ナノインプリント法を用いた埋込印刷

穂 莉 遼 平*・栗 原 一 真*

1. はじめに

プリントドエレクトロニクス¹⁾は、印刷技術を用いて電子回路やセンサーなどの電子デバイスを製造する分野である。近年の材料技術の発展に伴い、印刷プロセスや周辺技術の研究開発が盛んに行われている。印刷プロセスのパターニング精度を高めることは、デバイスの高機能化、高集積化に貢献できる。本報告では、微細でアスペクト比の高い印刷パターンを得るため、ナノインプリント法を用いた印刷プロセスについて紹介する。

2. 微細構造を用いた高精細スクリーン印刷

まず、微細構造を用いてスクリーン印刷の高精細化を行った^{2,3)}。スクリーン印刷は孔版印刷の一種で、所望のパターンの開口部を持つスクリーンマスクを用いてインクのパターニングを行う生産性の高い印刷方法として知られている。図1に高精細スクリーン印刷プロセスの概念図を示す。樹脂フィルムなどの被印刷基板に微小間隙を持つ微細構造を形成し、間隙に働く毛細管力を利用することで、機能性インクを間隙内に充填することができる。この間隙内に充填されたインクをパターンとしてそのまま利用することで、微細でアスペクト比の高い配線などを実現することができる(図1(a))。微細構造の表面に対するインクの接触角が 90° より小さいとき、インクは間隙内壁に引っ張られ、間隙の奥に向かって浸入する。一方、微細構造の表面に対するインクの接触角が 90° より大きいとき、インクは構造の微小間隙に浸入できない。この接触角は、固体-気体、液体-気体、固体-液体間の界面自由エネルギーなどに依存するため、インクの種類や被印刷基板の種類、表面処理の状態などにより異なる。また、図1(b)のように、間隙が狭いとき、体積あたりに働く表面張力が増大し、毛細管力の効果が大きくなるため、インクは間隙に充填されやすくなる。間隙外部のインクは、スクリーンマスクが被

図1 微細構造を利用した高精細スクリーン印刷

印刷基板から離れるときにスクリーンマスク側に吸い取られるため、印刷基板側には残りにくい。間隙内部のインクは、スクリーンマスク側から受ける力よりも大きな力を微細構造から受けるため、間隙内部に残る。したがって、微細構造のデザインにより、インクパターンの断面形状を制御することができる。一方、間隙が広いとき、体積あたりに働く表面張力が小さく、毛細管力の効果が小さくなるため、インクは間隙内部に残らない。

本印刷プロセスは、図2のように微細構造を形成するインプリント工程と、スクリーン印刷工程の2工程からなる。インプリント法には、紫外線(UV)インプリント法と熱インプリント法を用いることができるが、ここではUVインプリント法の例を図示している。まず、図2(a)のよう

* Hokari, Ryohei/Kurihara, Kazuma
産業技術総合研究所
つくば市並木 1-2-1 産総研つくば東 (〒305-8564)
hokari.ryohei@aist.go.jp
2017.8.4 受理

図2 インプリントとスクリーン印刷の融合プロセス

に、溝パターンが形成されたモールドにUV硬化樹脂（PAK-02，東洋合成工業社製）を塗布し，その上からポリエチレンテレフタレート（PET）フィルムを押し付け，UV光を照射する．硬化したUV硬化樹脂をフィルムごとモールドから離型することで，微細構造が転写されたフィルム基板が得られる（図2(b)）．同じモールドを用いて，微細構造付きのフィルム基板を何枚も複製することができる．次に，図2(c)のように，フィルム基板の微細構造部とスクリーンマスクの開口部をアライメントし，スクリーン印刷を行う．スクリーン版はミタニマイクロニクス社製のステンレススクリーンマスク（500メッシュ，線径18 μm ，紗厚29 μm ）を用いた．スクリーン印刷の条件は，スキージ圧力0.18 MPa，スキージ速度28 mm/sec，クリアランス1.0 mm，スキージのアタック角度70°とした．インクにはカーボンインクや銀インクなどを用いることができるが，金属粒子のサイズが微小間隙の幅よりも小さい必要がある．最後に，インクを焼成することで，パターンが形成される（図2(d)）．

インプリント後と印刷後のフィルム基板の光学顕微鏡写真を図3に示す．上段と下段は，それぞれ上面写真と断面写真である．インプリント後の写真から，構造のピッチが20 μm ，高さが110 μm の微細構造が形成できていることが確認できる（図3(a)）．ここで，この構造にインクを滴下したときのメニスカス形状を観察したところ，インクと構造壁の接触角は約45°であり，インクは間隙内部に侵入できることが確かめられた．スクリーン印刷後の写真から，間隙内にインクが浸入していることが見て取れ，底近傍まで到達していることがわかる（図3(b)）．間隙内のインクの幅は6.2 μm ，高さは110 μm であり，約18のアスペクト比のインクパターンの形成に成功した．従来の印刷法では，アスペクト比が1を超えるパターンを得ることは困

難なため，これまではないパターンニングが可能となる．また，図3(c)は，構造のないフラットな基板へのスクリーン印刷の結果である．ここで，スクリーンマスクは微細構造上への印刷に使用したものと同一である．開口部は100 μm 幅，ピッチは200 μm である．得られた印刷パターンは，断面写真から，約89 μm 幅で厚さは約9 μm であり，アスペクト比は約0.1であった．さらに興味深いことに，微細構造の幅よりも大きな100 μm 幅の開口部から出たインクが間隙内部に充填されており，6.2 μm 幅の印刷パターンを形成している．つまり，開口幅に対して1/15以下の微細パターンを得ることができるため，スクリーンマスクでのインク詰まり抑制が期待される．

次に，間隙内に充填された微細でアスペクト比の高いインクパターンの導電性を評価した．インクは，銀インク（RAFS 074，トーヨーケム社製）が用いられた．このときのスクリーン印刷条件は，スキージ速度40 mm/sec，スキージ圧力0.15 MPaとした．図4はパターンの線幅に対する単位長さあたりの電気抵抗をプロットしたものである．構造なしの四角形のプロットは，スクリーン印刷によりフラットなフィルム基板に印刷した配線パターンの結果であり，構造ありの円形のプロットは，間隙幅が13 μm ，高さが100 μm のときの印刷結果である．インクは110℃のオープンで90分間焼成された．構造なしのとき，抵抗は，パターン幅が小さくなるにつれて，0.2 Ω/mm から4.8 Ω/mm と徐々に大きくなっていることがわかる．一方，構造ありのとき，抵抗は平均で3.0 Ω/mm であった．図中のドットラインは構造なしのときの407 μm 幅パターンを基準に，印刷パターンのアスペクト比が一定になるとして計算した近似曲線である．構造なしのときのパターンの抵抗値がこの近似曲線に沿って推移していくと仮定すると，線幅13 μm のときには191 Ω/mm に達する．また，構造なしのときの95 μm 幅パターンの抵抗が2.9 Ω/mm であり，線幅が1/7以下になってもほぼ同等の抵抗値であることが示された．これにより，高アスペクト比パターンによる配線抵抗の低減が確認できた．

3. スクリーンマスクレスプロセス

前述した印刷方法はスクリーンマスクの開口部と微細構造のアライメントが必要である．開口部は微細構造のサイズよりも10倍程度の大きさで良いが，所望のパターンを得るためには微細構造の設計とスクリーンマスクの設計が

図3 作製結果

図4 インクパターンの線幅に対する電気抵抗

図5 スクリーンマスクレス印刷プロセス

必要となる。したがって、スクリーンマスクを用いないアライメントフリーの印刷プロセスを開発することで、前述した高精細印刷プロセスを簡略化できる。図5にスクリーンマスクレス印刷プロセスの概念図を示す。まず、熱インプリント法により、樹脂フィルムに微細構造を形成する(図5(a), 5(b))。ここでは、熱インプリント法の例を図示しているが、UVインプリント法でも同様に後プロセスを行うことができる。次に、図5(c)のように、スキージ法により、プレート上にインクを塗布し、平坦化する。次に、平坦化されたインク膜に対して、熱インプリントで形成された微細構造を持つフィルムを押し付けることで、毛細管現象により微細構造の間隙内にインクが引き込まれる。プ

図6 スクリーンレスプロセスの印刷結果

レート上のインクは乾燥する前に再度スキージングを行い、平坦化することで繰り返し利用することができる。図6は、本手法により印刷したインクパターンの光学顕微鏡写真である。図6(a), 6(b)は、それぞれラインパターンの上面写真と断面写真である。上面写真から、均一性良くインクが構造部に残っていることが確認できる。また、断面写真から、間隙内にインクが充填されていることが見て取れる。また、微細構造の上部にもインクが残留している。これにより、上面から見ると、構造の端から端までインクが残っているためその分太いパターンとなる。この不要なインクは、ワイピングにより簡単に除去することができる。図6(c), 6(d)は、不要インク除去後の写真である。上面写真から、微細構造部にはインクが見られず、間隙内にのみインクが見られる。また、断面写真から、間隙内部のインクは充填されたまま残っていることが確認できる。結果的に、線幅3.8 μm、高さ31 μm、アスペクト比8.2のインクパターンが得られた。

4. 微細溝への埋込印刷

自動車や家電製品では、タッチセンサーを含むパネルのデザイン性の向上が求められており、今後、自由曲面形状のパネルの需要が増大すると言われている。このようなパネルの意匠性や、曲面ディスプレイのタッチセンサーの透明性を向上させるため、より高精細な印刷技術が求められる。前述した突起形状の微細構造では、構造の高さが約30 μm以上必要であり、構造のアスペクト比が増大してしまうことから、構造の形成が困難になってくるため、さらなる微細化に制限がある。ここでは、印刷パターンのさらなる微細化に向けた、数マイクロメートル以下の微細溝への埋込印刷技術について報告する。また、埋込印刷技術によりパターンニングされたフィルムを用いた、フィルムインサート成形による曲面形状の成形品の試作結果について述べる。

図7に埋込印刷プロセスとフィルムインサート成形プロセスを示す。まず、微細な凸構造を持つモールドを用いて、熱インプリント法により、樹脂フィルムに微細溝を形成する(図7(a), 7(b))。樹脂フィルムには、厚さ300 μmの

図7 埋込印刷とフィルムインサート成形プロセス

図8 試作した成形品

ポリメチルメタクリレート (PMMA) フィルムを用いた。次に、導電性の銀インクを PMMA フィルム表面にスキージングし、微細溝にインクを充填する (図 7(c))。最後に、インクをオーブンで焼成することで、溝に埋め込められた導電性パターンが完成する (図 7(d))。モールドパターンにより、任意の導電性パターンを得ることができる。次に、曲面パネル試作のため、曲率半径 20 mm になるように曲面フォーミングを行い (図 7(e))、曲面化されたフィルムを用いてフィルムインサート成形を行うことで、表面の印刷パターンによるセンサー機能や加飾機能を持った成形品が得られる (図 7(f))。

図 8 は、埋込印刷による微細パターンを持つ加飾フィルムとそれを用いたフィルムインサート成形による試作品である。図 8(a) は、蛍光灯を透かして見たフィルムであり、文字部が鮮やかな虹色に見える。これは、文字を形成する 5 μm のラインパターンによる光の回折効果である。図 8(b) は、曲面フォーミング後の写真である。図 8(c)、8(d)

は成形品の写真と、微細パターンの光学顕微鏡写真である。微細溝内でインクを保持しているため、成形時のインク流れによるパターン不良は見られなかった。このように、埋込印刷プロセスは、自動車や家電などの曲面パネルのフィルムインサート成形プロセスにも応用できる。

5. おわりに

微細構造の微小間隙に働く毛細管力を利用した高精細印刷プロセスを開発した。微細構造はナノインプリント法により形成できるため、サブマイクロメートル幅のパターンや、従来の印刷技術では実現困難な高いアスペクト比を持つパターンなど、ニーズに沿った印刷パターンを得ることができる。また、溝に埋め込まれたパターンは、直接触れたりしてもパターンに欠損が生じにくく、さらに、フィルムインサート成形との親和性が高い。今後は、導電性材料のみならず、その他機能性材料を用いることで、幅広い応用展開が期待できる。

謝 辞

本研究の一部は国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) の研究成果展開事業「マッチングプランナープログラム」の支援によって行われた。

参 考 文 献

- 1) Perelaer, J., Smith, P. J., Mager, D., Soltman, D., Volkman, S. K., Subramanian, V., Korvink, J. G. and Schubert, U. S.: *J. Mater. Chem.*, **20**(39), 8446(2010)
- 2) Hokari, R., Kurihara, K., Takada, N., Matsumoto, J., Matsumoto, S. and Hiroshima, H.: *J. Micromech. Microeng.*, **26**(3), 035005(2016)
- 3) Hokari, R., Kurihara, K., Takada, N., Matsumoto, J., Matsumoto, S. and Hiroshima, H.: *Micro Nano Lett.*, **11**(10), 606(2016)