

(様式第5号)

シンクロトン光・高輝度X線を利用するLIGA微細加工における斜多重露光の技術開発研究

## Technical developments of the inclined multi-irradiations for the LIGA micromachining by using the high-bright X-ray of synchrotron light.

日高昌則<sup>1,3</sup>、野上大史<sup>2</sup>、中島文弥<sup>2</sup>、常葉信生<sup>3</sup>、大石 明広<sup>3</sup>、秋山 博臣<sup>4</sup>、藤井 弘也<sup>5</sup>  
M.Hidaka, H.Nogami, F.Nakashima, N.Tokiwa, A. Oishi, H.Akiyama, H.Fujii

1;九州大学大学院工学研究院 機械工学部門 2;九州大学大学院工学研究院 システム生命科学府  
3;田口電機工業 技術課、4;宮崎大学教育文化学部、5;大分大学教育福祉科学部

1;Department of Mechanical Engineering, Graduate School of Engineering, Kyushu University, 2;Graduate School of System life Sciences, Kyushu University, 3;Technical Section, Taguchi Plating Industry, Co. Ltd, 4;Faculty of Education and Culture Graduate School of Education, Miyazaki University, 5;The Faculty of Education and Welfare Science Graduate School of Education, Oita University.

### 1. 概要

シンクロトン光・高輝度X線を使用するLIGA微細加工により、マイクロ細孔配列をもつ金属製薄板(Mシート:厚さ;約200~300 $\mu\text{m}$ の製作に関する技術開発が行われた。この薄板には、マイクロ細孔(直径;約100 $\mu\text{m}$ 、最近接距離;約300 $\mu\text{m}$ )が正方対称および六方対称で配列されている。本LIGA工程中の金属製薄板を製作する電気メッキの前処理段階において、マイクロ細孔配列と同様な構造仕様のマイクロ円柱配列をもつポリマー製(PMMA)薄板(Pシート)も製作された。Pシートおよびシートに作製されたマイクロ円柱配列、マイクロ細孔配列の構造特性は、市販のマイクロスコープ、レーザー顕微鏡、走査電子顕微鏡により解析された。本研究では、ストレート型のマイクロ円柱やマイクロ細孔に加えて、入射X線ビームを照射用フォトレジスト面に対して若干傾斜することにより、斜形型のこれらのマイクロ構造が製作できることが確認された。これは、高輝度X線の斜多重露光がテーパ型のマイクロ円柱、細孔を製作することを示唆した。また、シンクロトン光・高輝度X線を使用するLIGA微細加工により、厚さ3~5mm程度のフォトレジスト中に、ポリマー製、金属製の3次元マイクロチャンネルを製作できる可能性が明らかになった。

Technical developments for the metal thin sheets, called the M-sheets, having the micro-pore array were carried out with the LIGA micro-machining by using the high-bright X-rays of synchrotron light. The thickness of the M-sheets was about 200~300 $\mu\text{m}$ . The micro-pores of about 100 $\mu\text{m}$  in a diameter were sited at the M-sheets with a tetragonal or hexagonal arrangement, where the distance among the nearest-neighbor micro-pores was about 300 $\mu\text{m}$ . At the present LIGA processing, the polymer (PMMA) thin sheets, called the P-sheets, having the micro-column array were also made at the irradiated photo-resists, before the electroplating to make the M-sheets. The structural properties for the micro-column arrays at the P-sheets and the micro-pore ones at the M-sheets were analyzed with an ordinary microscope, a laser microscope and a scanning electron microscope. In the present investigations, it was found that, in addition to the micro-columns and micro-pores of straight-type, the ones of oblique-type were made slightly by inclining the incident X-ray beams to the irradiated photo-resist set on the X-ray scanner-holder. This suggested that the inclined multi-irradiation of the incident X-ray beams gives to make the micro-column array and the micro-pore one, having a micro-structure of taper-type for the P-sheets and the M-sheets. It was also found that there was a possibility to make the 3D micro-channels of polymer and metal in a photo-resist of about 3~5mm in a thickness by means of the LIGA processing using synchrotron light.

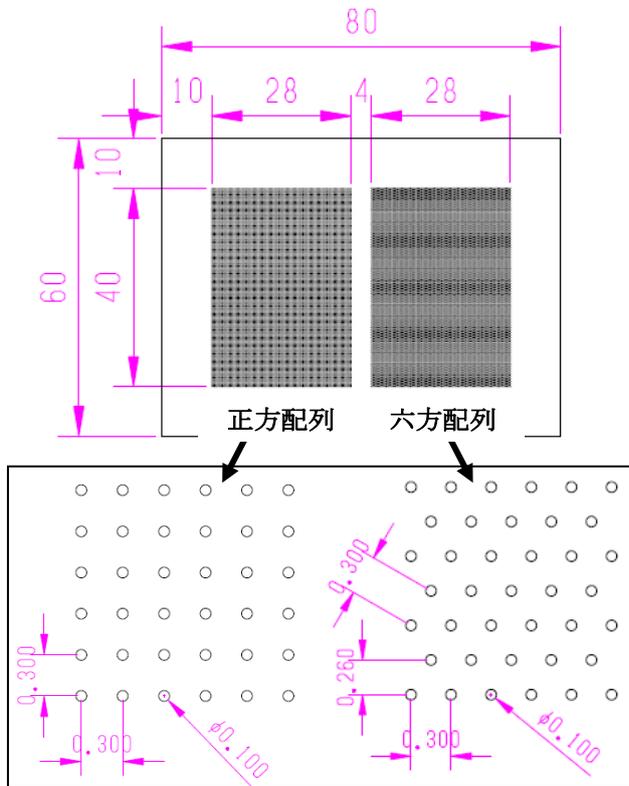
## 2. 背景と目的

これまで国内外のシンクロtron光研究施設を利用して、シンクロtron光からの高輝度X線を使用した深刻X線リソグラフィによるLIGA微細加工(SL-LIGA)の技術開発を実施してきた。2008～2016年度には、九州シンクロtron光研究センター(佐賀LS)のBL-09ビームラインでLIGA微細加工に関する基礎的な技術開発研究を実施してきた。これらのLIGAに関する技術開発は、2009～2011年度に田口電機工業と九州大学大学院・理学研究院(物理部門)との共同技術開発研究に与えられた経済産業の戦略的基盤技術高度化支援事業に基づいている。また、2012～2017年度には、田口電機工業と九州大学大学院・工学研究院(機械工学部門、システム生命科学府)とのLIGA&MEMS微細加工に関する共同技術開発を実施している。

最近、微細加工に関する機械加工部門では、金属製薄板のストレート型およびテーパ型マイクロ細孔配列を持つ部品製造が話題になっている。特に、マイクロ細孔の直径;20～60 $\mu\text{m}$ 、配列ピッチ;100～300 $\mu\text{m}$ で、厚さ;100～500 $\mu\text{m}$ の金属製シート量産製造の技術開発が求められている。本研究では、シンクロtron光・高輝度X線を利用するLIGAにより、これらの構造仕様のマイクロ細孔配列をもつ金属製薄板製作に関連する技術開発を行う。特に、本実験の主目的は、ストレート型およびテーパ型マイクロ細孔配列の試作研究である。また、これらの技術開発は、各種のポジ型&ネガ型の3次元マイクロチャンネルの製作に継承されるので、この試作研究も行う。

## 3. 実験内容(試料、実験方法、解析方法の説明)

本研究で使用するX線フォトマスクは、市販のステンレス製のメタルマスク(厚さ;約600 $\mu\text{m}$ )より作製した。左図には、メタルマスクの構造仕様が示されている。外形サイズ;(60x80)mmのメタルマスクには、直径;100 $\mu\text{m}$ 、最近接距離;約



300 $\mu\text{m}$ のマイクロ細孔配列が形成されている。このメタルマスクには、2種類のマイクロ細孔配列の領域(外形サイズ;(40x28)mm)が刻まれている。左側には正正方配列、右側には六方配列である。本実験では、このメタルマスクのマイクロパターンは高出力の紫外線(UV)を使用してフォトリソに等倍転写された。この照射済フォトリソのLIGA処理工程(現像、めっきetc.)を経て、専用のX線フォトマスクが作製された。ただし、シンクロtron光・高輝度X線の高い透過性を考慮して、X線フォトマスクに描画されたポジ型マイクロパターン(マイクロ円柱配列)はポリマー(PMMA)製、基板は厚さ;約20 $\mu\text{m}$ の金・Au製である。

本実験では、BL09ビームラインの実験ポートに自作の専用X線チャンバーを仮設して、このチャンバー内に設置されたX線スキャナーの冷却試料ホルダーに照射用フォトリソ基板を搭載して各種の照射実験を行った。なお、X線フォトマスクに描画されたマイクロパターンを等倍転写した照射済フォトリソ

は、田口電機工業でLIGA処理工程(現像、めっきetc.)を行った。これらの画像解析はマイクロスコープ、レーザー顕微鏡および走査電子顕微鏡(SEM)を使用して行った。

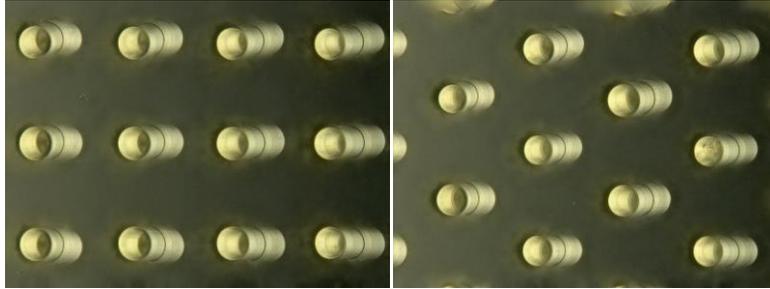
## 4. 実験結果と考察

本実験では、LIGAによる金属製薄板のストレート型およびテーパ型マイクロ細孔配列の試作が主目的である。しかし、本LIGA工程中の金属製薄板を製作する電気めっきの前処理段階において、マイクロ細孔配列と同様な構造仕様のマイクロ円柱配列をもつポリマー(PMMA)製薄板(Pシート)が製作できるので、これらの試作研究も行った。また、これらの実験結果を基に、各種のポジ型&ネガ型の3次元マイクロチャンネルの試作研究も行った。従って、以下の様に、4-1. ストレート型マイクロパターン、4-2. テーパー型マイクロパターン、4-3. マイクロチャンネルの項に分けて実験結果および考察を行う。なお、本実験結果を解析、考察する場合、照射用フォトリソ基板が搭載されたX線回折装置(ゴニオメーター)での右手系の座標軸(X, Y, Z軸)は以下の様に決める;水平方向(周回する電子軌道面内)をX軸、X軸に垂直な鉛直方向をZ軸、X軸および

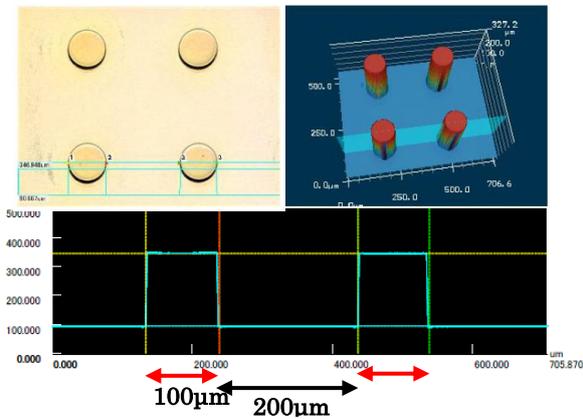
Z軸に垂直な高輝度X線ビームの入射方向をY軸とする。従って、高輝度X線がフォトレジスト基板に直入射される場合には、フォトレジストシートは(X-Z)面内に設置される。また、X軸、Y軸、Z軸周りの回転角は、それぞれ $\chi$ 、 $\phi$ 、 $\theta$ とする。

#### 4-1. ストレート型マイクロパターン

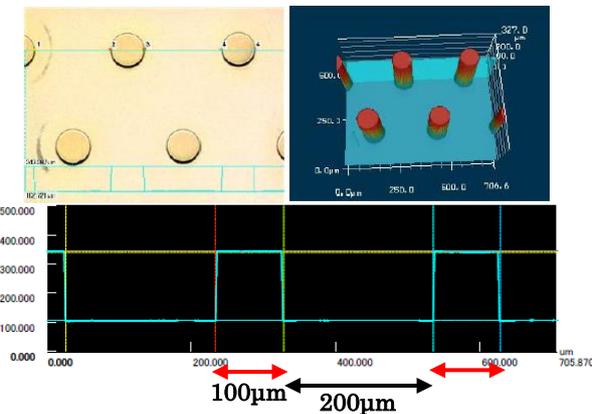
ストレート型マイクロ細孔配列を試作する本実験では、X線フォトマスクに描画されたマイクロパターンは高輝度X線の直入射により照射用フォトレジストに等倍転写された。下図には、このフォトレジストの現像後に撮られた顕微鏡像が示されている。この図の左側が正方配列、右側が六方配列である。ただし、これらの撮像は、顕微鏡の鏡筒が照射・現像済フォトレジスト基板に対して約 $15^\circ$ に傾けて撮影されている。ポリマー(PMMA)製マイクロ円柱は透明であるので、直入射の円柱側面は顕微鏡のハロゲン灯で明るく観察される。ただし、LIGAの後処理工程・めっきを考慮して、フォトレジスト基板のガラス表面には、照射実験前に数百Åの無電解Niがコートされている。これらの基板背景の黒色はこのNiコートによる。従って、いずれのガラスにも、ポリマー製マイクロ円柱配列が映っている。



これら、LIGAの後処理工程・めっきを考慮して、フォトレジスト基板のガラス表面には、照射実験前に数百Åの無電解Niがコートされている。これらの基板背景の黒色はこのNiコートによる。従って、いずれのガラスにも、ポリマー製マイクロ円柱配列が映っている。



これらのマイクロ円柱配列の構造特性がレーザー顕微鏡により調べられた。左図は、直入射で得られたフォトレジスト基板の現像済フォトレジストのレーザー顕微鏡撮像を示す。上段の左側が2次元、右側が3次元の正方配列である。これらの撮像には、2個のポリマー製マイクロ円柱をスキャンするレーザー軌跡(X軸方向)が青線に表示されている。また、この2次元図には、この青線軌跡の下方にレーザー解析の高さ方向(Y軸方向)における計測値も示されている。下段には、レーザー軌跡に沿った解析(レーザー解析)が示されている。このフォトレジストに作製されたマイクロ円柱配列は、高さ;約250μm、直径;約100μm、最近接距離;約300μmのマイクロ構造仕様を示す。

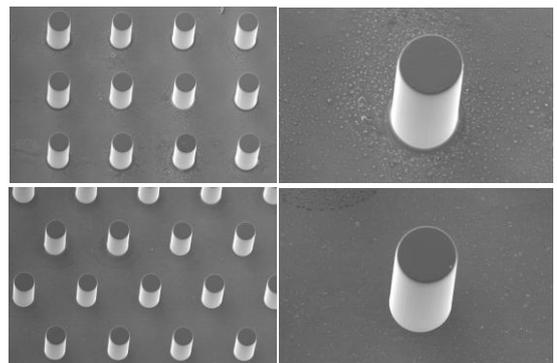


左図は、直入射で得られたフォトレジスト基板の現像済フォトレジストのレーザー顕微鏡撮像を示す。上段の左側が2次元、右側が3次元の六方配列である。下段のレーザー解析では、このフォトレジストに作製されたマイクロ円柱配列は、高さ;約230μm、直径;約100μm、最近接距離;約300μmのマイクロ構造仕様を示す。

正方および六方配列の構造特性は、高輝度X線による照射実験に使用したX線フォトマスクの

2次元マイクロ細孔配列を反映している。また、レーザー解析から、これらのマイクロ円柱の上面および側面は極めて滑らかに形成されていることが確認された。

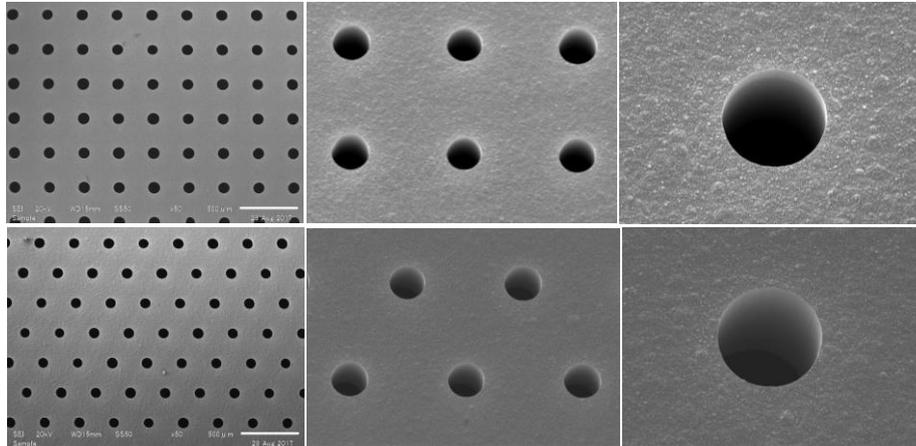
前述した様に、本実験で使用したX線フォトマスクには正方および六方配列の領域(外形サイズ;40x28mm)がある。現像済フォトレジストで作製された2種類の領域でのポリマー製マイクロ円柱配列の構造特性を調べるために、これらの領域の一部はスパッター装置によりAuコートされた。右図は、AuコートしたフォトレジストのSEM撮像である。この図の上段には正方、下段には六方配列のマイクロ円柱が示されている。直入射により同時に作製された正方、六方配



直入射により同時に作製された正方、六方配

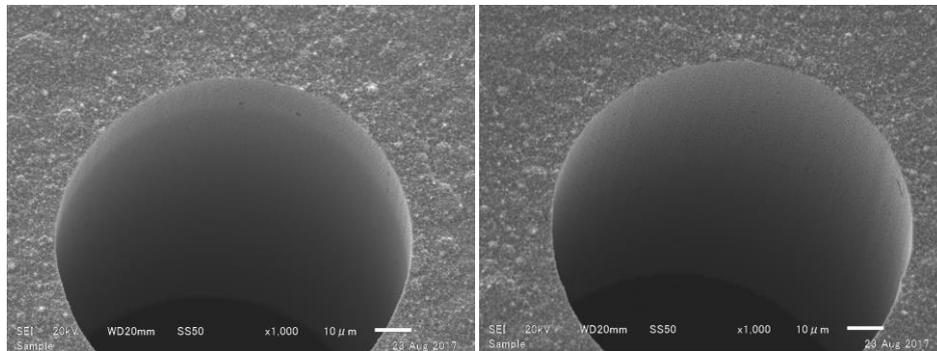
列は、高質な同一のマイクロ円柱をもつ。特に、これらの円柱の拡大図（右側上下）は、極めて高精度で滑らかな側面を示す。

本研究では、高質なマイクロ細孔配列をもつ金属製薄板の量産化が最終目的である。従って、上図の Au コートされた領域を除いて、これらのポリマー製マイクロ円柱配列に対する Ni 製電気めっきを行った。従って、フォトレジスト基板のガラス表面にコートされた数百 Å の無電解 Ni 層がめっき工程の陰極板となる。めっき処理後には、金属製薄板のマイクロ細孔内部にあるポリマー製マイクロ円柱は剥離処理により除去される。下図は、正方配列（上段）および六方配列（下段）のマイクロ細孔を示す Ni 製金属薄板の SEM 撮像である。ただし、これらの撮像で、下図の左側上下は直入射、中央および右側は試料表面を 15° 傾斜して拡大撮影されている。左側、中央、右側の撮影倍率はそれぞれ 50 倍、100 倍、300 倍である。このめっきにおける処理条件は、めっき電流；100mA、めっき時間；約 70 時間、めっき温度；45℃であった。また、正方配列と六方配列の Ni めっき厚はそれぞれ約 208μm、210μm であった。これらの SEM 撮像から、正方と六方配列の高質なマイクロ細孔が同一の高輝度 X 線照射により作製できることが確認された。



き時間；約 70 時間、めっき温度；45℃であった。また、正方配列と六方配列の Ni めっき厚はそれぞれ約 208μm、210μm であった。これらの SEM 撮像から、正方と六方配列の高質なマイクロ細孔が同一の高輝度 X 線照射により作製できることが確認された。

これらのマイクロ細孔の構造特性を評価するために、1000 倍の SEM 撮像が下図に示されている。この図の左側が正方配列、右側が六方配列のマイクロ細孔である。従って、LIGA めっき工程で製作された Ni 製金属薄板は約 0.5μm 以下の Ni マイクログレインが集合した 1~3μm 程度のマイクロクラスターの積層集合体から形成されていて、このマイクロ細孔側面はかなり高質な滑らかさを保持していることが確認された。前述したように、これらの細孔側面の滑らかさはポリマー製マイクロ円柱側面の高質化による。



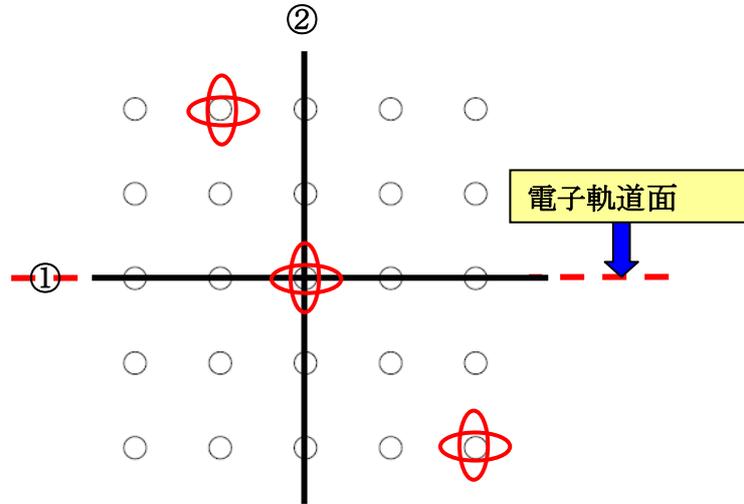
## 4-2. テーパー型マイクロパターン

金属製のテーパー型マイクロ細孔配列を LIGA により試作する本照射実験では、X 線フォトマスクに描画されたマイクロパターンは、高輝度 X 線の斜入射多重露光により照射用フォトレジストに等倍転写をされた。この斜入射角度がテーパー角度に相当する。本実験で使用する斜入射多重露光はマイクロ細孔配列やマイクロ円柱配列を製造するのに有効であるかを調べるために、2 種類の斜入射実験を行った。特に、これらの配列が示すマイクロ構造と斜入射方向の結晶学的な対称性；4 回対称と 6 回対称との相関を検証した。テーパー型マイクロパターンは、特定軸周りの全回転操作により作製できる。ただし、本実験では、X 線フォトマスクに描画された正方と六方配列のマイクロ細孔は同時に照射された。この目的は、種々の空間配列をもつマイクロパターンが斜入射多重露光によりどのような構造特性を示すかを調べるためである。

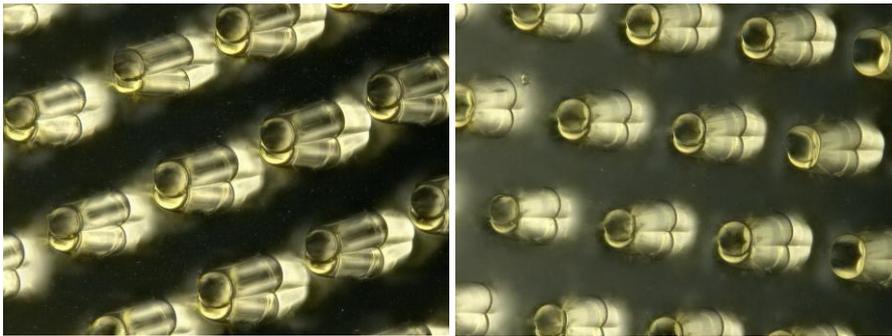
### 4-2-1. 4 回対称実験

下図は本実験で利用した高輝度 X 線の 4 回対称斜入射による 2 重露光の概念図である。この図に

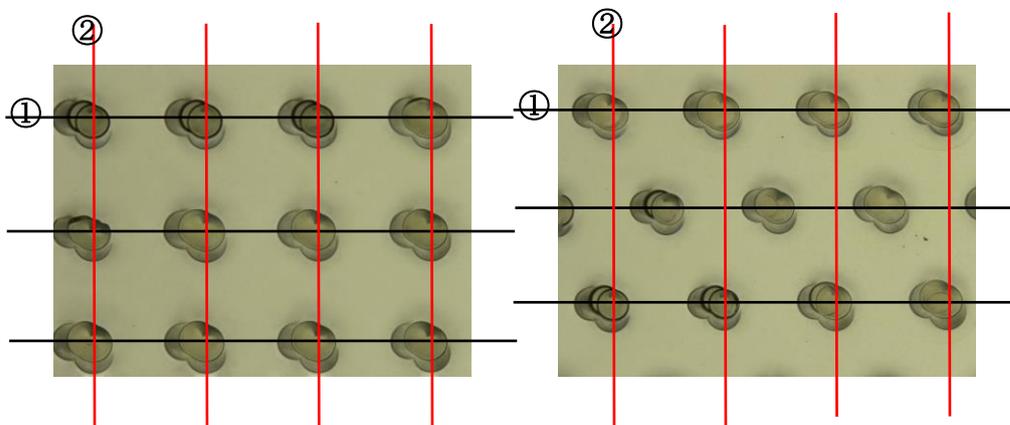
は、高輝度X線の入射方向（Y軸）から見たフォトレジスト基板上のX線フォトマスクが表示されている。図中の小円配列がこのマスクに描画された正方配列のマイクロ細孔（細孔内部；ポリマー製マイクロ円柱）を表している。また、シンクロtron光加速器の電子軌道面は水平方向；（X-Y）面内である。従って、本実験では、同一フォトレジストにこの軌道面を逐次に①と②にセットして2重露光実験を行った。ただし、テーパー角度で斜入射するために、フォトレジスト基板は、①および②ではZ軸周りに $\theta = 5^\circ$  であらかじめ回転している。マイクロ細孔に描かれた赤線楕円は、4回対称実験によるテーパー型マイクロ細孔を表している。



下図には、4回対称の斜入射2重露光で得られた現像済フォトレジストのマイクロスコープ撮像が示されている。フォトレジストの厚さは約  $260\mu\text{m}$  である。この図の左側が正方配列、右側が六方配列である。2重露光で作製されたポリマー（PMMA）製マイクロ円柱配列が観測される。これらの撮像では、マイクロスコープの鏡筒は現像済フォトレジスト基板に対して傾けて撮影されている。ただし、LIGAの後処理工程・めっきを考慮して、フォトレジスト基板のガラス表面には、照射実験前に無電解Niがコートされている。これらの基板背景の黒色はこのNiコートによる。従って、いずれのガラスにも、2重露光による2種類のポリマー製マイクロ円柱配列が映っている。

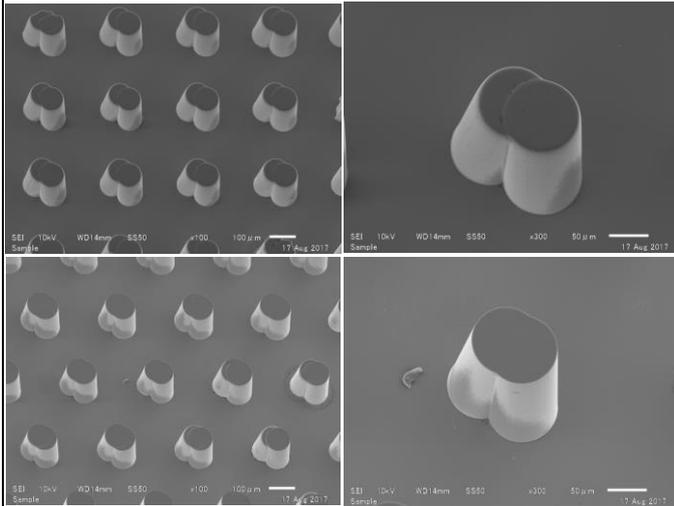


これらのマイクロ円柱配列の2次元マイクロスコープ撮像が下図に示されている。この図の左側が正方配列、右側が六方配列である。図中の表示①、②は前述した2重露光の概念図に表示されている。また、黒線および赤線は、斜入射①および②における各マイクロ円柱を結んだ中心線を示している。従って、4回対称の2重露光が六方配列のマイクロ円柱にも反映されていることが確認された。



ただし、黒線と赤線との交点は、斜入射2重露光で作製された各テーパー型マイクロ円柱上面が互

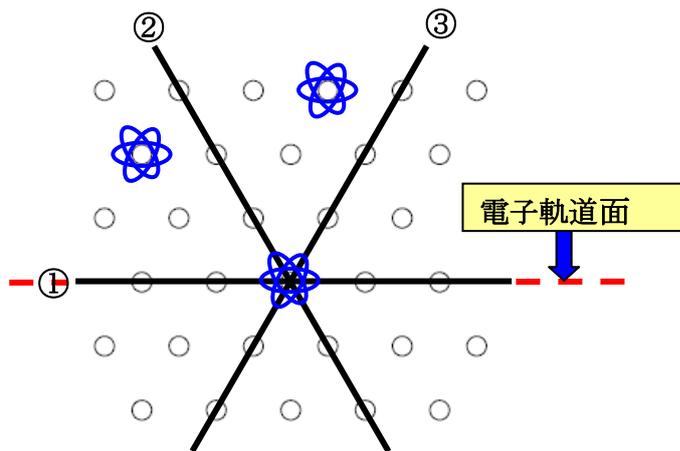
いに若干シフトしていることを示す。この事象は、本照射実験に使用したX線ゴニオメーターの座標軸とフォトレジスト表面の座標軸が off-center であったことを示す。従って、テーパー型のマイクロパターンを試作研究には、これらの座標系の一致が重要であることを確認した。



斜入射 2 重露光で得られた現像済フォトレジストで作製された 2 種類の領域でのポリマー製マイクロ円柱配列の構造特性を調べるために、一部の正方および六方配列はスパッター装置により Au コートされた。左図は、Au コートしたフォトレジスト領域での SEM 撮像である。上段には正方配列、下段には六方配列のマイクロ円柱が示されている。X線ゴニオメーター座標軸とフォトレジスト座標軸の若干 off-center 状態がこれらのマイクロ円柱上面で観測されるが、右側上下の拡大図はマイクロ円柱側面が極めて高精度で滑らかな側面を示している。

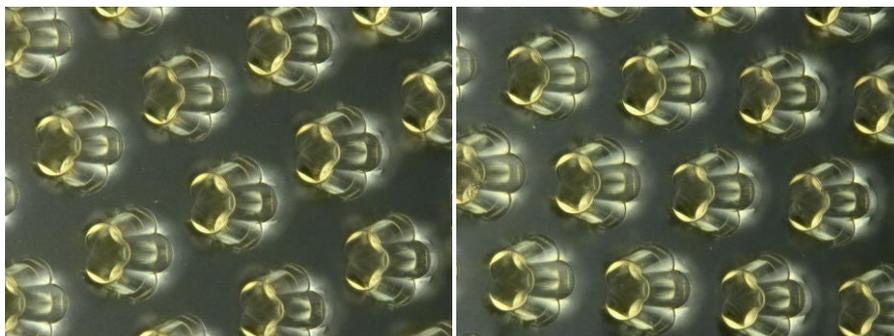
#### 4-2-2. 6回対称実験

下図は、本実験で利用した 6 回対称斜入射による 3 重露光の概念図である。この図にも、高輝度 X 線の入射方向 (Y 軸) から見たフォトレジスト基板上的 X 線フォトマスクが表示されている。図中の小円配列がこのマスクに描画された六方配列のマイクロ細孔 (細孔内部; ポリマー製マイクロ円柱)



を表している。シンクロトロン光加速器の電子軌道面は水平方向; (X-Y) 面内である。従って、本実験では、同一フォトレジストにこの軌道面をそれぞれ①、②、③と逐次にセットして 3 重露光実験を行った。ただし、テーパー角度で斜入射するために、フォトレジスト基板は、①、②、③では Z 軸周りに  $\theta = 10^\circ$  あらかじめ回転している。マイクロ細孔に描かれた青線楕円は、6 回対称実験によるテーパー型マイクロ細孔を表している。ただし、この実験では、X 線フォトマスクに描画された正方配列のマイクロ細孔も同時に照射された。

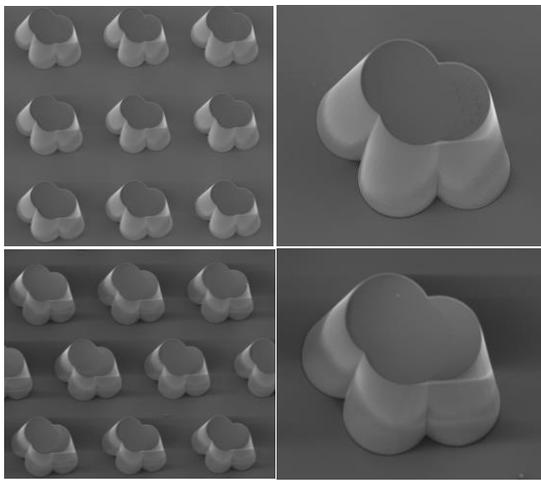
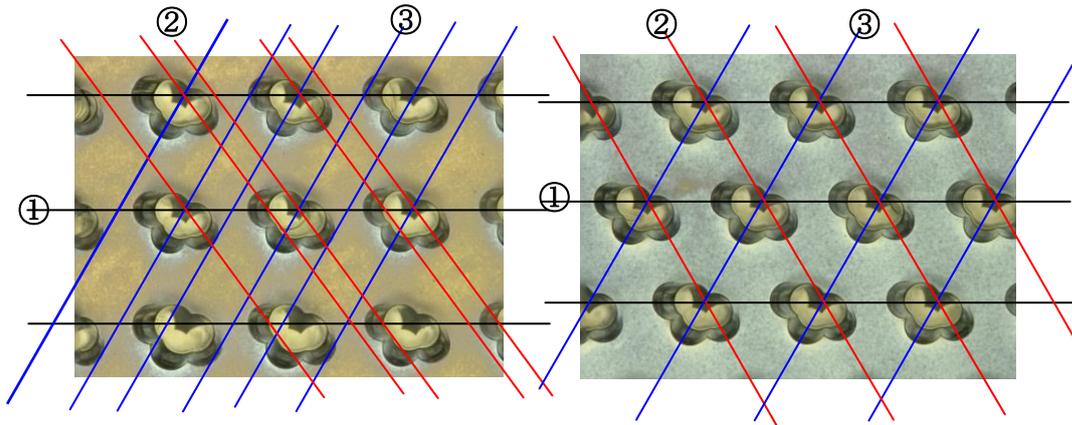
下図には、6 回対称の斜入射 3 重露光で得られた現像済フォトレジストのマイクロスコープ撮像が示されている。フォトレジストの厚さは約  $250\mu\text{m}$  である。この図の左側が正方配列、右側が六方配列である。3 重露光で作製されたポリマー (PMMA) 製マイクロ円柱配列が観測される。ただし、



LIGA のめっき工程を考慮して、フォトレジスト基板のガラス表面には、照射実験前に無電解 Ni コートがされている (めっきでの陰極板になる)。従って、いずれのガラスにも、3 重露光によるポリマー製マイクロ円柱配列が映っている。

これらのマイクロ円柱配列の 2 次元マイクロスコープ撮像が下図に示されている。この図の左側が正方配列、右側が六方配列である。図中の①、②、③は前述した 3 重露光の概念図に表示されている。また、黒線、赤線および青線は、斜入射①、②、③における各マイクロ円柱を結んだ中心線を示して

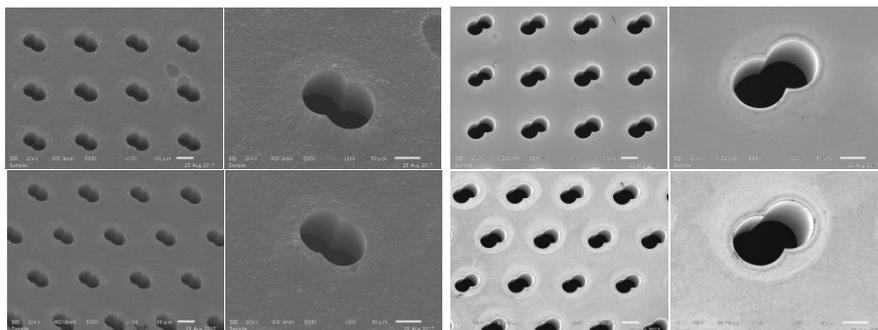
いる。従って、6回対称の3重露光が六方配列のマイクロ円柱にも反映されていることが確認された。ただし、黒線、赤線、青線との交点は、斜入射3重露光で作製された各テーパ型マイクロ円柱上面が互いに若干シフトしていることを示す。前述したように、この事象は、本照射実験に使用したX線ゴニオメーターの座標軸とフォトリソ表面の座標軸が off-center であったことを示す。従って、テーパ型のマイクロパターンの試作研究には、これらの座標系の一致が重要であることを再確認した。



斜入射3重露光で得られた現像済フォトリソで作製されたこれらの領域でのポリマー製マイクロ円柱配列の構造特性を調べるために、一部の正方および六方配列はスパッター装置により Au コートされた。左図は、Au コートしたフォトリソ領域での SEM 撮像である。上段には正方配列、下段には六方配列のマイクロ円柱が示されている。X線ゴニオメーター座標軸とフォトリソ座標軸の off-center 状態がこれらのマイクロ円柱上面で観測されるが、右側上下の拡大図はマイクロ円柱側面は極めて高精度で滑らかな側面を示している。

#### 4-2-3. Ni 製テーパ型マイクロ細孔配列の SEM 撮像

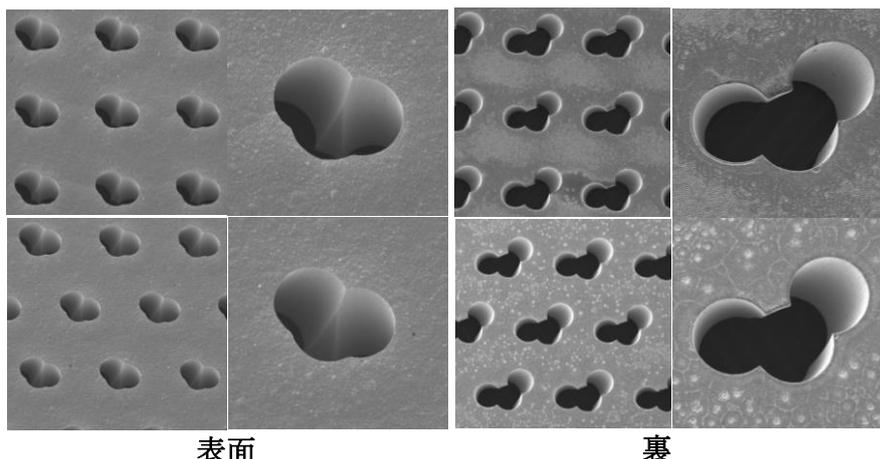
テーパ型マイクロ細孔配列をもつ金属製薄板（厚さ；約 200~300 $\mu\text{m}$ ）製作の技術開発のために、上図の Au コートされた領域を除いて、これらのポリマー製マイクロ円柱配列に対する Ni 製電気めっきを行った。このめっきの陰極板は、フォトリソ基板のガラス表面に化学的にコートされた無電解 Ni 層（厚さ；数百  $\text{\AA}$ ）である。めっき処理後には、金属製薄板のマイクロ細孔内部にあるポリマー製マイクロ円柱は剥離処理により除去される。下図には、4回対称実験で得られた正方配列（上段）および六方配列（下段）のマイクロ細孔を示す Ni 製金属薄板の SEM 撮像である。また、左側には表面、右側には裏面が示されている。本実験のめっき処理条件は、（4-1.）項のストレート型マイクロパターンの条件と同じである。



表面

裏面

下図には、6回対称実験で得られた正方配列（上段）および六方配列（下段）のマイクロ細孔をもつNi製金属薄板のSEM撮像である。また、左側には表面、右側には裏面が示されている。ただし、これらの撮像およびめっき処理条件は、上図の4回対称実験と同じである。



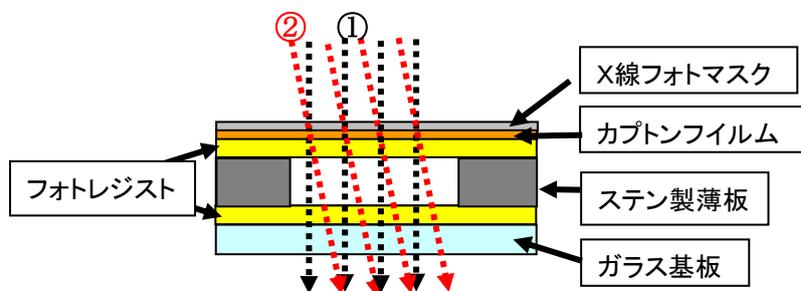
表面

裏

4回対称および6回対称の斜入射多重照射により得られたSEM撮像から、マイクロ細孔配列をもつ金属製薄板の表面と裏面から観察できるマイクロ細孔口の形状およびマイクロ細孔側面は、高精度な高質なマイクロ構造を示すことが確認された。従って、テーパ型マイクロ細孔配列は、あらかじめフォトリソ基板をX線回析装置（ゴニオメーター）の鉛直軸（Z軸）周りに小角度（ $\theta =$ 約 $3 \sim 5^\circ$ ）回転・固定した後、高輝度X線の入射方向（Y軸）まわりに1回転することにより作製できることが確認された。また、本照射実験は、結晶学的な対称操作を斜入射多重露光に使用することにより任意の形状をもつテーパ型のマイクロ細孔やポリマー製マイクロ柱の配列が製作できることを示唆する。

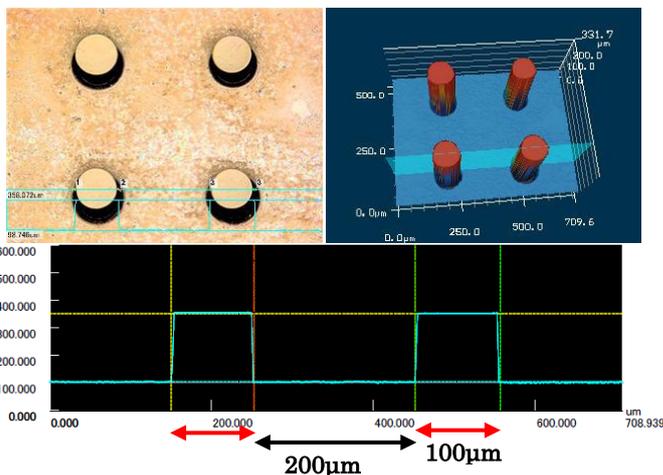
### 4-3. マイクロチャンネル

下図は、本実験で利用した高輝度X線の斜入射法による積層フォトリソ基板への2重露光の概念図である。等倍転写用のX線フォトマスク下部には、カプトンフィルム（厚さ；約 $125\mu\text{m}$ ）上に塗布したフォトリソ基板（K-基板）と硬質ガラス上に塗布したフォトリソ基板（G-基板）が設置された。本実験で作製したK-基板およびG-基板のフォトリソの厚さは約 $240 \sim 300\mu\text{m}$



である。マイクロチャンネルの試作研究に望まれる高厚（ $3 \sim 5\text{mm}$ ）なフォトリソシートはまだ製作検討中であるので、本実験では、K-基板とG-基板との間に厚さ； $2 \sim 3\text{mm}$ のステンレス製薄板を挿入した。従って、入射X線側にK-基板を、冷却試料ホルダー側にG-基板を配置した。

斜入射によるK-基板とG-基板でのマイクロパターン転写撮像の位置関係を解析するために、

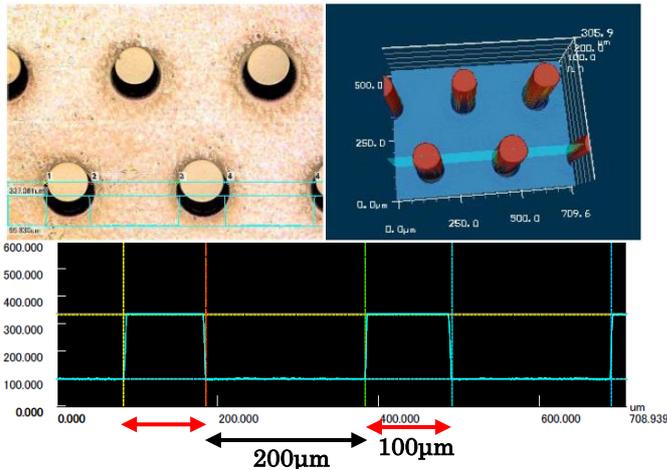


上図の様に照射X線の直入射①と斜入射②との2重露光をフォトリソに行った。下図は、概念図に示した2重露光用のフォトリソ基板ホルダーを使用して、高輝度X線の直入射で得られたK-基板の照射・現像済フォトリソのレーザー顕微鏡撮像を示す。上段の左側が2次元、右側が3次元の正方配列である。前述した様に、これらの撮像には2個のポリマー製マイクロ円柱をスキャンするレーザー軌跡（X軸方向）が青線で表示されている。更に、2次元図にはこの青線軌跡の下方にレーザー解析の高さ方向

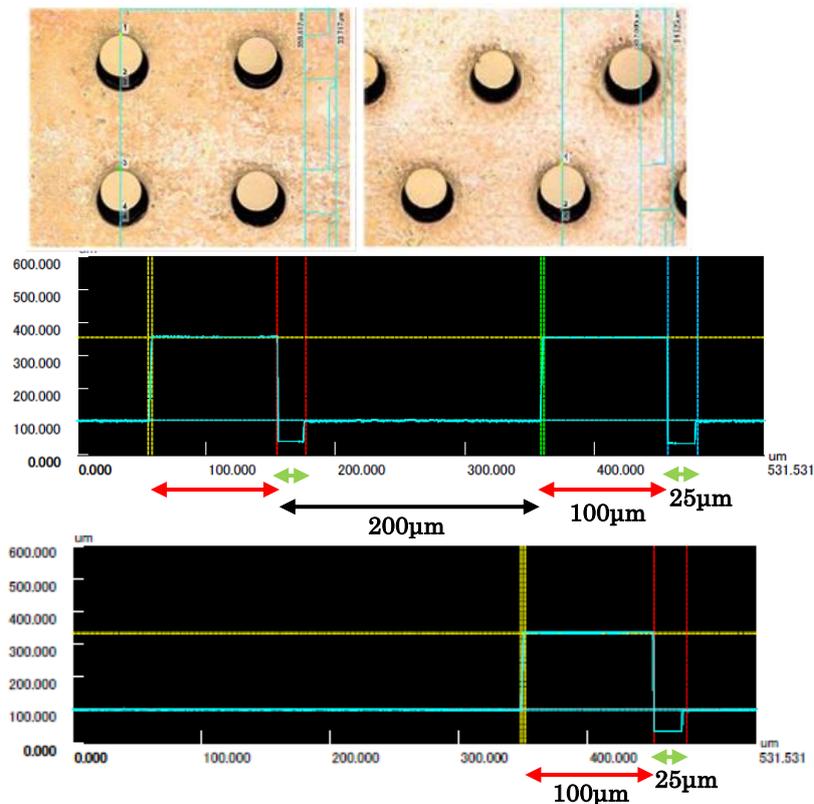
(Y軸方向)における計測値も示されている。下段には、レーザー軌跡に沿った解析(レーザー解析)が示されている。従って、このフォトレジストに作製されたマイクロ円柱配列は、高さ;約250 $\mu\text{m}$ 、直径;約100 $\mu\text{m}$ 、最近接距離;約300 $\mu\text{m}$ のマイクロ構造仕様を示す。

下図には、上図と同様なK-基板のフォトレジストのレーザー顕微鏡撮像を示す。ただし、六方配列のポリマー製マイクロ円柱が示されている。このレーザー解析も、マイクロ円柱配列は、高さ;約

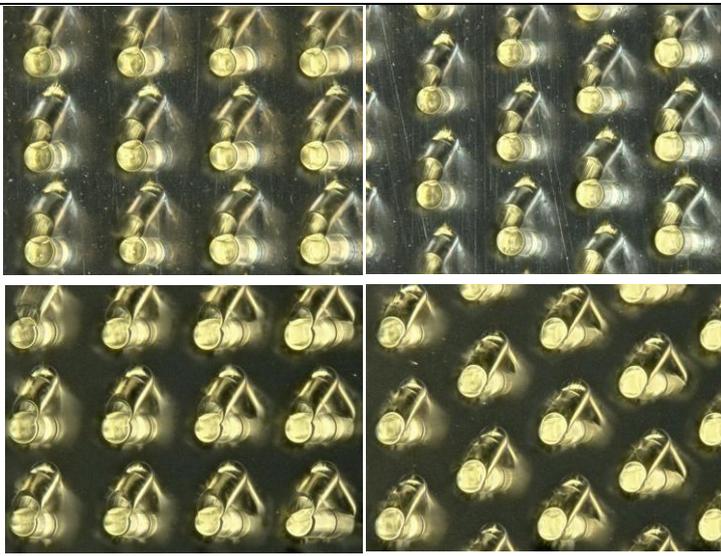
230 $\mu\text{m}$ 、直径;約100 $\mu\text{m}$ 、最近接距離;約300 $\mu\text{m}$ のマイクロ構造仕様を示す。しかし、正方および六方配列の2次元撮像は、(4-1)項の高輝度X線の直入射の撮像と少し異なる。これらのマイクロ円柱の下方部に黒色の陰影が観測される。従って、マイクロチャンネルの実験では、X線スキャナーの冷却試料ホルダーに搭載されたフォトレジスト基板は、入射X線ビームに対してX軸周り( $\chi$ 角度)に少し傾斜していたことを示唆する。



フォトレジスト基板の傾斜角度を調べるために、これらの正方および六方配列のマイクロ円柱で観測される陰影に沿ってレーザー解析を行った。次図の上段には正方配列と六方配列の2次元レーザー顕微鏡撮像が示されている。レーザー軌跡は上下方向(Z軸方向)であり、これらのマイクロ円柱の陰影を横切っている。また、中段図(正方配列)および下段図(六方配列)には、Z軸方向に計測されたレーザー解析結果が示されている。テーパ型マイクロパターンの項で述べた様に、レーザー顕微鏡では物体表面から反射されたレーザー光の検出により光路距離を計測している。従って、陰影部は反射レーザー光が検出されていないことから生じる。この事象はマイクロ円柱の側面が傾斜していることを示唆する。レーザー解析から、これらのマイクロ円柱は、中段図では高さ;約250 $\mu\text{m}$ 、陰影底面の幅;約25 $\mu\text{m}$ 、下段図では高さ;約230 $\mu\text{m}$ 、陰影底面の幅;約23 $\mu\text{m}$ であった。これらの解析結果から、フォトレジスト基板の傾斜角度は、高輝度X線の入射側に $\chi \sim 5^\circ$ であることが明らかになった。



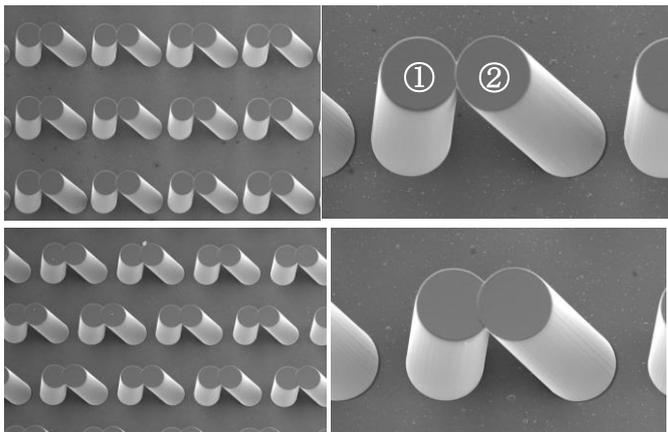
マイクロチャンネル製作に関する2重露光の斜入射②では、Z軸周りに $\theta = 20^\circ$ 回転させた。しかし、後述するように、この基板の傾斜は、2重露光実験の解析・評価にあまり影響ないことが明らかになった。



かになった。本実験では、X線フォトレジストに描画されたマイクロ細孔配列は、直入射①および斜入射②による2重露光によりK-基板(X線入射側)およびG-基板(冷却試料ホルダー側)の照射用フォトレジストに等倍転写された。K-基板およびG-基板のフォトレジストの厚さは、照射する前にはそれぞれ約 $270\mu\text{m}$ 、 $300\mu\text{m}$ であった。これらの基板間に挿入されたステンレス製薄板の厚さは $3\text{mm}$ であった。下図には、現像済フォトレジストのマイクロSCOPE撮像が示されている。上段にはK-基板、下段にはG-基板が示されている。また、左側上下が正方形配列、右側上下が六方配列である。ポ

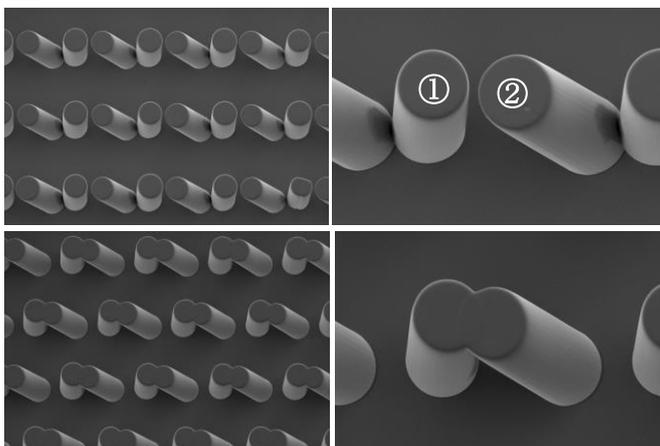
リマー(PMMA)製マイクロ円柱は透明であるので、直入射の円柱はマイクロSCOPEのハロゲン灯で明るく、斜入射のものは円柱側面でのハロゲン灯の反射で黒く観察される。ただし、LIGAの後処理工程・めっきを考慮して、K-基板のカプトンフィルム表面およびG-基板のガラス表面は、照射実験前に数百Åの無電解Niコートが行われている。これらの基板背景の黒色はこのNiコートによる。従って、いずれのガラスにも、直入射と斜入射のポリマー製マイクロ円柱配列が映っている。

これらのポリマー製マイクロ円柱配列の構造特性を調べるために、スパッター装置を使用して、現像済フォトレジスト表面をAuコートした。下図は、K-基板上のAuコートしたフォトレジストのSEM撮像である。この図の上段には正方形、下段には六方配列のマイクロ円柱が示されている。これ



らの直入射①および斜入射②により形成された正方形、六方配列において、高精度に同一のマイクロ構造・円柱が作製されていることが確認される。特に、これらのマイクロ円柱側面の拡大図から、X線フォトマスクに描画された2D状の円形状マイクロパターンは、照射用フォトレジストの高質なマイクロ円柱配列に変換できていることが明らかになった。これらのレーザー解析では、正方形および六方配列でのマイクロ円柱は、直径;約 $100\mu\text{m}$ 、高さ;約 $260\mu\text{m}$ であった。

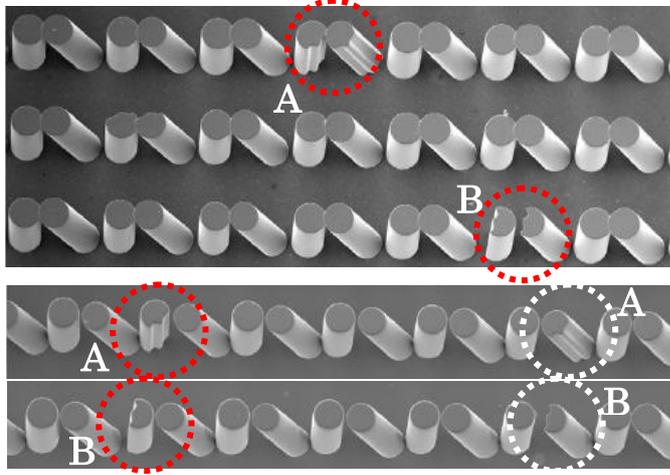
下図は、G-基板上のAuコートしたフォトレジストのSEM撮像である。この図の上段には正方形、下段には六方配列のマイクロ円柱が示されている。K-基板上のAuコート・フォトレジストと同様に、これらの2種類の入射法により形成された正方形、六方配列のマイクロ円柱配列は高精度に作製され



ていることが確認される。これらのマイクロ円柱側面も、極めて滑らかに形成されている。これらのレーザー解析では、正方形および六方配列でのマイクロ円柱は、直径;約 $100\mu\text{m}$ 、高さ;約 $280\mu\text{m}$ であった。従って、K-基板とG-基板との間に厚さ; $3\text{mm}$ のステンレス製薄板が挿入されているが、K-基板で作製されたマイクロ円柱の構造特性は、G-基板のものとは大きな相違は観測されない。この事柄は、シンクロトロン光・高輝度X線の光学的指向性が微細加工に優れていることを示唆する。ただし、使用したフォ

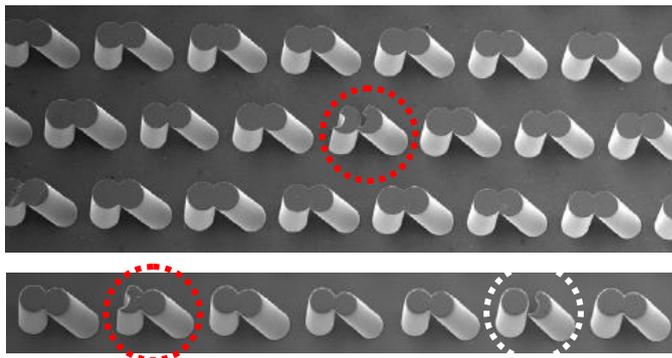
トレジストの照射・現像する前の厚さ（K-基板では約 270 $\mu\text{m}$ 、G-基板では約 300 $\mu\text{m}$ ）とマイクロ円柱の高さ（K-基板では約 260 $\mu\text{m}$ 、G-基板では約 280 $\mu\text{m}$ ）との相違は、高輝度X線による硬化による。従って、LIGA 処理工程では、この影響を考慮する必要がある。

直入射で得られた各マイクロ円柱は、K-基板とG-基板のフォトレジストでの相対的な位置決めが容易である。しかし、斜入射では、これらの基板でのマイクロ円柱の位置決めは容易でない。本照射実験で使用したX線フォトマスクのAu基板は、正方配列では約 12600 個、六方配列では約 14500 個のマイクロ細孔をもつ。ただし、これらの細孔内部には、ポリマー（PMMA）製のマイクロ円柱が形成されている。これらの細孔形状をマイクロSCOPEで観察すると、いくつかの細孔は円形から



歪んでいることが確認された。これらの変形したマイクロ円柱は、X線フォトマスク作製時におけるAuめっき処理の不完全から形成された。しかし、これらの変形細孔を利用して、斜入射時におけるK-基板とG-基板のフォトレジストでの相対的な位置決めを試みた。左図の上段には、K-基板のAuコート・フォトレジストの正方配列でのマイクロ円柱の2重露光が示されている。赤点線円で示された個所に、直入射と斜入射の変形円柱（A、B）が観測される。下段の二つの図には、G-基板の正方配列でのマイクロ円柱の2重露光が示されている。K-基板の赤点線円で示された直入射

と斜入射の変形円柱は、G-基板では赤点線円と白点線円で示された変形円柱に分離している。従って、正方配列におけるK-基板とG-基板との変形円柱を比較することにより、G-基板での同一の変形円柱の位置決めが可能になった。



左図には、前図と同様なK-基板（上段）とG-基板（下段）のAuコート・フォトレジストの六方配列でのマイクロ円柱の2重露光が示されている。K-基板の赤点線円で示された直入射と斜入射の変形円柱は、G-基板では赤点線円と白点線円で示された変形円柱に分離している。従って、六方配列でも、K-基板とG-基板との変形円柱を比較することにより、G-基板での同一の変形円柱の位置決めが可能になった。

これらの直入射、斜入射における変形マイクロ円柱の相対的な位置関係から、本実験の斜入射によるマイクロチャンネル作製の情報を得ることができる。前述したように、本実験では、K-基板とG-基板でのマイクロ円柱の高さ（照射・現像済フォトレジストの厚さ）は、それぞれ約 260 $\mu\text{m}$  と約 280 $\mu\text{m}$  であった。また、これらの基板間に挿入されたステンレス製薄板の厚さは 3mm であった。G-基板で直入射と斜入射で観測された変形マイクロ円柱間の距離は、直入射時のマイクロ円柱間の距離（約 300 $\mu\text{m}$ ）から約 1200 $\mu\text{m}$  であることが明らかになった。この計測値から得られる斜入射角度は約 18.7° になる。本実験での斜入射は、Z軸周りに $\theta = 20^\circ$  回転させている。しかし、これらのK-基板およびG-基板のAuコートしたフォトレジストのレーザー解析では、フォトレジスト基板はX線入射側に $\chi = \text{約 } 1.7^\circ$  傾斜していた。従って、この基板傾斜を考慮すると、高輝度X線の斜入射はマイクロチャンネル作製に有効であることを確認した。

## 5. 今後の課題

本研究の主目的は、シンクロトロン光・高輝度X線を利用するLIGA微細加工（SL-LIGA）を使用して、正方および六方配列のマイクロ細孔をもつ金属製薄板の製作に関連する技術開発であった。本実験結果の解析・評価により、ストレート型およびテーパ型（taper）の金属製マイクロ細孔配列およびポリマー製マイクロ円柱配列の製作が可能になった。また、本実験で開発した斜入射多重露光は、各種のポジ型&ネガ型の3次元マイクロチャンネルの製作に極めて有効であることを確認した。従って、今後の研究課題としては、SL-LIGAを利用してテーパ型を含む任意のマイクロ形状をもつマ

イクロ構造配列や3次元マイクロチャンネルの実用化に向けた技術開発を推進していきたい。このためには、現有のX線回析装置（ゴニオメーター）の改造および高厚（3～5mm）のフォトレジストシートを試作研究を行いたい。

6. 参考文献 該当なし

7. 論文発表

- ①平成21、22、23年度戦略的基盤技術高度化支援事業 研究成果報告書「シンクロトロン光を利用する、ナノテクノロジー・MEMS 関連の部品・金型製造におけるめっき技術の研究開発」
- ②シンクロトロン光・高輝度X線を利用する深刻X線リソグラフィによる LIGA 微細精密めっき加工の技術開発. 日高昌則、常葉 信生、河崎 将市、田口英信、九州シンクロトロン光研究センター、2009-2010年報、P35-38
- ③Development of the new sensor-elements being a metallic micro-filament. The elements sensitively respond to the applied actions of light, heat and/or pressure. The micro-filaments were made by a LIGA micro-machining (I). T.Takeshita, M.Hidaka, R.Takeuchi, H.Nogami, N.Tokiwa, S.Kawasaki, R.Sawada, H.Taguchi, 12, Bio4Apps2015.
- ④Correlation between the characteristic material properties and the electronic density of band-states & localized microstructure for Ni ions of the micro-filaments made by the LIGA micro-machining (II). M.Hidaka, T.Takeshita, H.Nogami, N.Tokiwa, S.Kawasaki, H.Akiyama, H.Fujii, R.Sawada, H.Taguchi, 12, Bio4Apps2015.

8. キーワード

LIGA 微細加工、マイクロ細孔配列、マイクロ円柱配列、マイクロチャンネル

9. 研究成果公開について

研究成果公報の原稿提出 （提出時期：2019年8月）