

# ロールプレスナノインプリントによる微細構造の大面積高速成形

Large-Area and High-Speed Technology for Forming Fine Structure with Roll Press Nanoimprint

岩瀬 鉄平  
Teppeï Iwase

上木原 伸幸  
Nobuyuki Kamikihara

石川 明弘  
Akihiro Ishikawa

和田 紀彦  
Toshihiko Wada

## 要 旨

基板上にナノメートルオーダーの微細構造を形成することで、LEDや有機EL照明などの発光デバイスの発光効率を大幅に向上させることができる。基板の作製コストを削減するには、微細構造を大きな基板に対し高精度かつ高速に形成する必要がある。そのため筆者らは、独自のロールプレス方式を用いたUVナノインプリント技術を開発した。成形樹脂材料の硬化挙動に合わせた専用のUV光源を設計し、応力シミュレーションを用いたロール仕様の検討を行い、作製した検証装置を用いて、高精度と高速成形を両立した実用レベルの基板作製が可能であることを実証した。

## Abstract

A nano-structure fabricated on a substrate is able to improve the luminous efficiency of various optical devices such as LEDs and organic ELs. When actually producing a substrate, high-precision and high-speed technology is required to form nano-structures over a large area in order to reduce costs. Therefore, we developed roll press nanoimprint technology. We designed an original UV unit to match the curing behavior of the resin, and studied roll specifications using stress simulations. We demonstrated the possibility of manufacturing nano-structures with both high-precision and high-speed formation by using an original verification machine.

## 1. はじめに

エネルギー使用量の削減が環境保護の観点から世界的な関心を集めているなか、LED (Light Emitting Diode) や有機EL (Organic Light Emitting Device) などの発光デバイスでは消費電力削減を目的とした高発光効率化が求められている。発光デバイスは構成部材の屈折率差に起因して光が内部に閉じ込められる問題があり、解決するためにデバイス内の各界面に波長と同じオーダーの微細構造を形成することで光源からの光を効率よく外部に取り出す検討がなされている[1][2]。これら微細構造を高精度に形成するためには、フォトリソグラフィなどの半導体プロセスを利用するのが一般的であるが、対象デバイスの大型化に対応して大面積かつ高速に形成することは困難である。

そこで筆者らは、UV (Ultra Violet) ナノインプリント法[3]を用い、大面積の基材上に微細構造を高精度かつ高速に形成するためのロールプレス方式を考案した。作製した検証装置でUV光源やロール仕様を検討した。適用検証としてガラス基板上へのインプリントサンプルを作製し、実用レベルのサイズの基板に対する高精度かつ高速な微細構造の形成が可能であることを確認した。

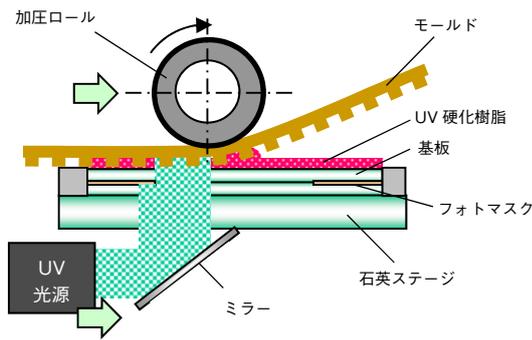
## 2. ロールプレスナノインプリント工法

### 2.1 開発方式の概要

UVナノインプリント法とは、基材上に微細構造を転写する方法である。まず、あらかじめ密着性処理された基材にUV硬化樹脂を塗布する。次に任意の微細構造が形成された金型(モールド)を樹脂面に押し付け充填させる。最後にUV光を照射して硬化させた後にモールドを離型する。本方法を採用することで、大面積な基材上での一括形成が期待できる。

この利点を生かし、高精度化と高速化を実現するために考案したロールプレスナノインプリント工法の模式図を第1図に示す。

UV硬化樹脂が塗布された基材上に薄板状のモールドを傾斜して配置し、ロールにより加圧し樹脂表面と接触させ、ロール移動と同時に石英ステージ下面からUV光を照射する方式であり、低荷重かつ高速な成形が可能である。また樹脂とモールドの接触中に発生した気泡(バブル)はロール送り方向に流動させることで転写面に残らないため、バブル低減を目的とした真空環境を必要とせず、装置およびモールドを拡張することで容易に大型化が可能である。また石英ステージ上にフォトマスクを配置してUV光の照射領域を制限することで、マスク開口形状に合わせた任意の外形パターンニングが可能となる。



第1図 ロールプレスナノインプリント工法模式図  
Fig. 1 Schematic of roll press nanoimprint method

## 2.2 目標仕様と開発課題

開発目標仕様を第1表に示す。対象とするデバイスの基板サイズを200 mm×200 mmとし、生産性を考慮したうえでの成形時間を60 s以内とした。微細構造に関しては、光取り出し効率を実現するための必要構造高さが600 nm以上であるため、基となるモールドの構造高さを670 nmとし、モールドに対する成形品の微細構造の高さの比率を転写率と定義し、目標を90%以上とした。成形領域の外形精度は±0.1 mm以下とした。

第1表 インプリントシステムの目標仕様  
Table 1 Target specifications of imprint process

基盤サイズ	200 mm×200 mm
形成時間	60 s
転写率	90 %
形成領域の外形精度	±0.1 mm

上記仕様を達成するための課題は以下の3つである。

### (1) 高速化と高精度化の両立

ロールを移動させながらUV照射を行うため、移動速度を上げると樹脂への積算露光量は低下する。樹脂の硬化反応が不十分であると微細構造の転写率が低下するため、高速化と高精度化を両立するには、材料の硬化挙動に対応したUV照射プロセス設計が必要である。

### (2) 成形領域の外形精度確保

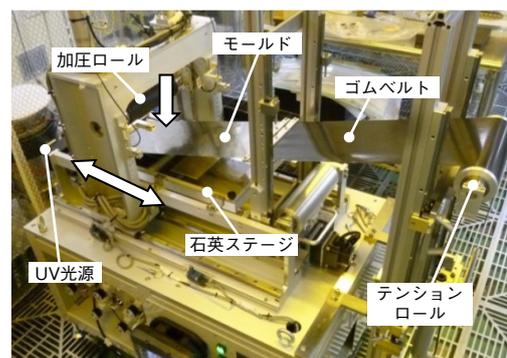
フォトマスクで成形領域外のUV光を遮蔽しても、UV光の入射角やモールド面での散乱の影響で硬化が進行し、外形精度が低下する。遮蔽領域での硬化を抑制するUV光源設計およびプロセス設計が必要である。

### (3) 高速化と高品質の両立

成形時にはモールドと樹脂の間に微小な空隙が発生し、ロール移動速度を上げるとバブルとして残存しやすくなる。バブル低減にはロールの加圧力が大きく影響するため、ロール設計およびプロセス設計が必要である。

## 3. ロールプレスナノインプリント装置

本研究で作製したロールプレスナノインプリント検証装置の外観図を第2図に示す。モールドは、フォトリソグラフ法により微細構造を形成した原版から電鍍法で反転転写し作製したニッケル製の薄板状モールドであり、ゴムベルトを介しテンションロールに固定され、斜めに張り付けている。加圧ロールは両端をエアシリンダーで押し下げ、モールドを変形させながら最大1000 Nの荷重で石英ステージ上に配置されたガラス基板を加圧する。UV光源からの光はミラーで反射させ、石英ステージを透過し上方へ照射される。UV光源の放射照度は20 mW/cm<sup>2</sup>で、送り方向の照射幅は60 mmである。成形可能なガラス基板のサイズは送り方向で200 mm、幅方向で200 mmである。



第2図 ロールプレスナノインプリント検証装置  
Fig. 2 Machine for verifying roll press nanoimprint

## 4. 高速インプリント技術の開発

### 4.1 高速と高精度を両立するUV照射プロセス設計

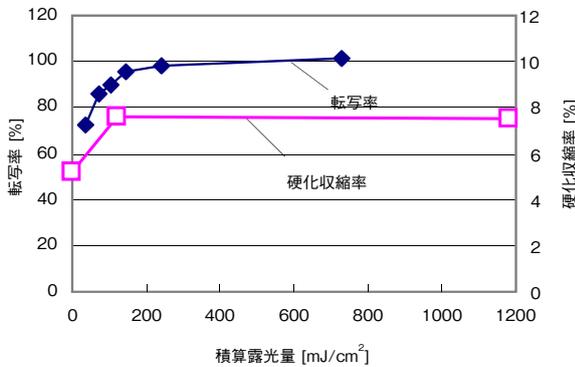
使用するUV硬化樹脂の完全硬化に必要な積算露光量は1000 mJ/cm<sup>2</sup>であるが、成形中に露光量を確保するには照射時間が300 s程度必要になる。そこで筆者らは、成形中は形状を維持できる最低の露光量にとどめ、後にポストキュアを行うことで樹脂の完全硬化と成形の高速化を両立する方法を検討した。

樹脂は硬化と同時に収縮変形を伴い、成形時の露光量が不十分であるとポストキュア時に硬化収縮が進行し形状が劣化してしまう。したがってUVの露光量に応じた樹脂の硬化収縮挙動を把握し、転写率90%を確保するための最低限の露光量を見極めることがポイントとなる。

第3図は、積算露光量と樹脂の硬化収縮率およびインプリントによる転写率の関係を示す。硬化収縮率は、ガ

ラスプレート上に配置した円環状の治具に樹脂を滴下した後、プレート裏面からUV照射を行い、硬化前後の樹脂の厚みをレーザ変位計で測定し算出した。また形状転写率は、各積算露光量でインプリント成形した後、N<sub>2</sub>雰囲気下で1000 mJ/cm<sup>2</sup>のポストUVキュアを施した後の構造高さを原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope, AFM) にて測定しモールドの構造高さとの比率で算出した。

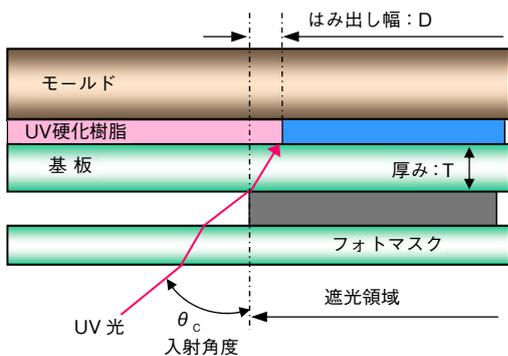
硬化収縮率と転写率には相関があり、積算露光量が200 mJ/cm<sup>2</sup>以下である場合に転写率が低下する現象は、樹脂の硬化収縮によるものであることを示している。本開発では、硬化収縮率の変動が少なく、転写率90%を確保できる最低の積算露光量を100 mJ/cm<sup>2</sup>と設定し、露光時間を30 sまで短縮している。



第3図 UV積算露光量別転写率および硬化収縮率  
Fig. 3 Transfer and cure shrinkage rate as a function of UV exposure

4.2 外形精度確保に向けたUV光源設計

フォトマスクを用いたUV照射の原理模式図を第4図に示す。照射されたUV光はマスク開口部の境界付近の入射角が大きいと遮蔽領域にも侵入するため、樹脂の硬化が進行してしまう。この問題を解決するためにUV光をコリメートレンズにより平行光束化し、遮蔽領域へのUV光の進入を抑え外形精度を確保することを検討した。



第4図 フォトマスクを用いたUV露光プロセスの原理模式図  
Fig. 4 Schematic of UV exposure process with a photomask

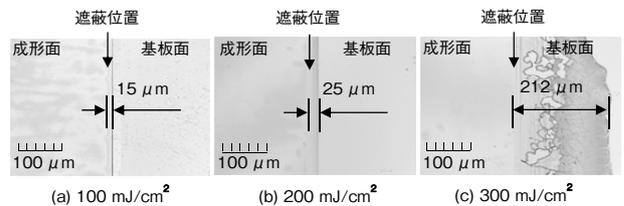
基板裏面より入射したUV光の開口部からはみ出し幅Dは、(1)式のスネルの法則により計算することができ、入射角度を5°以下にすれば、理論上ははみ出し幅Dを0.04 mmとすることができる。

$$D = T \tan \left\{ \sin^{-1} \left( \frac{n_{\text{air}}}{n_{\text{sub}}} \sin \theta_c \right) \right\} \dots \dots \dots (1)$$

- D : はみ出し幅 [mm]
- T : 基板厚み [mm]
- n<sub>air</sub> : 屈折率 (大気)
- n<sub>sub</sub> : 屈折率 (基板)
- θ<sub>c</sub> : 光源コリメート角 [rad]

また、平行光束化された光であっても、実際はモールド面での反射の影響により遮蔽領域において硬化反応が進行する。反応の進行には積算露光量が寄与するため、5°に平行光束化されたUV光源を用い、積算露光量を変えてインプリント成形を行い、その後有機洗浄により未硬化部を除去したサンプルの外形を顕微鏡で観察した。

第5図に観察結果を示す。積算露光量を増加させることでパターン領域外への反応が進行し、300 mJ/cm<sup>2</sup>にて形状精度の低下が確認された。精度確保には一定量以下の露光量でUV照射を行う必要があり、本研究では積算露光量を100 mJ/cm<sup>2</sup>として、外形精度0.015 mmを達成している。

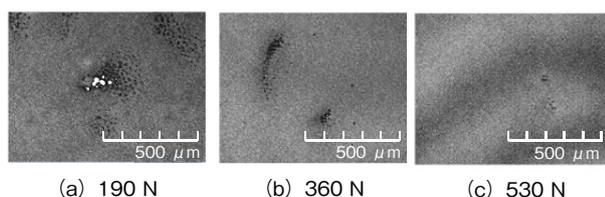


第5図 UV露光量とはみ出し幅の関係  
Fig. 5 Relationship between UV exposure and projection width

4.3 高速と高品質を両立するロール設計・プロセス開発

[1] 加圧力の検討

2.2節で述べたように、成形時に発生するバブルは、塗布した樹脂表面とモールド間の空隙に起因し、空隙なく接触させるにはモールドを介した樹脂への加圧力が大きく影響する。第6図に加圧力を変化させてインプリント成形を行ったパターン表面の観察結果を示す。荷重190 Nで発生していた150 μm程度のバブルが荷重を上げることで解消できている。つまり、モールドと樹脂の均一な接触には一定量以上の圧力印加が必要であることがわかる。

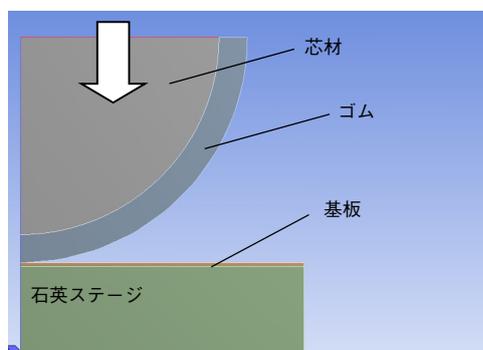


第6図 加圧力とバブルサイズの関係  
Fig. 6 Relationship between roll load and bubble size

〔2〕 ロール硬度の検討

バブル発生を回避するためには高硬度なロールでの高圧力印加が有効である。しかしながら高硬度なロールは変形しにくく、ロールの傾きなどによって生じる両端の荷重ばらつきを吸収できず、局所的な集中荷重による基板割れが発生する問題が生じる。ロール硬度は必要最低限に最適化する必要がある。そこで筆者らは、バブル低減に必要な加圧力と、ロール硬度仕様との関係を定量的に求めるため、有限要素法による応力解析を行った。

第7図に解析モデルを示す。解析には有限要素法を用い、2次元対称平面ひずみ要素でモデリングし、非線形接触応力解析を行った。ロール芯材上部より荷重を印加し、ゴムと接触するガラス基板の最大圧縮応力を評価した。ロール芯材に取り付けられるゴムの厚みは5 mmである。



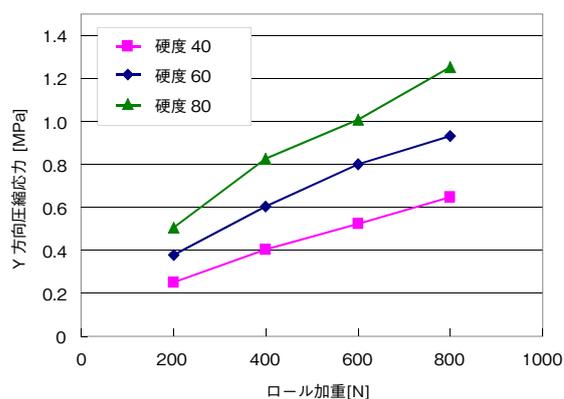
第7図 有限要素解析モデル  
Fig. 7 Finite element model

第8図に、異なるゴム硬度で計算したガラス基板の最大圧縮応力を荷重別に計算した結果を示す。4.3.1項より硬度40のロールでの必要荷重が530 Nであったことから、グラフより必要圧力は0.5 MPa付近であると推定できる。

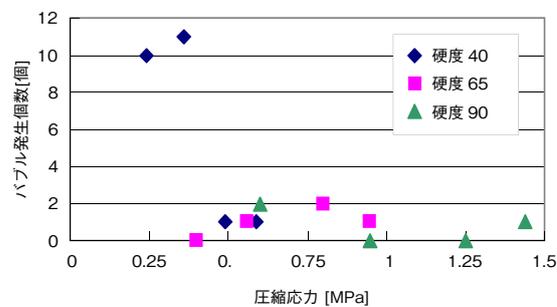
解析の検証実験として、硬度40、65、90のニトリルゴムで作製したロールを用い、荷重を変化させてインプリント成形を行った。評価方法は80 mm×80 mmの成形領域内を顕微鏡で観察し、基板の目視品質上不良と判断される欠陥のサイズとして、150 μm以上のバブル数をカウ

ントした。

各ロール硬度における荷重別の加圧力を第8図より算出し、加圧力別のバブル数をプロットしたグラフを第9図に示す。硬度40のロールでの低い加圧力で発生していたバブルが、硬度65から90のロールを用いて0.4 MPa以上の加圧力を印加することで大幅に低減していることが確認できる。上記結果より本研究では、加圧力0.4 MPa以上を指標にロール硬度を65とすることで、バブルの発生を抑えた高品質な成形を実現している。



第8図 ロール硬度別の荷重と応力の関係  
Fig. 8 Relationship between roll load and stress for each roll hardness



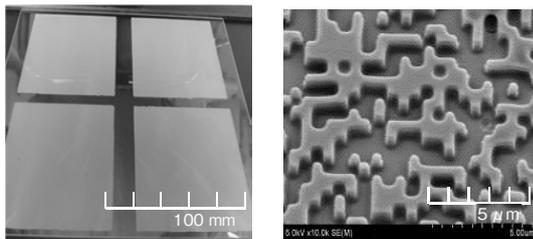
第9図 ロール硬度別 圧縮応力とバブル発生個数の関係  
Fig. 9 Relationship between stress and number of bubbles for each roll hardness

5. 大面积基板での試作実証

前章までの結果を基に、サイズ約200 mm×200 mmのガラス基板に対するインプリント試作実証を行った。樹脂はアクリル系のUV硬化樹脂を用い、基板への樹脂の塗布にはスクリーン印刷を採用している。基板下部にはパターンが4つに分割されたフォトマスクを配置し、厚さ0.2 mmのニッケルモールドと、硬度65、ゴム厚み5 mmのロールを用いて、ロール荷重を700 N、転写速度を12 mm/s、積算露光量を100 mJ/cm<sup>2</sup>とし、ガラス表面へ微細構造を

成形した。

第10図に成形品の外観写真とSEM (Scanning Electron Microscope) 像を示す。全面にわたってバブルの発生がなく、外形精度 $\pm 0.1$  mm以下での良好なパターンが形成できた。AFMによる形状測定では、モールドの構造高さ670 nmに対し成形品の構造高さ610 nmであり、目標となるプロセス時間内で構造転写率90 %以上の高精度成形を実現している。



(a) 基板外観

(b) 微細構造

第10図 基板上へのインプリント成形サンプル

Fig. 10 Imprint sample on a glass substrate

## 6. まとめ

本研究では、光学デバイスなどの性能向上を実現する基板上への微細構造を大面積かつ高速に成形する技術として、ロールプレスナノインプリント技術を考案した。成形樹脂材料の硬化挙動に合わせたUV光源および照射プロセスを設計し、応力解析を用いてロール硬度仕様および加圧プロセスを設計し、試作実証により実用可能レベルの生産が可能であることを確認した。本成果を種々のデバイスへ適用するとともに、モールドの拡張によりさらなる大面積化を図っていく。

## 参考文献

- [1] 山江和幸 他, “次世代省エネルギー光源・有機EL照明,” パナソニック技報, vol.57, no.4, pp.52-57, 2012.
- [2] 中村嘉孝 他, “ナノインプリント法により作製したランダム回折素子の評価,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会 講演予稿集, p. 07-057, 2014.
- [3] 松井真二 他, ナノインプリントの開発と応用, (株) シーエムシー出版, 東京, 2005.

## 執筆者紹介



岩瀬 鉄平 Teppei Iwase  
生産技術本部 生産技術研究所  
Production Engineering Lab.,  
Manufacturing Technology and Engineering Div.



上木原 伸幸 Nobuyuki Kamikihara  
生産技術本部 生産技術研究所  
Production Engineering Lab.,  
Manufacturing Technology and Engineering Div.



石川 明弘 Akihiro Ishikawa  
生産技術本部 生産技術研究所  
Production Engineering Lab.,  
Manufacturing Technology and Engineering Div.



和田 紀彦 Toshihiko Wada  
生産技術本部 生産技術研究所  
Production Engineering Lab.,  
Manufacturing Technology and Engineering Div.  
工学博士