

機関番号:34419

研究種目:基盤研究(C)

研究期間:2008~2010

課題番号:20560094

研究課題名(和文)ナノインプリント犠牲樹脂型インサート粉末射出成形による  
マイクロ構造体の転写性評価研究課題名(英文)Evaluation of Transcription on Micro-structured Parts by Nano-Imprint  
Lithography Sacrificial Plastic Mold Insert Powder Injection Molding

研究代表者

西藪 和明(NISHIYABU KAZUAKI)

近畿大学・理工学部・准教授

研究者番号:30208235

研究成果の概要(和文):本研究では、ナノインプリントリソグラフィ(NIL)技術により作製された微細構造を有する樹脂成形物を樹脂型に用い、ナノサイズの金属粉末で調合されたMIM材料を射出成形し、脱脂および焼結を経て数 $\mu\text{m}$ ~数十 $\mu\text{m}$ のマイクロ構造体を得るNIL/ $\mu$ -SPiMIMプロセスを開発した。熱重量分析、炭素・酸素分析およびSEM観察により脱脂・焼結挙動を調査し、得られたマイクロ構造体の焼結密度や収縮率および形状精度に及ぼす焼結温度の影響を調査した。本プロセスにより作製したマイクロ構造体(高さ10 $\mu\text{m}$ 、幅5 $\mu\text{m}$ および10 $\mu\text{m}$ )の形状転写性は高く、ナノサイズの銅粉末はマイクロサイズの銅粉末よりも低温で焼結が進行し、低温焼結体(573K)では微細な多孔質構造を有し、高温焼結体(973K)では相対密度95%以上の緻密な焼結体を得ることができた。

研究成果の概要(英文): This study aims to develop the manufacturing method of micro-structured parts by the metal powder injection molding (MIM) inserted micro-sacrificial plastic molds which were prepared by nano-imprint lithography (NIL) technique. In this process named NIL/ $\mu$ -SPiMIM, the feedstock composed of nano-sized copper powder and polyacetal-based binder was adequately prepared and molded into polymethylmethacrylate films with fine line-scan structures, and the molded parts were sintered in a reductive gas atmosphere followed by solvent debinding of the films. The behavior in debinding and sintering was investigated by thermo-gravimetric analysis, carbon and oxygen analysis and SEM observation. The effects of sintering temperature on sintered density and shrinkage, profile accuracy were evaluated systematically. It can be concluded that the manufacturing method named NIL/ $\mu$ -SPiMIM proposed in this study has great potential to produce precisely 3 dimensional complex metallic parts with fine micro-structures.

交付決定額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2009年度	900,000	270,000	1,170,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野:粉末成形加工

科研費の分科・細目:工学・機械工学・機械材料・材料力学

キーワード:粉末成形・金属粉末射出成形・焼結・マイクロ構造体・ナノ粒子・転写性・  
ナノインプリント

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 申請者は、金属粉末射出成形 (Metal injection molding, MIM) のマイクロ化に関する研究に注目し、MIM のマイクロ化に必要な型の加工精度を向上させる方法として MIM 独特のポリマー活用技術と精密樹脂加工法を用い、マイクロ金属粉末射出成形 ( $\mu$ -MIM) の高精度化を実現してきた。

(2) MIM のマイクロ化に直面する様々な課題を克服するため、申請者は樹脂型を用いて MIM 原料を射出成形し、脱脂工程で樹脂型を除去するマイクロ犠牲樹脂型インサート金属粉末射出成形 (Sacrificial Plastic Mold Insert MIM,  $\mu$ -SPiMIM) 法を提案した。 $\mu$ -MIM のさらなる高集積化と高アスペクト化を実現させるため、LIGA プロセスにより作製された精密樹脂成形品を MIM の成形型に用いて、脱脂・焼結を経てマイクロ構造体を作成する LIGA/マイクロ犠牲樹脂型インサート金属粉末射出成形 (LIGA/ $\mu$ -SPiMIM) 法を開発した。これにより、MEMS に代表される半導体プロセスでは製造不可能な耐久性の高い材質で、比較的高いアスペクト比の超精密金属構造体の量産化技術を世界で初めて達成した。

(3) 申請者は二つの LIGA/ $\mu$ -SPiMIM プロセス (露光・現像により得たレジスト薄膜を犠牲樹脂型として用いる一段転写法と、LIGA プロセスにより得られた成形体を犠牲樹脂型として用いる二段転写法) を開発したが、それぞれ製造プロセス特有の利点と欠点が存在した。

(4) LIGA/ $\mu$ -SPiMIM のさらなる加工精度や高集積化を目的に、汎用 MIM の金属粉末 (平均粒径数  $\mu\text{m}$ ) よりも、さらに細かいナノ粉末 (平均粒径が数十ナノ) を用いて研究を行なった結果、ナノ粉末の凝集や焼結など解決すべき課題は見られ、ナノ粉末のサイズ効果が現れるような、より精密な構造サイズの樹脂型が必要であることが分かった。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究では幅および厚さが数  $\mu\text{m}$  および  $1\mu\text{m}$  以下のナノインプリントリソグラフィ (NIL) 技術により作製された高精密な樹脂型を用いて、ナノ粉末の転写性の効果を探求することを目的とした。NIL 犠牲樹脂型は、LIGA 犠牲樹脂型よりもさらに微細であるため、射出成形において MIM 原料の型への充填が非常に困難であることが予想された。

(2) マイクロスケールでの構造体における

欠陥を定量的に評価し、ナノ粉を用いた原料および製造条件の最適化を行なうことにより、最終の焼結体の品質を改善することを目的とした。

## 3. 研究の方法

(1) 初年度は、原料および NIL 犠牲樹脂型の基本的な特性を把握し、調合した MIM 原料の熔融粘度特性等を調査し、申請者らが開発した極微量混練射出成形機および金型を改良し、NIL 犠牲樹脂型に MIM 原料をインサート射出成形した。一体で離型した試験片を溶媒抽出し、NIL 犠牲樹脂型と低分子量のバインダを除去し、NIL 犠牲樹脂型内での超微粒子の充填挙動を評価した。また、得られた成形体のマイクロ構造体の形状測定を行った。この際、バインダ量や射出成形条件、NIL 犠牲樹脂型の形状や寸法が MIM 成形体の転写性に及ぼす影響を調査した。

(2) 2年目は、初年度に得られた結果をもとに、初年度に導入した小型電気炉を用いて、MIM 原料および成形・抽出条件を種々変化させて作製した脱脂体に対して、焼結温度および加熱時間などの焼結条件を種々変化させ、得られたマイクロ構造体の形状や表面粗さ測定を行い、焼結体の品質に及ぼす影響を調査し、焼結条件の最適化により焼結体の品質を改善した。また、ナノ銅粉末とダイヤモンド粒子との複合化を試み、ヒートシンクへの応用を検討した。

(3) 最終年度は、初年度の①原料の基本的特性の調査と②成形機および金型の改良により作製可能となった成形体の評価結果、および2年目に実施した③MIM 原料および成形・抽出条件を種々変化させて作製した脱脂体の焼結条件の最適化と、そのマイクロ構造体の転写性の評価、ならびにナノ銅粉末を用いたヒートシンクの試作などの結果を総括して、実生産において活用できる情報として、また本プロセスを専門としない研究者に対しても有益な情報を提供可能な研究成果として整理した。

## 4. 研究成果

(1) ナノ銅粉末 ( $D_{50}=0.7\mu\text{m}$ ) とマイクロ銅粉末 ( $D_{50}=5\mu\text{m}$ )、バインダおよびナノ銅粉末の MIM 原料を成形した後の脱脂体の熱重量分析結果を図 1 に示す。ナノ銅粉末はマイクロ銅粉末よりも酸化開始温度で 100K、酸化終了温度で 300K 低いことが分かった。バインダは 410K から熱分解が開始し、脱脂体は同温度で急激に酸化が開始するため、大気雰囲気ですら脱脂を行うと脱脂体に割れや膨れ

が発生した。そのため、ナノ銅粉末は真空中で脱脂を行う方が望ましいことが分かった。

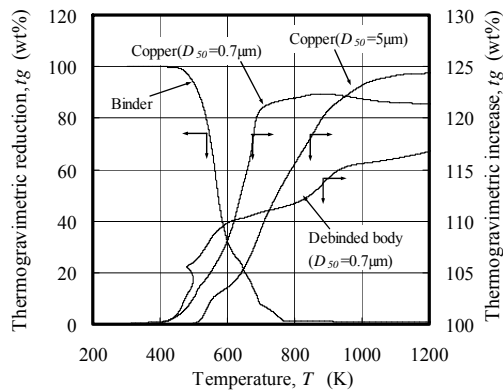


図 1 使用材料の熱分解挙動

(2) 焼結温度の異なる焼結体の相対密度を図 2 に示す。焼結温度 573K のナノ銅粉末焼結体の相対密度は 55% と非常に低く、微細な多孔質構造体が得られた。焼結温度が上昇するほど焼結体の相対密度は増大し、973K での相対密度は約 95% に達し、973K 以上では密度増加は緩慢となった。ナノ銅粉は比表面積が大きいので粒子間の接触抵抗が大きく、射出成形時の流動性を確保するためマイクロ銅粉の MIM 原料よりもバインダ配合割合を高くしたが、973K の低温でマイクロ銅粉末の MIM 製品の相対密度 (約 90%) 以上の高密度な焼結体を得ることができた。

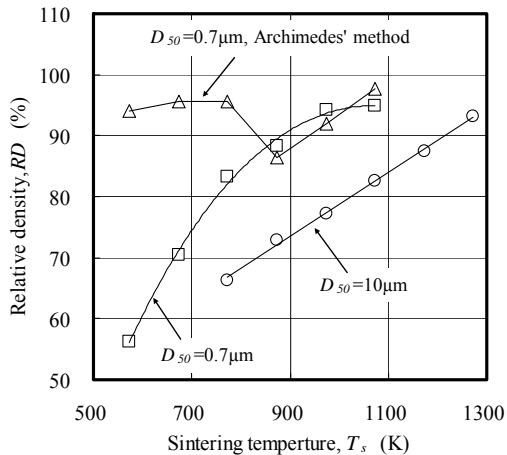


図 2 焼結温度と相対密度の関係

(3) MIM 原料の流動挙動を知るため、充填率を 3 段階に分けてショートショットを行った結果を図 3 に示す。ゲート近傍でジェットイング現象が発生していることが分かった。マイクロ構造体に流動する MIM 原料の流動挙動を調査するために、汎用射出成形解析ソフトを用いて流動解析を行った結果を図 4 に示す。キャビティ内の空気の粘度を低減させた条件では、ショートショット実験で得られたジェットイング現象が良好に再現でき

ている。とくにマイクロ構造体のライン方向に沿って流動していることが分かった。

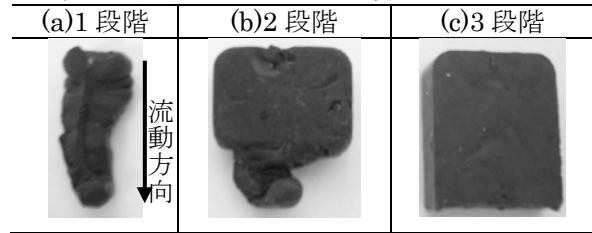


図 3 ショートショットによる充填状態

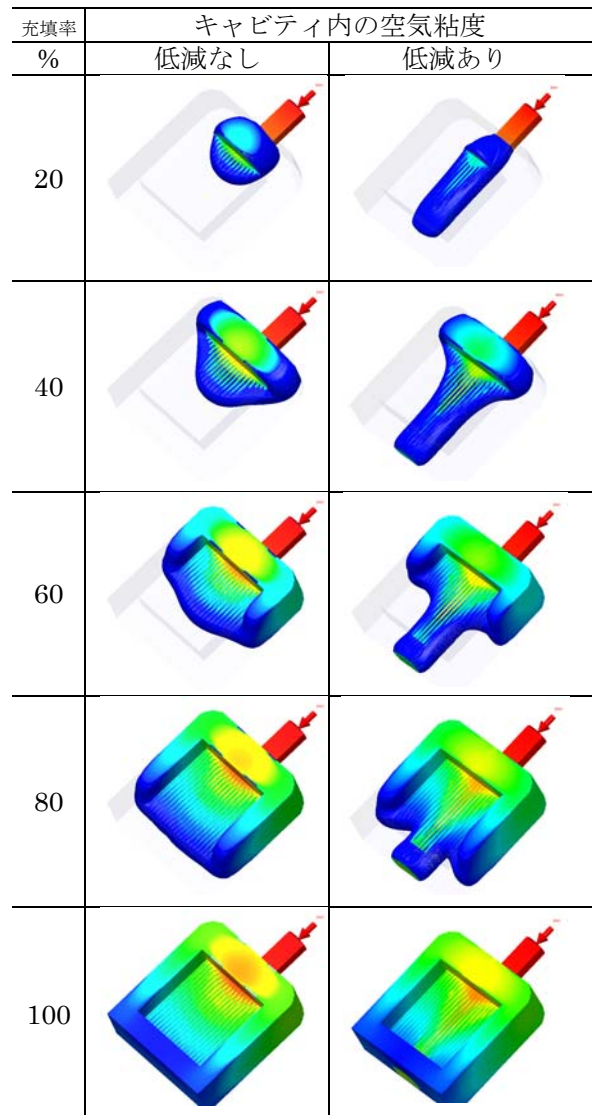


図 4 流動解析の結果例

(4) 成形体、573K および 973K 焼結体の構造体の外観および断面の SEM 像を図 5 に示す。成形体ではマイクロ構造体の凸部および凹部が良好に転写され、凸部の上角縁にバインダが充填されている。573K の低温焼結体ではバインダが除去され、内部にナノスケールの微細な気孔が均質に分布した多孔質構造を呈している。寸法計測の結果より、573K 焼結体の凸部の高さ方向のみ 5% 程度収縮しているのに対して、973K 焼結体ではマイク

口構造体の幅および高さ方向に 20%程度大きく収縮していることが分かった。

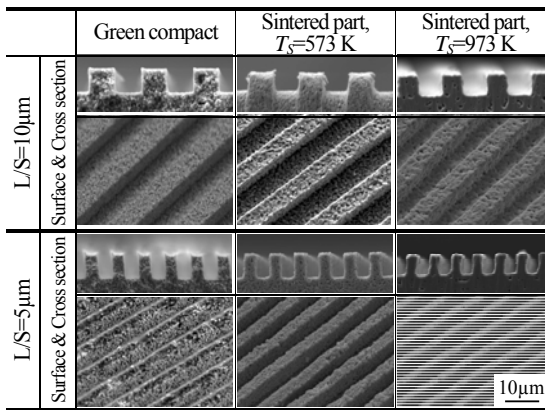


図 5 成形体と焼結体の SEM 像

(5) 汎用マイクロ MIM 製品および著者が研究開発の対象としている次世代マイクロ MIM 部品のマイクロ構造体の幅と高さの比較を図 6 に示す。本研究で得られたマイクロ構造体は幅 5µm, 高さ 10µm のラインアンドパターンである。このサイズは金属粉末焼結プロセスとしては、世界最小レベルのマイクロ金属構造体である。本研究で開発したプロセスは極めて転写性が高く、微細構造体と母体を高精度に製造できる特徴を有している。

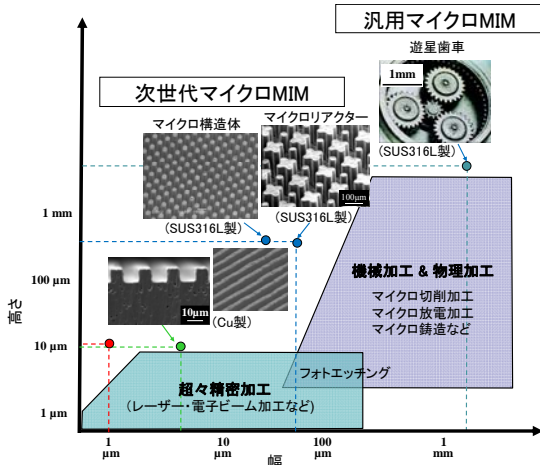
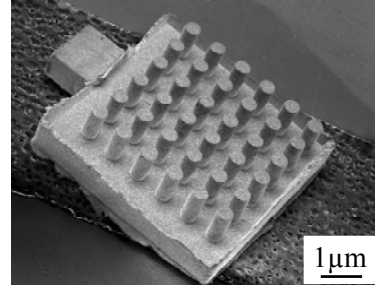


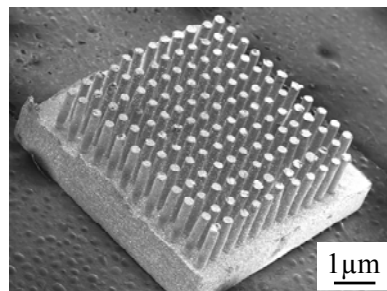
図 6 マイクロ MIM 構造体のサイズ比較

(6) 熱伝導率の高い銅はダイヤモンド粒子との複合化によりさらに高い熱伝導率が期待できる。また、ダイヤモンド粒子の添加量の調整より任意に熱膨張係数を制御することができる。しかし、ダイヤモンド粒子は 973K 以上で熱劣化が著しいため、銅とダイヤモンド粒子との焼結体の製造は容易ではない。そこで、低温での焼結が可能なナノ銅粉末を用いて、ダイヤモンドの熱劣化温度以下での複合化を試みた。µ-SPiMIM プロセスにより、ナノ銅粉末とダイヤモンド粒子からなる MIM 原料を用いて、図 7 に示すようなアスペクト比 3~6 のマイクロ柱状構造のマ

イクロヒートシンクの製造を試みた。直径 500µm の構造体の場合は柱状形状が良好に転写され、直径 250µm の構造体の場合は柱状構造体端部に欠損や丸みが生じた。ナノ銅粉末の使用によりダイヤモンド粒子の熱劣化温度以下での焼結に成功したが、熱伝導率のさらなる向上が課題である。



(a) 直径 500µm



(b) 直径 250µm

図 7 銅ダイヤモンド製ヒートシンク

## 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 10 件)

- ① 西籘和明、鹿子泰宏、田中茂雄、田邊大貴、Metal Injection Moulding Process for Copper / Diamond Composites with High Thermal Conductivity by Using Nanopowder、PM2010 WORLD CONGRESS、査読有、2010
- ② 西籘和明、田邊大貴、鹿子泰宏、田中茂雄、Micro Metal Injection Moulding by NIL Lost Form Technology and Using Nanopowder、PM2010 WORLD CONGRESS、査読有、2010
- ③ 西籘和明、柿下健一、田中茂雄、金属粉末射出成形により作製した銅焼結体の諸特性に及ぼすマイクロ/ナノ粉末割合の影響、日本機械学会論文集、査読有、A 編、第 76 巻、第 767 号、2010、96-1001
- ④ 西籘和明、柿下健一、田中茂雄、レジスト薄膜インサート金属粉末射出成形によるマイクロ構造体の作製と粉末粒径の影響、日本機械学会論文集、査読有、A 編、第 75 巻、第 761 号、2010、75-78
- ⑤ 西籘和明、鹿子泰宏、田中茂雄、LIGA 犠牲樹脂型インサート金属粉末射出成

形によるマイクロ構造体の製造、日本機械学会論文集、査読有、A編、第75巻、第760号、2010、1719-1725

- ⑥ 西藪和明、田中茂雄、MIMにより製造したSUS製モジュール0.07mm超小型歯車の精度評価、紛体および粉末冶金、査読有、第56巻、第5号、2009、268-273
- ⑦ 西藪和明、粉末成形の基礎と素材製造プロセス 3、金属粉末射出成形の最近の進歩、日本材料学会「材料」、査読無、第58巻、第1号、2009、87-92
- ⑧ 西藪和明、田中茂雄、Accuracy Evaluation of Ultra-compact Gears Manufactured by The MicroMIM Process、Powder Injection Molding International、査読無、Vol. 2, No. 4、2008、60-63
- ⑨ 西藪和明、田中茂雄、Small is better if testing MIM nano theories、Metal Powder Report、査読無、Vol. 63, Issue 3、2008、28-32
- ⑩ 西藪和明、Ian Andrews、田中茂雄、Accuracy Evaluation of Ultra-Compact Gears Manufactured by Micro-MIM Process、The 2008 Euro PM International Conference & Exhibition (Euro PM2008)、査読有、2008

[学会発表] (計12件)

- ① 西藪和明、ナノ銅粉末を用いたマイクロ高機能化プロセッシングの挑戦、(社)粉末冶金協会、第22回射出成形技術・評価研究会、査読無、2010
- ② 西藪和明、田邊大貴、鹿子泰宏、田中茂雄、ダイヤモンド粒子添加ナノ銅粉末焼結体の作製とその熱伝導性、日本機械学会第18回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2010)、査読無、2010
- ③ 西藪和明、田邊大貴、鹿子泰宏、田中茂雄、ダイヤモンド粒子添加ナノ銅粉末焼結体の作製とその熱伝導性、日本材料学会複合材料部門委員会2010年度JCOM若手シンポジウム、査読無、2010
- ④ 西藪和明、鹿子泰宏、田中茂雄、田邊大貴、ダイヤモンド粒子添加ナノ銅粉末焼結体の作製とその熱伝導性、(社)日本機械学会 機械材料・材料加工部門 第6回紛体・粉末成形技術研究分科会 (P-SCD363)、査読無、2010
- ⑤ 西藪和明、鹿子泰宏、田中茂雄、田邊大貴、Fabrication of Micro-structured Parts by Nano-Imprint Lithography Sacrificial Plastic Mold Insert MIM using Nanoscale Copper Powder、International Conference on Injection Molding of Metal, Ceramics and Carbides (MIM2010)、査読無、2010

- ⑥ 西藪和明、金属粉末射出成形によるマイクロポーラス金属部品の製造法とその進歩、第4回超軽量高機能ポーラス金属の開発と応用研究会、査読無、2009
- ⑦ 西藪和明、金属粉末射出成形のマイクロ化と最新の技術動向、粉末冶金協会、第21回射出成形技術評価研究会、査読無、2009
- ⑧ 田邊大貴、西藪和明、鹿子泰宏、田中茂雄、ナノ粉末を用いたNIL犠牲樹脂型インサートMIMによるマイクロ構造体の作製、日本機械学会、第17回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P 2009)、査読無、2009
- ⑨ 豊嶋孝文、西藪和明、岩津修、田中茂雄、日本機械学会、第17回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P 2009)、査読無、2009
- ⑩ 西藪和明、田邊大貴、鹿子泰宏、ナノ粉末を用いたナノインプリント犠牲樹脂型インサート粉末射出成形によるマイクロ構造体の作製、日本機械学会、第1回マイクロ・ナノ工学シンポジウム、査読無、2009
- ⑪ 西藪和明、鹿子泰宏、田中茂雄、田邊大貴、ナノインプリント犠牲樹脂型インサートMIMによるマイクロポーラス構造体の作製、日本機械学会、2009年度年次大会、査読無、2009
- ⑫ 西藪和明、マイクロ金属粉末射出成形の最新の技術動向、日本機械学会、2009年度年次大会ワークショップ、査読無、2009

[その他]

- ① 西藪和明、MIMの高度化と新分野への参入の可能性、日刊工業新聞、特集「部品製造の可能性を広げる金属粉末射出成形 (MIM)」、2011

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

西藪 和明 (NISHIYABU KAZUAKI)  
近畿大学・理工学部・准教授  
研究者番号：30208235

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし