見出す中、新たな課題が見出された。それらの課題及び対処方法を下表に示す。これらは今後の継続研究で解決を図る。

No	課題	対処方法など
1	露光パターンの微細化	小ロールの製作加工技術や露光条件を模索し、更なる微細な露光を行う。
2	ロール転写の微細化	大ロールの加工条件やロール転写条件の模索及び転写装置の改良を行い、転写実験を行う。更に、大面積への転写の構築を行い、めっき処理を行い、フィルムへの転写を行う。
3	ロールインプリント装置の微細条件での生産性の実験	生産レベル（転写速度の向上）での実証実験を行う。

これまでの研究事業によりナノインプリント装置微細ロール金型の増幅技術の構築は行えたものと思われる。但し、上記の様な新たな花袋に対する解決や、この技術構築を事業化に展開できるように、今後とも共同研究を行う予定である。