



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本 (11)證書號數：TW I590504 B

(45)公告日：中華民國 106 (2017) 年 07 月 01 日

(21)申請案號：102123690

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 07 月 02 日

(51)Int. Cl. : H01L51/50 (2006.01)

H01L51/56 (2006.01)

(30)優先權：2012/07/20 美國

13/553,987

(71)申請人：3 M新設資產公司(美國) 3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY (US)
美國(72)發明人：渥克 馬丁 賓森 WOLK, MARTIN BENSON (US)；馬茲瑞克 梅克茲史洛 漢
瑞克 MAZUREK, MIECZYSLAW HENRYK (US)；拉曼斯祺 西爾吉 LAMANSKY,
SERGEY (US)；薇格 馬丁 瑪格麗特 瑪莉 VOGEL-MARTIN, MARGARET
MARY (US)；瓊斯 維維安 維恩 JONES, VIVIAN WYNNE (GB)；賓森 歐雷
斯特 二世 BENSON, OLESTER, JR. (US)；福瑞 麥克 班頓 FREE, MICHAEL
BENTON (US)；史瓦茲 伊凡 勞倫斯 SCHWARTZ, EVAN LAWRENCE (US)；
貝 蘭迪 史考特 BAY, RANDY SCOTT (US)；克萊克 葛雷漢 麥克 CLARKE,
GRAHAM MICHAEL (IE)

(74)代理人：陳長文

(56)參考文獻：

TW 20132661A

CN 1433358A

JP 2010-506771A

US 2010/0006211A1

審查人員：曾威誌

申請專利範圍項數：13 項 圖式數：18 共 53 頁

(54)名稱

用於將結構化層轉印至受體基板的層疊轉印膜及方法、受體基板及具有奈米結構之底發射 AMOLED LAMINATION TRANSFER FILMS AND METHODS FOR TRANSFERRING A STRUCTURED LAYER TO A RECEPTOR SUBSTRATE, A RECEPTOR SUBSTRATE, AND A BOTTOM EMITTING AMOLED WITH NANOSTRUCTURES

(57)摘要

本發明係關於用於將結構化層轉印至受體基板的層疊轉印膜及方法。轉印膜包括具有可釋放表面之載體基板、塗覆至載體基板之可釋放表面上且具有非平坦結構化表面的犧牲性模板層、及塗覆至犧牲性模板層之非平坦結構化表面上的熱穩定回填層。犧牲性模板層能夠自回填層移除(諸如藉助於熱解)，同時使回填層之結構化表面保持實質上完整。

Lamination transfer films and methods for transferring a structured layer to a receptor substrate. The transfer films include a carrier substrate having a releasable surface, a sacrificial template layer applied to the releasable surface of the carrier substrate and having a non-planar structured surface, and a thermally stable backfill layer applied to the non-planar structured surface of the sacrificial template layer. The sacrificial template layer is capable of being removed from the backfill layer, such as via pyrolysis, while leaving the structured surface of the backfill layer substantially intact.

指定代表圖：

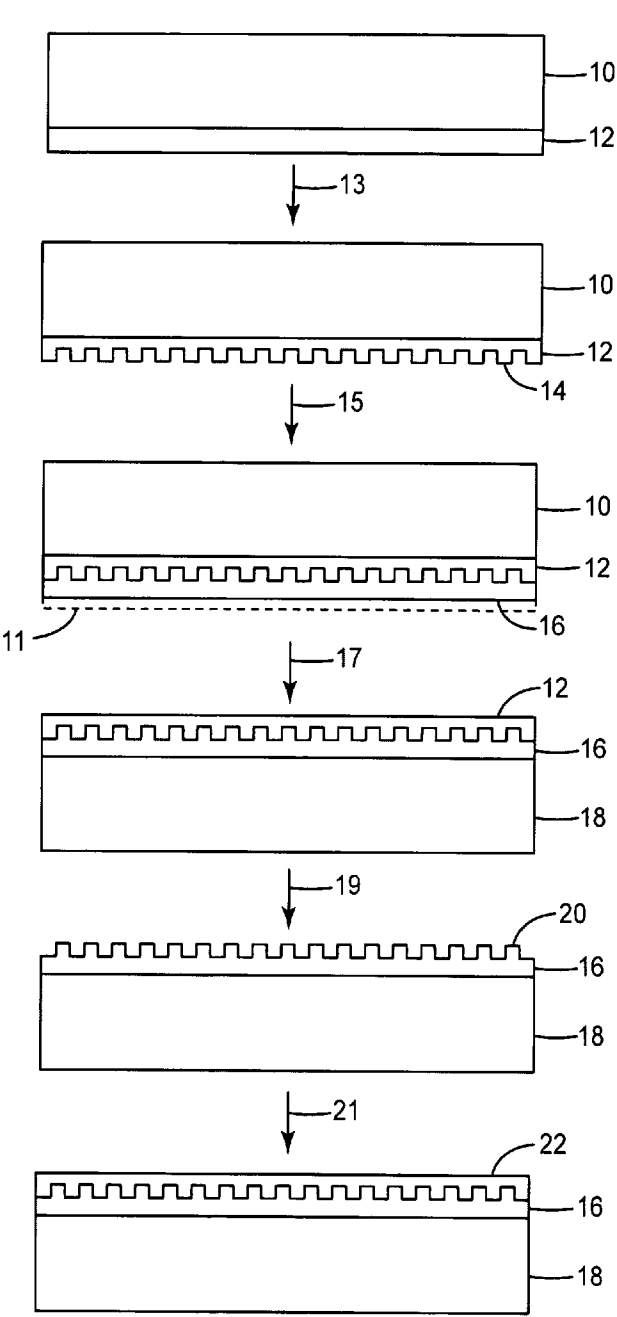


圖1

符號簡單說明：

- 10 . . . 襯墊/載體基板
- 11 . . . 黏著促進層
- 12 . . . 犧牲性模板層
- 13 . . . 步驟
- 14 . . . 結構化表面
- 15 . . . 步驟
- 16 . . . 回填層
- 17 . . . 步驟
- 18 . . . 受體基板
- 19 . . . 步驟
- 20 . . . 結構化表面
- 21 . . . 步驟
- 22 . . . 平坦化層



公告本

106年 02月 06日 修正替換頁

申請日：102.7.2

IPC分類：H01L 51/50
H01L 51/56

發明摘要

※ 申請案號：102123690

※ 申請日：102年7月2日

【發明名稱】

用於將結構化層轉印至受體基板的層疊轉印膜及方法、受體基板及具有奈米結構之底發射 AMOLED

LAMINATION TRANSFER FILMS AND METHODS FOR TRANSFERRING A STRUCTURED LAYER TO A RECEPTOR SUBSTRATE, A RECEPTOR SUBSTRATE, AND A BOTTOM EMITTING AMOLED WITH NANOSTRUCTURES

【中文】

本發明係關於用於將結構化層轉印至受體基板的層疊轉印膜及方法。轉印膜包括具有可釋放表面之載體基板、塗覆至載體基板之可釋放表面上且具有非平坦結構化表面的犧牲性模板層、及塗覆至犧牲性模板層之非平坦結構化表面上的熱穩定回填層。犧牲性模板層能夠自回填層移除(諸如藉助於熱解)，同時使回填層之結構化表面保持實質上完整。

【英文】

Lamination transfer films and methods for transferring a structured layer to a receptor substrate. The transfer films include a carrier substrate having a releasable surface, a sacrificial template layer applied to the releasable surface of the carrier substrate and having a non-planar structured surface, and a thermally stable backfill layer applied to the non-planar structured surface of the sacrificial template layer. The sacrificial template layer is capable of being removed from the backfill layer, such as via pyrolysis, while leaving the structured surface of the backfill layer substantially intact.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（1）圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

- 10 襯墊/載體基板
- 11 黏著促進層
- 12 犧牲性模板層
- 13 步驟
- 14 結構化表面
- 15 步驟
- 16 回填層
- 17 步驟
- 18 受體基板
- 19 步驟
- 20 結構化表面
- 21 步驟
- 22 平坦化層

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

（無）

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】

用於將結構化層轉印至受體基板的層疊轉印膜及方法、受體基板及具有奈米結構之底發射AMOLED

LAMINATION TRANSFER FILMS AND METHODS FOR TRANSFERRING A STRUCTURED LAYER TO A RECEPTOR SUBSTRATE, A RECEPTOR SUBSTRATE, AND A BOTTOM EMITTING AMOLED WITH NANOSTRUCTURES

【先前技術】

玻璃基板上之奈米結構及微結構係用於顯示、照明及太陽能器件之多種應用。在顯示器件中，該等結構可用於光提取或光分佈。在照明器件中，該等結構可用於光提取、光分佈及裝飾效果。在光伏打器件中，該等結構可用於太陽能集中及抗反射。在較大玻璃基板上圖案化或以其他方式形成奈米結構及微結構可為困難且無成本效益。因此，需要以成本效益方式在連續載體膜上製造奈米結構及微結構，且隨後使用該膜將該等結構轉印至或以其他方式賦予玻璃基板或其他永久性受體基板上。

【發明內容】

符合本發明之第一種層疊轉印膜可用於轉印開放面結構化層。此轉印膜包括具有可釋放表面的載體基板、塗覆至載體基板之可釋放表面上且具有非平坦結構化表面的犧牲性模板層，及塗覆至犧牲性模板層之非平坦結構化表面上的熱穩定回填層。犧牲性模板層能夠自回填層移除，同時使回填層之結構化表面保持實質上完整。

符合本發明之第二種層疊轉印膜可用於轉印嵌入式結構化層。此轉印膜包括具有可釋放表面的載體基板、塗覆至載體基板之可釋放表面上的犧牲性可釋放層、塗覆至犧牲性可釋放層上的頂層，及塗覆至頂層上的回填層且頂層與回填層之間形成結構化界面。犧牲性可釋

放層能夠自頂層移除，同時使回填層及頂層保持實質上完整。

符合本發明之第三種層疊轉印膜可用於轉印結構化層而無需使用載體基板。此轉印膜包括具有非平坦結構化表面的犧牲性聚合物層，及塗覆至犧牲性聚合物層之非平坦結構化表面上的熱穩定回填層。回填層具有與犧牲性聚合物層之非平坦結構化表面對應的結構化表面。犧牲性聚合物層能夠完全烘除，同時使回填層之結構化表面保持實質上完整。

【圖式簡單說明】

附圖併入本說明書中且其構成本說明書之一部分，且與實施方式一起解釋本發明之優勢及原理。在圖式中，

圖1為用於將開放面奈米結構轉印至受體之轉印膜及方法的圖；

圖2為不使用襯墊或載體基板而將奈米結構轉印至受體之轉印膜及方法的圖；

圖3為用於將嵌入式奈米結構轉印至受體之轉印膜及方法的圖；

圖4為玻璃基板上具有奈米結構之底發射AMOLED的圖；

圖5為平坦化層上具有奈米結構之底發射AMOLED的圖；

圖6為平坦化層上具有奈米結構之頂發射AMOLED的圖；

圖7為用於將奈米結構化抗蝕層轉印至受體基板、接著蝕刻該基板之轉印膜及方法的圖；

圖8為經由擠壓複製來生產結構化層疊轉印膜之方法的圖；

圖9A為具有奈米結構之底發射OLED固態照明器件的圖；

圖9B為具有奈米結構之底發射OLED固態照明器件的圖；

圖10為具有奈米結構之頂發射OLED固態照明器件的圖；

圖11為兩個主要表面上均具有層疊轉印膜之底發射OLED固態照明基板的圖；

圖12為兩個主要表面上均具有結構之底發射OLED固態照明基板

的圖；

圖13爲呈捲筒形式之可撓性玻璃層疊基板總成的圖；

圖14爲兩個主要表面上均具有結構之可撓性玻璃基板的圖；

圖15A爲玻璃基板上具有奈米結構之頂發射AMOLED的圖；

圖15B爲玻璃基板上具有奈米結構之頂發射OLED固態照明器件的圖；

圖16爲實例2之奈米結構化玻璃表面的側截面影像；

圖17爲實例4之奈米結構化玻璃表面的側截面影像；且

圖18爲實例5之奈米結構化玻璃表面的側截面影像。

【實施方式】

本發明描述結構化層疊轉印膜及方法，其能夠使用層疊及烘除步驟製造結構化固態表面。方法包括熱塑性複製(熱壓花)犧牲性膜、層或塗層以形成結構化犧牲性層、用熱穩定材料實質上平坦化犧牲性層、將塗膜層疊至熱穩定受體基板上，及熱解或燃燒犧牲性層。

圖1爲用於將開放面奈米結構轉印至受體之轉印膜及方法的圖。此轉印膜包括具有可釋放表面的襯墊(載體基板)10，且在該可釋放表面上具有犧牲性模板層12。該膜經壓花以在犧牲性模板層12上產生結構化表面14(步驟13)。犧牲性模板層係使用回填層16實質上平坦化(步驟15)。將膜層疊至受體基板18上且移除襯墊10(步驟17)。作為步驟17之一部分，視情況可將黏著促進層11塗覆至回填層16上或塗覆至受體基板18上。犧牲性模板層12可完全烘除或能夠以其他方式移除，使結構化表面20在回填層16上保持實質上完整且與結構化表面14對應(步驟19)。結構化層可隨後用平坦化層22平坦化(步驟21)。

圖2爲不使用襯墊或載體基板而將奈米結構轉印至受體之轉印膜及方法的圖。此轉印膜包括犧牲性聚合物層30，其經複製以形成結構化表面34(步驟31)。結構化表面34係使用回填層36進行實質上平坦化

(步驟35)。將膜層疊至受體基板38上。作為步驟37之一部分，視情況可將黏著促進層39塗覆至回填層36上或塗覆至受體基板38上。犧牲性聚合物層30可完全烘除，使結構化表面34在回填層36上保持實質上完整(步驟37)。

圖3為用於將嵌入式奈米結構轉印至接受器之轉印膜及方法的圖。此轉印膜包括具有可釋放表面的襯墊(載體基板)40，且在該可釋放表面上具有犧牲性可釋放層42。該膜經具有結構化表面46之頂層44複製(步驟43)。層44使用回填層48進行實質上平坦化(步驟47)。作為步驟47之一部分，視情況可將黏著促進層50塗覆至回填層48上或塗覆至受體基板52上。將膜層疊至受體基板52上且移除襯墊40，使得犧牲性可釋放層42之黏性失效或界面失效(步驟51)。頂層44上之犧牲性可釋放層42的其餘部分完全烘除或能夠以其他方式移除，使頂層44與回填層48之間的結構化表面46保持實質上完整(步驟53)。

圖1至3中所示之轉印膜可用於將奈米結構轉印至主動矩陣OLED (AMOLED) 底板或OLED固態照明元件基板上。此等奈米結構可增強OLED器件之光提取，改變該等器件之光分佈模式，或兩者。

圖4為玻璃基板上具有奈米結構之底發射AMOLED的圖。圖4中之AMOLED包括如所示配置之以下組件：頂部電極58、OLED層59、像素界定層60、底部電極62、通道64、高折射率像素電路平坦化層66、高折射率結構化平坦化層68、低折射率結構化層70、像素電路72及支撐物74(諸如玻璃)。結構化層70及(視情況)68可在製造AMOLED底板期間使用上述轉印膜之一進行轉印。層66可用奈米粒子填充材料建構，其中該等奈米粒子用於增加層66之折射率。填有高折射率無機材料(例如尺寸介於4 nm至20 nm之間的非散射奈米粒子)之聚合物的實例描述於美國專利第6,329,058號中。藉由使用該奈米粒子填充材料，層66可具有例如大於1.7之折射率，或處於本文所述之例示性範

圍內的折射率。

圖5為平坦化層上具有奈米結構之底發射AMOLED之一部分的圖。圖5中之AMOLED包括如所示配置之以下組件：頂部電極78、OLED層79、像素界定層80、底部電極82、高折射率奈米結構化平坦化層84、低折射率奈米結構化層86、通道88、像素電路平坦化層90、像素電路92及支撐物94(諸如玻璃)。奈米結構化層86及(視情況)84可在製造AMOLED底板期間使用上述轉印膜之一進行轉印。由於電極82所用材料可用於平坦化奈米結構化層86，因此平坦化層84為視情況存在的。

圖6為平坦化層上具有奈米結構之頂發射AMOLED之一部分的圖。圖6中之AMOLED包括如所示配置之以下組件：透明頂部電極98、OLED層99、像素界定層100、反射底部電極102、奈米結構化層104、通道106、平坦化層108、像素電路110及支撐物112(諸如玻璃)。奈米結構化層104可在製造AMOLED底板期間使用上述轉印膜之一進行轉印。

圖7為用於將奈米結構化之抗蝕層轉印至受體基板、接著蝕刻該基板之轉印膜及方法的圖。此轉印膜包括具有可釋放表面的襯墊(載體基板)114，且在該可釋放表面上具有犧牲性模板層116。該膜經壓花以在犧牲性模板層116上產生結構化表面118(步驟115)。犧牲性模板層係使用回填層120平坦化(步驟117)。將膜層疊至受體基板124上且移除襯墊114(步驟119)。作為步驟119之一部分，視情況可將黏著促進層122塗覆至回填層120上或塗覆至受體基板124上。犧牲性模板層116可完全烘除或能夠以其他方式移除，使結構化表面在回填層120上保持實質上完整且與結構化表面118對應(步驟121)。進行貫穿蝕刻製程以將回填層120之位於結構之間區域126中的部分移除(步驟123)。隨後進行受體基板蝕刻製程，在受體基板124上產生結構化表面128(步

驟125)。未描繪視情況將結構化受體基板上之殘餘抗蝕劑移除的剝除步驟。

圖8為經由擠壓複製來生產結構化層疊轉印膜之方法的圖。在此方法中，擠壓模130經由饋料管132接收載體基板(襯墊)材料，且經由饋料管134接收犧牲性模板材料。擠出材料包含載體基板層142及犧牲性模板層144。擠出層饋入夾壓捲筒136及加工捲筒138之間，從而向犧牲性模板層144中賦予結構。剝除捲筒140用於自加工捲筒138移除轉印膜。共擠壓方法描述於美國專利第7,604,381號中。

圖9A為具有奈米結構之底發射OLED固態照明器件的圖。圖9中之OLED器件包括如所示配置之以下組件：頂部反射電極143、OLED層145、像素界定層146、透明底部電極148、平坦化層150、結構化回填層152及基板154(諸如玻璃)。結構化回填層152可在製造OLED器件期間使用上述轉印膜之一進行轉印。透明電極148可用例如ITO建構。如圖9B中所說明，由於ITO材料可用於平坦化回填層152，因此平坦化層150為視情況存在的。

圖10為具有奈米結構之頂發射OLED固態照明器件的圖。圖10中之OLED器件包括如所示配置之以下組件：透明頂部電極155、OLED層157、電極界定層156、底部反射電極159、奈米結構化層158及基板160(諸如玻璃)。奈米結構化層158可在製造OLED器件期間使用上述轉印膜之一進行轉印。

圖11為兩個主要表面上均具有層疊轉印膜之底發射OLED固態照明基板的圖。圖11中具有轉印膜之OLED器件包括基板172(諸如玻璃)，其在一面上具有第一層合物162，且在對面上視情況具有第二層合物164。第一層合物162包括如所示配置之以下組件：載體膜166、犧牲性模板層168及回填層170。第二層合物164包括如所示配置之以下組件：載體膜178、犧牲性模板層176及回填層174。

圖 12 為在移除載體膜 166 及 178 以及犧牲性模板層 168 及 176 之後，在兩個主要表面上均具有結構的圖 11 之底發射 OLED 固態照明基板的圖。此等層可使用上述方法移除。在移除犧牲性模板層 168 之後，平坦化層 180 可塗覆在回填層 170 上。

圖 13 為呈捲筒形式之可撓性玻璃層疊基板總成 182 的圖。總成 182 包括可撓性基板 194 (諸如可撓性玻璃)，其在一面上具有第一層合物 184，且在對面上視情況具有第二層合物 186。第一層合物 184 包括如所示配置之以下組件：載體膜 188、犧牲性模板層 190 及回填層 192。第二層合物 186 包括如所示配置之以下組件：載體膜 200、犧牲性模板層 198 及回填層 196。

圖 14 為在兩個主要表面上均具有結構之可撓性玻璃基板總成 202 的圖。總成 202 包括如所示配置之以下組件：平坦化層 204、回填層 206、可撓性基板 208 (諸如可撓性玻璃) 及回填層 210。總成 202 可如下產生：例如使用上述方法移除圖 13 之層疊總成 182 的載體膜及犧牲性模板層，接著塗覆平坦化層 204，且隨後將總成恢復為捲筒形式。

圖 11-14 中所示之基板及總成可僅包括內部結構，僅包括外部結構，或包括內部與外部結構。

圖 15A 玻璃基板上具有奈米結構之頂發射 AMOLED 的圖。經由具有高折射率之耦接黏著劑完成底板、OLED 製造及陰極沈積製程之後，將玻璃上之該等奈米結構塗覆至頂發射 AMOLED 上。圖 15A 中之 OLED 器件包括如所示配置之以下組件：障壁基板 210 (諸如玻璃)、回填層 212、視情況存在之平坦化層 214、光學耦合層 216、透明頂部電極 218、OLED 層 220、像素界定層 222、反射底部電極 224、通道 226、平坦化層 228、像素電路 230 及支撐基板 232 (諸如玻璃)。

圖 15B 為玻璃基板上具有奈米結構之頂發射 OLED 固態照明器件

的圖。圖15B中之OLED器件包括如所示配置之以下組件：障壁基板234(諸如玻璃)、回填層236、視情況存在之平坦化層238、光學耦合層240、透明頂部電極242、OLED層244、電極界定層246、反射底部電極248及支撐基板250(諸如玻璃)。

在AMOLED及OLED照明顯示器及元件中，各光學透明層之位置及折射率經調整以便使器件之效能最佳化。內部提取結構安置於器件堆疊內，以使得結構下之一或多層具有與結構化回填層之折射率匹配的折射率，且結構上之一或多層具有與結構化平坦化層之折射率相匹配的折射率。

圖4及5說明AMOLED底板內用於內部提取結構的兩個可能位置。在圖4中，回填層70安置在玻璃基板74之頂部上。回填層之折射率與玻璃基板之折射率匹配。平坦化層68安置在像素電路平坦化層66及底部電極62以下。平坦化層68、像素電路平坦化層66及底部電極62之折射率全部類似。在圖5中，回填層安置在像素電路平坦化層90之頂部上。回填層86之折射率與像素電路平坦化層90之折射率匹配。平坦化層84安置在底部電極82以下。平坦化層84之折射率小於或等於底部電極82之折射率。

呈頂發射組態之AMOLED在器件底部處之金屬電極中具有歸因於表面電漿子的額外損失機制。該損失可藉由金屬電極波紋化而得到減輕(S.-Y. Nien等人, Appl. Phys. Lett. 93, 2009, 103304)。圖6說明經設計以使用具有平滑正弦輪廓之奈米波紋化陰極提高效率的頂發射AMOLED底板。使用本文所述之層疊轉印方法產生奈米結構。開放面奈米結構104安置在像素電路平坦化層108之頂部上。薄金屬電極102保形地沈積(例如經由真空蒸發)於開放面奈米結構104上。該方法亦可應用於頂發射OLED固態照明元件。圖6說明底部電極下具有波紋結構的該種元件。對完全頂發射OLED或AMOLED而言，波紋奈米結構

可為不透明的。對部分頂發射OLED或AMOLED而言，奈米結構在發射波長下應為實質上透明的。

OLED內部提取結構之另一種用途為控制或改變器件之光分佈圖案。OLED光學堆疊中缺乏微腔的OLED可為朗伯(Lambertian)發射體，其具有光滑且呈半球形均勻分佈之光分佈圖案。市購AMOLED顯示器之光分佈圖案通常展現光學堆疊中之微腔特徵。此等特徵包括較窄及不太均一之角形光分佈及顯著角形顏色變化。對OLED顯示器而言，可能需要使用本文所述之方法用奈米結構調整光分佈。奈米結構的作為可為改良光提取、再分佈發射光或兩者。

結構亦可適用於OLED基板之外表面上以向以基板全內反射模式所截留之空氣中提取光。外部提取結構可為微透鏡陣列、菲涅耳微透鏡(microfresnel)陣列或其他折射、繞射或混合光學元件。

在AMOLED應用中，經轉印之奈米結構化層的光學特徵及與奈米結構連接且提供奈米結構與AMOLED光導模式之光學耦接之各層的光學特徵為關鍵的。材料需經選擇以使得其相應折射率(n_1 、 n_2)、透射光譜及光散射特徵在所關注之光譜範圍內提供所需光學效果。舉例而言，奈米結構及與奈米結構及AMOLED連接之所有層可能需要為光學透明的($\%T > 90$)。亦可能需要折射率 n_1 及 n_2 為實質上不同的，以產生所需光學效果。舉例而言，折射率失配(n_1 與 n_2 之間的差異，被稱作 Δn)較佳大於或等於0.3、0.4、0.5或1.0。如美國專利第8,179,034號中所描述，當折射率失配用於增強光提取時，較大失配傾向於提供較大光提取，且因此為較佳的。

在一個實例中，經轉印之奈米結構的折射率 n_1 可與其上塗覆該奈米結構之基板的折射率匹配($n_1 \approx 1.5$)，而與奈米結構連接且與OLED堆疊耦接之各層的折射率處於OLED堆疊材料通常所示之折射率值範

圍內($n_2 \approx 1.7-2.0$)。

在其他實例中， Δn 值可根據具體應用進行考慮與設計，其中 Δn 較佳在0.1至1.5之範圍內。

在另外的其他實例中， n_1 與 n_2 之比率值(n_1/n_2)可根據具體應用進行考慮與設計，其中 n_1/n_2 較佳在1.05至1.9之範圍內。

術語「匹配之折射率」意謂，視所需應用而定， Δn 較佳為小於0.1，或小於0.01或0.001。

此外，經轉印之層可提供光學、機械性或物理功能。舉例而言，在直接蝕刻玻璃或晶圓受體基板之製程中，經轉印之層可充當物理抗蝕性或反應性離子蝕刻光罩。在此情況下，如下所述，層疊轉印製程之後為移除殘餘層(亦稱為「凸區」)之貫穿蝕刻，及玻璃之濕式化學或乾式蝕刻。

在典型濕式化學蝕刻製程中，將具有圖案化光阻劑的基板浸沒在選擇性降解該基板之化學品中。就含矽基板而言，此化學品通常為用氟化銨(NH_4F)緩衝之氫氟酸(HF)，因為高度反應性氟離子降解矽的速度比通常用作光阻劑之聚合物快。在蝕刻及用硫酸移除光阻劑之後，經圖案化之光阻劑的負型複製品留在基板上。

在標準乾式蝕刻製程中，在被稱為反應性離子蝕刻(RIE)之製程中使用電磁場使高能離子電漿向基板加速。高能離子可與聚合物膜發生化學反應且使其揮發，且亦可經由濺射機構傳遞其動能以便以物理方式移除材料。由於RIE中離子轟擊之定向性質，因此RIE製程產生之蝕刻輪廓比濕式化學蝕刻劑更具各向異性。

聚合物在氧電漿RIE製程中之蝕刻速率關鍵性地視聚合物中之碳及氧含量而定。所謂的「大西參數(Ohnishi parameter)」量化蝕刻速率(R_{etch})，如由 $R_{\text{etch}} \propto N/N_C - N_O$ 所給定，其中 N 等於單體單元中之原子總數， N_C 等於單體中之碳原子數，及 N_O 等於單體中之氧原子數。因

此，一般而言，在氧電漿RIE下，具有高碳含量之光阻劑充當蝕刻光罩比具有高氧含量之光阻劑更好。乾式蝕刻圖案化製程需要大西參數高之層疊轉印奈米結構。

一般而言，大西參數愈低，蝕刻抗性便愈高。舉例而言，高碳含量聚合物(諸如聚(羥基苯乙烯))具有 $R_{etch} \approx 2.5$ ，而含氧聚合物(諸如聚(甲基丙烯酸甲酯))具有 R_{etch} 值 ≈ 5.0 。產生圖案蝕刻光罩材料非常需要 R_{etch} 值小於2.5。存在於聚(羥基苯乙烯)中之碳環結構亦有助於其高蝕刻抗性。

圖案化轉印層中亦可併入其他元素，諸如矽及鐵，其可在曝露於氧電漿RIE時轉化為其相應氧化物。形成氧化物層之後，其蝕刻速率由氧化物生長與離子濺射移除氧化物之間的競爭決定。在氧電漿下，此等氧化物的蝕刻速度可為典型有機聚合物的四十分之一。為蝕刻含矽基板，通常使用氟化氣體(諸如 SF_6 、 CF_4 或 CHF_3/Ar)進行RIE蝕刻，其通常使基板與含有氧化物之抗蝕劑以大約相同的速率降解。此限制基板中之蝕刻深度及高縱橫比圖案化特徵之隨後產生。因此，使用乾式蝕刻製程轉印圖案非常需要沈積高縱橫比含矽材料的便捷方法。

使用層疊轉印製程，可使用奈米結構化犧牲性模板層內之平坦化回填層作為微影蝕刻光罩。在氧電漿下犧牲性模板層蝕刻速度比回填層快得多，因為大多數熱塑物為大西參數高之有機聚合物。實例中所鑑別的基於聚丙烯碳酸酯之材料具有例如約13之大西參數，且相應回填層可為類似玻璃之材料。因此，一旦完成層疊轉印，則可使用氧電漿用乾式蝕刻製程完全移除犧牲性聚合物模板。含矽蝕刻光罩應保持大部分不受此製程影響，或轉化為矽氧化物。最後，若需要，則可使用相同或不同蝕刻氣體化學方式，藉由在所有犧牲性聚合物已移除之後繼續進行蝕刻製程而基板中產生圖案。圖案轉印至基板中可繼續

進行，直至所有經轉印之含矽蝕刻光罩損毀而產生高縱橫比奈米結構。基板中蝕刻之圖案等同於初始奈米結構化犧牲性模板層之圖案。

層疊轉印膜之應用

本文所述之層疊轉印膜可用於多種目的。舉例而言，如上文所描述，層疊轉印膜可用於轉印OLED器件中之結構化層。

層疊轉印膜之另一種例示性應用為圖案化自由空間數位光學元件，包括菲涅耳微透鏡、繞射光學元件、全像光學元件及B.C. Kress, P. Meyrueis, *Applied Digital Optics*, Wiley, 2009之第2章中所述的其他數位光學器件，其位於顯示玻璃、光伏打玻璃元件、LED晶圓、矽晶圓、藍寶石晶圓、建築玻璃或其他高溫穩定基板之內部或外部表面上，高溫穩定基板意謂基板在移除犧牲性層所需之溫度範圍內為穩定的。

層疊轉印膜亦可用於在玻璃表面上產生裝飾效果。舉例而言，可能需要向裝飾晶體刻面之表面賦予虹彩。詳言之，玻璃結構可用於功能性與裝飾性應用，諸如運輸玻璃、建築玻璃、玻璃餐具、藝術品、顯示標牌、餐具及珠寶或其他配飾。另外，塗層可塗覆於此等玻璃結構上。此視情況存在之塗層可相對較薄，以避免不利地影響玻璃結構特性。該等塗層之實例包括親水性塗層、疏水性塗層、保護塗層、抗反射塗層及其類似塗層。

材料

製造用於固態光學表面圖案化的結構化轉印膜需要四種主要類別材料：載體膜、受體基板、折射率可調之熱穩定回填及平坦化材料、及犧牲性材料，該犧牲性材料為分解時具有低灰之熱塑性或光敏性聚合物。

載體膜

襯墊或載體基板可由向其他層提供機械性支撐的熱穩定可撓性

膜建構。襯墊具有可釋放表面，意謂該襯墊允許塗覆至該可釋放表面上的材料釋放。載體基板在70°C以上或者在120°C以上為熱穩定的，且對犧牲性層或回填層無不利影響。載體膜之一個實例為聚對苯二甲酸伸乙酯(PET)。

受體基板

受體基板之實例包括玻璃，諸如顯示素玻璃、照明素玻璃、建築玻璃、捲筒玻璃及可撓性玻璃。可撓性捲筒玻璃之一個實例為Corning Incorporated之WILLOW玻璃產品。受體基板之其他實例包括金屬，諸如金屬薄片及箔。受體基板之另外其他實例包括藍寶石、矽、二氧化矽及碳化矽。

受體基板之另一個實例包括支撐晶圓上之半導體材料。此等受體基板之尺寸超過半導體晶圓主模板之尺寸。當前，生產中之最大晶圓具有300 mm之直徑。使用本文所述之方法生產的層疊轉印膜可製成具有大於1000 mm之橫向尺寸及數百米之捲筒長度。藉由使用捲軸式加工與圓筒形主模板之組合可能獲得較大尺寸。具有此等尺寸之膜可用於向完整大型數位顯示器(例如55吋對角AMOLED HDTV，其具有52吋寬及31.4吋高之尺寸)賦予奈米結構。

受體基板視情況可在層疊轉印膜所塗覆的受體基板之一面上包括緩衝層。緩衝層之實例描述於美國專利第6,396,079號中。一種緩衝層類型為SiO₂薄層，如K. Kondoh等人, J. of Non-Crystalline Solids 178 (1994) 189-98及T-K. Kim等人, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 第448卷 (1997) 419-23中所描述。

本文所述之轉印方法的特定優勢為能夠向具有較大表面之受體表面(諸如顯示素玻璃或建築玻璃)賦予結構。此等受體基板之尺寸超過半導體晶圓主模板之尺寸。藉由使用捲軸式加工與圓筒形主模板之組合可能獲得層疊轉印膜之較大尺寸。

犧牲性材料

犧牲性層為能夠烘除或以其他方式移除，同時使相鄰層(包括結構化表面)保持實質上完整的材料。舉例而言，相鄰層包括具有結構化表面之回填層或其間具有結構化表面的兩個層。視轉印膜之構造而定，犧牲性層包括例如犧牲性模板層、犧牲性可釋放層、犧牲性聚合物層或犧牲性分離層。

犧牲性層之結構化表面可經由例如壓花、複製製程、擠壓、鑄造或表面構築而形成。結構化表面可包括奈米結構、微結構或階層式結構。奈米結構包含具有至少一個小於或等於兩微米之尺寸(例如高度、寬度或長度)的特徵。微結構包含具有至少一個小於或等於一毫米之尺寸(例如高度、寬度或長度)的特徵。階層式結構為奈米結構與微結構之組合。

可用於犧牲性層(犧牲性模板層、犧牲性可釋放層、犧牲性聚合物層或犧牲性分離層)之材料包括聚乙烯醇(PVA)、乙基纖維素、甲基纖維素、聚降冰片烯、聚(甲基丙烯酸甲酯) (PMMA)、聚(乙烯醇縮丁醛)、聚(碳酸環己烯酯)、聚碳酸(環己烯伸丙基)酯、聚(碳酸伸乙酯)、聚(碳酸伸丙酯)及其他脂族聚碳酸酯，及描述於R.E. Mistler, E.R. Twinn, Tape Casting: Theory and Practice, American Ceramic Society, 2000之第2章，第2.4節「Binders」中的其他材料。此等材料存在許多商業來源，其中幾個包括於下表1中。此等材料通常容易經由溶解或經由熱解或燃燒之熱分解來移除。加熱通常為許多製造製程之一部分，且因此可在現有加熱步驟期間實現犧牲性材料之移除。出於此原因，經由熱解或燃燒之熱分解為更佳移除方法。

犧牲性材料存在若干較佳特性。材料應能夠經由擠壓、刮刀塗佈、溶劑塗佈、澆鑄及固化或其他典型塗佈方法而塗佈至基板上。材料在室溫下較佳呈固態，但具有低足以允許其藉由加熱工具壓花的

T_g。因此，犧牲性材料較佳具有25℃以上，更佳40℃以上且最佳90℃以上之T_g。能夠被壓花之犧牲性材料亦為較佳材料特性。

犧牲性材料所需之另一種材料特性為其分解溫度應在回填材料之固化溫度以上。一旦回填材料固化，則結構永久性形成且犧牲性模板層可經由任一種上列方法移除。熱分解時具有低灰或低總殘餘物之材料優於具有更高殘餘物之材料。基板上所留殘餘物可能不利地影響光學特性，諸如最終產品之透明度或顏色。因為期望使最終產品之此等特性的任何變化最小化，所以小於1000 ppm之殘餘物含量較佳。小於500 ppm之殘餘物含量更佳，且50 ppm以下之殘餘物含量最佳。

術語「完全烘除」意謂犧牲性層可藉由熱解或燃燒移除而不留下大量殘餘材料(諸如灰)。上文提供較佳殘餘物含量之實例，但可使用不同殘餘物含量，此視特定應用而定。

表1. 犧牲性材料		
材料名稱或商標	類型	購自
Ethocel	乙基纖維素	Dow Chemical (Midland, MI)
Fiberlease P.V.A	聚乙烯醇	Fiberlay Inc (Seattle, WA)
Partall 10號膜	聚乙烯醇	Rexco (Conyers, GA)
ASR系列	聚降冰片烯	Promerus (Cleveland, OH)
Novomer PPC	聚碳酸伸丙酯	Novomer Inc (Ithaca, NY)
QPAC系列	脂族聚碳酸酯	Empower Materials (New Castle, DE)

回填及平坦化材料

回填層為能夠實質上平坦化相鄰層(例如犧牲性層)同時亦與相鄰層之結構化表面相符合的材料。或者回填層可為兩種不同材料之雙層，其中該雙層具有多層結構或其中該等材料之一至少部分地嵌入於另一種材料中。用於雙層之兩種材料視情況可具有不同折射率。雙層之一視情況可包含黏著促進層。

實質上平坦化意謂，如方程式1所定義之平坦化之量(P%)較佳大

於50%，更佳大於75%，且最佳大於90%。以下為方程式1： $P\% = (1 - (t_1/h_1)) * 100$ ，其中 t_1 為表面層之起伏高度，且 h_1 為表面層所覆蓋之特徵的特徵高度，如P. Chiniwalla, IEEE Trans. Adv. Packaging 24(1), 2001, 41中進一步所述。

可用於熱穩定回填之材料包括聚矽氧烷樹脂、聚矽氮烷、聚醯亞胺、橋接型或梯型倍半氧矽烷、聚矽氧及聚矽氧混合材料及許多其他材料。此等分子通常具有產生高熱穩定性、機械強度及耐化學性之無機核心，及有助於溶解性及反應性之有機殼層。此等材料存在許多商業來源，其概述於下表2中。可使用的其他類別之材料為例如苯并環丁烯、可溶性聚醯亞胺及聚矽氮烷樹脂。

可藉由將奈米粒子或金屬氧化物前驅物併入聚合物樹脂中來合成具有更高折射率的各種不同上述材料。Silecs SC850材料為經修飾之倍半氧矽烷($n \approx 1.85$)，且Brewer Science高折射率聚醯亞胺OptiINDEX D1材料($n \approx 1.8$)為此類別中之實例。其他材料包括甲基三甲氧基矽烷(MTMS)與雙三乙氧基矽烷基乙烷之共聚物(BTSE)(Ro等人, Adv. Mater. 2007, 19, 705-710)。此合形成具有倍半氧矽烷之極小橋接型環狀籠的易溶性聚合物。此可撓性結構可提高塗層之填充密度及機械強度。此等共聚物之比率可根據極低熱膨脹係數、低孔隙度及高模數進行調節。

熱穩定回填材料較佳滿足若干需求。第一，其應黏著至其所塗佈之結構化表面且與之相符合。此意謂塗佈溶液之黏度應低足以能夠流入極小特徵中而不截留氣泡，由此使所複製之結構具有良好保真性。其應使用不使下伏犧牲性模溶解或膨脹的溶劑塗佈，否則在乾燥時會造成回填物開裂。溶劑需要具有低於犧牲性模之玻璃轉移溫度的沸點。較佳使用異丙醇、丁醇及其他醇溶劑。第二，在低於犧牲性模板層之玻璃轉移溫度之溫度下，材料應以足夠機械完整性(例如「生

強度」)固化。若回填材料在低溫下不具有足夠生強度，則犧牲性模與回填圖案特徵均會坍塌，且複製保真性會降低。第三，視方法中所使用之玻璃類型(硼矽酸鹽或石英)而定，固化材料的折射率應與玻璃基板之折射率(約1.5)匹配。此方法亦可使用其他不同折射率之基板，諸如藍寶石、氮化物、金屬、聚醯亞胺或氧化物。第四，高於犧牲性模開始分解之溫度以及用於製造OLED顯示底板之方法步驟中的上限時，回填材料應為熱穩定的(例如顯示最少開裂、起泡或爆裂)。通常，用於此層之材料經歷縮合固化步驟，其在塗層內造成收縮及壓縮應力之累積。存在幾種用於將此等殘餘應力之形成降至最低的材料策略，該等策略已被用於若干滿足所有上述標準之市售塗層中。

調整回填層與平坦化層之折射率可為有利的。舉例而言，在OLED光提取應用中，藉由層疊轉印膜所賦予之奈米結構係位於回填層與平坦化層之結構化界面處。回填層之第一面位於結構化界面且第二面與相鄰層重合。平坦化層之第一面位於結構化界面且第二面與相鄰層重合。在此應用中，回填層之折射率與和結構化界面相對之回填層之相鄰層的折射率匹配，而平坦化層之折射率與和結構化界面相對之平坦化層之相鄰層的折射率匹配。

奈米粒子可用於調整回填層及平坦化層之折射率。舉例而言，在丙烯酸系樹脂塗層中，二氧化矽奈米粒子($n \approx 1.42$)可用於降低折射率，而氧化鋯奈米粒子($n \approx 2.1$)可用於增加折射率。如奈米粒子與黏合劑之間的折射率差異大，則塗層主體內會出現混濁。對於低混濁度為所需屬性之應用(例如，使用繞射光學元件之AMOLED的經調節之光分佈)，在出現混濁前，對折射率差異與奈米粒子之濃度均存在限制。對於混濁度為所需屬性之應用(例如，OLED固態照明元件中之均一光分佈)，可超越此限制。在粒子聚集開始出現之前，對樹脂中奈米粒子之濃度亦存在限制，藉此限制塗層折射率可調節之程度。

表2. 具有低折射率與高折射率的熱穩定模材料

材料名稱或商標	類型	購自
TecheGlas GRx樹脂	T-樹脂(甲基倍半氧矽烷)	TechnGlas (Perrysburg, Ohio)
HSG-510	T-樹脂(甲基倍半氧矽烷)	Hitachi Chemical (Tokyo, Japan)
ACCUGLASS 211	T-Q樹脂(甲基倍半氧矽烷)	Honeywell (Tempe, AZ)
Hardsil AM	二氧化矽奈米複合材料	Gelest Inc (Morrisville, PA)
MTMS-BTSE共聚物(Ro等人, <i>Adv. Mater.</i> 2007, 19, 705-710)	橋接型倍半氧矽烷	National Institute of Standards and Technology (Gaithersburg, MD)
PermaNew6000	含有潛熱固化催化劑系統的經二氧化矽填充之甲基聚矽氧烷聚合物	California Hardcoat (Chula Vista, CA)
FOX可流動氧化物	三氧化矽烷	Dow Corning (Midland, MI)
Ormocer, Ormoclad, Ormocore	聚矽氧混合物	Micro Resist GmbH (Berlin, Germany)
Silecs SCx樹脂	聚矽氧混合物 (n = 1.85)	Silecs Oy (Espoo, Finland)
OptiNDEX D1	可溶性聚醯亞胺(n=1.8)	Brewer Science (Rolla, MO)
Corin XLS樹脂	可溶性聚醯亞胺	NeXolve Corp. (Huntsville, AL)
Ceraset樹脂	聚矽氮烷	KiON Specialty Polymers (Charlotte, NC)
Bolton金屬	低熔點金屬	Bolton Metal Products (Bellafonte, PA)
CYCLOTENE樹脂	苯并環丁烷聚合物	Dow Chemical (Midland, MI)

黏著促進層材料

黏著促進層可用增強轉印膜與受體基板之黏著性而對轉印膜之效能無實質上不利影響的任何材料建構。用於回填層及平坦化層之例示性材料亦可用於黏著促進層。用於黏著促進層之較佳材料為表2中所鑑別之CYCLOTENE樹脂。

實例

除非另外提出，否則實例中所有份數、百分比、比率等均以重量計。除非有不同說明，否則所用溶劑及其他試劑獲自Sigma-Aldrich Corp., St. Louis, Missouri。表3列舉用於實例之材料。

表3. 材料		
縮寫或商標	描述	購自
ACCUGLASS 211	T-Q樹脂(甲基倍半氧矽烷)	Honeywell (Tempe, AZ)
AP3000	黏著促進劑	Dow Chemical Company, Midland, MI
BTSE	雙(三乙氧基矽烷基乙基)乙 烷	VWR International, LLC, Radnor, PA
CYCLOTENE 3022	CYCLOTENE 3022-63樹 脂，63% w/w原料	Dow Chemical Company, Midland, MI
HCl	鹽酸	VWR International, LLC, Radnor, PA
MTMS	甲基三甲氧基矽烷	VWR International, LLC, Radnor, PA
PermaNew6000	T-樹脂奈米複合材料	California Hardcoat (Chula Vista, CA)
QPAC 40	聚(碳酸伸烷酯)共聚物	Empower Materials, Inc., New Castle, DE
QPAC 100	聚(碳酸伸烷酯)共聚物	Empower Materials, Inc., New Castle, DE
QPAC 130	聚(碳酸伸烷酯)共聚物	Empower Materials, Inc., New Castle, DE
T50	矽化PET離型襯墊	Solutia Inc, St Louis, MO
THF	無水四氫呋喃	Sigma-Aldrich Corp., St. Louis, MO
PDM 1086	聚降冰片烯	Promerus (Cleveland, OH)

實例1 (QPAC 100/Honeywell材料/Cyclotene)

犧牲性材料層塗佈及壓花

QPAC 100於1,3-二氧雜環戊烷中之5 wt%溶液以30 cm³/min之速率傳遞至連續膜塗佈裝置中的10.2 cm (4吋)寬之槽型塗佈模中。溶液塗佈於0.051 mm (0.002吋)厚之T50矽化PET離型襯墊的背面上。所塗腹板行進約2.4 m (8 ft)，隨後進入所有3個區段均設定在65.5°C(150°F)下的9.1 m (30 ft)習知空氣浮選乾燥器中。基板以3.05 m/min (10 ft/min)之速度移動，以獲得約80微米之濕法塗層厚度。

所塗膜隨後在110°C (230°F)之溫度下，以犧牲性塗層與具有600 nm間距線性鋸齒凹槽之金屬主工具相抵，在1.75 kN/cm (1000磅/線性吋)之壓力下夾持壓花。壓花線速度為0.61 m/min (2 ft/min)。

回填層塗佈

使ACCUGLASS 211旋塗玻璃達成室溫，且隨後藉由旋塗塗覆至壓花膜樣品上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、2000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

黏著促進層塗佈

CYCLOTENE 3022 (Dow Chemical, Midland MI)用三甲苯稀釋至32 wt%，且隨後旋塗至樣品之回填塗佈表面上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、3000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

層疊至底塗玻璃

拋光玻璃載片(50 mm×50 mm×0.7 mm)用無絨布清潔，在超音波洗滌室中用清潔劑處理20 min，且隨後在具有熱水的兩個沖洗室中各置放20分鐘。載片隨後在具有循環空氣之烘箱中乾燥20分鐘。

玻璃表面用Dow AP3000處理以改良CYCLOTENE 3022在層疊步驟期間之黏著性。藉由旋塗塗覆Dow AP3000。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、3000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製

程。

使用聚矽氧手持輥，將經CYCLOTENE 3022塗佈之樣品(塗佈面向下)層疊至加熱板上之經處理玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

移除T50矽化PET離型襯墊，且隨後在室溫下將層疊樣品置放在管形爐中。在實驗期間中用氮氣吹掃爐。溫度隨後以3°C/min自25°C逐漸上升至425°C，且在425°C下保持1 h。將爐及樣品冷卻至環境溫度。所得奈米結構化樣品為透明的且展示具有線性光柵特徵之虹彩。

實例2(QPAC 100/80:20/Cyclotene)

如實例1，在T50矽化PET離型襯墊上製備經QPAC 100塗佈之載體膜且進行壓花。

回填層塗佈

使用兩種不同矽烷單體(MTMS及BTSE)產生回填塗佈溶液。在0°C下攪拌的同時，向MTMS及BTSE之混合物(5.7 mL MTMS及3.7 mL BTSE)中逐滴添加HCl (0.148 g 37% HCl水溶液)及蒸餾水(8.9 g H₂O)。以(鹽酸莫耳數)/(MTMS+BTSE莫耳數)定義的莫耳比R1為0.03，且以(H₂O莫耳數)/(MTMS+BTSE莫耳數)定義的莫耳比R2為10.0。莫耳比MTMS:BTSE為8:2。使用無水四氫呋喃(THF)作為反應溶劑，該THF中添加有以質量計35%之單體混合物。在添加水/酸之後，將混合物緩慢加熱至60°C，且在回流下於乾燥惰性氛圍中磁力攪拌4小時。使反應混合物冷卻至室溫，維持約30分鐘，經由0.45微米濾紙過濾，且隨後在分液漏斗中與甲醚/第三丁基醚及水振盪。在振盪之後，捨棄水相，且再添加水。再重複此洗滌步驟三次，總共四次洗滌步驟。將醚相收集於圓底燒瓶中，且添加硫酸鎂直至溶液變為透明。磁力攪拌懸浮液30分鐘以移除任何痕量水，且隨後再次經由0.45微米濾紙過濾。在減壓下蒸發醚，且在真空下乾燥所得白色固體隔

夜。材料之產量為約2 g，或約20%。化合物在異丙醇(IPA)與第二丁醇中均顯示易溶性。藉由在IPA中將化合物稀釋至5% w/w製成回填塗佈溶液。

藉由旋塗將上述回填塗佈溶液塗覆至壓花膜樣品上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、2000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

黏著促進層塗佈

如實例1中所描述，回填樣品之一部分用CYCLOTENE 3022產品塗佈。

層疊至玻璃上

拋光玻璃載片(50 mm×50 mm×0.7 mm)用無絨布清潔，在超音波洗滌室中用清潔劑處理20 min，且隨後在具有熱水的兩個級聯沖洗室中各置放20分鐘。載片隨後在具有循環空氣之烘箱中乾燥20分鐘。

使用聚矽氧手持輥將所塗樣品(塗佈面向下)層疊至加熱板上之清潔玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

移除T50矽化PET離型襯墊，且將層疊樣品置放在箱爐(Lindberg Blue M箱爐型號BF51732PC-1, Asheville NC, USA)中。溫度以約1°C/min速率自25°C增加至430°C。爐在430°C下保持1 h，隨後使爐及樣品冷卻至環境溫度。所得奈米結構化樣品為透明的且展示具有線性光柵特徵之虹彩。圖16為所得奈米結構化玻璃表面之側截面影像。

比較實例C1(QPAC 100/Cyclotene，無奈米結構)

犧牲性材料層塗佈及壓花

如實例1，在T50矽化PET離型襯墊上製備塗膜且進行壓花。

回填層塗佈

在此實例中，CYCLOTENE 3022為唯一回填材料。如實例1中所描述，具有所塗且經壓花之QPAC 100之一段膜用CYCLOTENE 3022產品塗佈。

層疊至玻璃上

如實例2中所描述，隨後將樣品層疊至拋光玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

移除 T50 矽化 PET 離型襯墊，且隨後將層疊樣品置放在箱爐 (Lindberg Blue M 箱爐型號 BF51732PC-1, Asheville NC, USA) 中，且以約 3.5°C/min 之速率使其自 25°C 達到 450°C。爐在 430°C 下保持 1 h，且隨後使之冷卻至環境溫度。所得奈米結構化樣品為透明的，且展示具有線性光柵特徵之虹彩。

實例3(QPAC 100/PermaNew 6000/Cyclotene)

犧牲性材料層塗佈及壓花

如實例1，在T50矽化PET離型襯墊上製備塗膜且進行壓花。

回填層塗佈

在捲軸式製程中使用由Universal Compak電源(Enercon Industries Corporation, Menomonee Falls, WI)供電之雙陶瓷桿裝置，用空氣電暈處理一段壓花膜。系統經組態以在空氣中以1.5 m/min (5 ft/min)向樣品施加0.75 J，陶瓷桿與樣品之間有3.2 mm (1/8 inch)間隙。

經電暈處理之壓花膜樣品(≈ 2 in x 3 in)用PermaNew 6000塗佈，其藉由旋塗塗覆至壓花膜樣品上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、2000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

黏著促進層塗佈

如實例1中所描述，回填樣品之一部分用CYCLOTENE 3022產品塗佈。

層疊至玻璃上

如實例2中所描述，隨後將樣品層疊至拋光玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

移除 T50 矽化 PET 離型襯墊，且隨後將層疊樣品置放在箱爐 (Lindberg Blue M箱爐型號BF51732PC -1, Asheville NC, USA)中，且以約1°C/min之速率使其自25°C達到130°C。爐在130°C下保持兩小時以固化回填物。隨後，升高溫度至400°C且保持一小時以分解犧牲性材料。使爐及樣品冷卻至環境溫度。得到具有奈米結構之透明玻璃基板。

實例4 (QPAC 130/PermaNew 6000/Cyclotene)

使用凹口棒塗機將QPAC 130 (5 wt%，存於氯仿中)手工塗佈在0.051 mm (0.002吋)厚之T50矽化PET離型襯墊的背面上。塗層在溶劑烘箱中於70°C下乾燥30 min。

使用Plasma-Therm分批反應器(Plasma-Therm型號3032，購自Plasma-Therm, St. Petersburg, FL)，藉由電漿沈積法沈積含矽層而將脫模塗層塗覆至具有600 nm間距線性凹槽的聚合物工具上。所塗膜在143°C(290°F)之溫度下與聚合物工具相抵，在552 kPa (80磅/平方吋)之壓力下，在犧牲性材料面上夾持壓花。壓花線速度為約0.3 m/min(每分鐘1呎)。自所塗膜移除聚合物工具以形成具有壓花結構之膜。

回填層塗佈

用一滴水將壓花膜樣品(≈ 2 in×3 in)黏著至1 mm厚5.1 cm×7.6 cm(2吋×3吋)顯微鏡玻璃載片(購自VWR International, Radnor PA)上。

樣品直接置放在型號 WS-6505-6npp/公升旋塗器(購自 Laurell Technologies Corporation, North Wales PA)之真空夾盤上。施加64 kPa (19吋汞)之真空以將樣品固定至夾盤。旋塗器經程式化為在500 RPM 持續5秒(塗層塗覆步驟)，隨後在2000 RPM持續15 sec (旋轉步驟)，隨後在1000 RPM持續20秒(乾燥步驟)。

用異丙醇將PermaNew 6000稀釋至10 wt%之最終濃度。壓花膜樣品($\approx 2\text{ in}\times 3\text{ in}$)用經稀釋之PermaNew 6000塗佈，其藉由旋塗塗覆至壓花膜樣品上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、2000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

黏著促進層塗佈

如實例1，回填樣品片用CYCLOTENE 3022產品塗佈。

層疊至玻璃上

拋光玻璃載片(50 mm $\times$ 50 mm $\times$ 0.7 mm)用無絨布清潔，在超音波洗滌室中用清潔劑處理20 min，且隨後在具有熱水的兩個級聯沖洗室中各置放20分鐘。載片隨後在具有循環空氣之烘箱中乾燥20分鐘。

使用聚矽氧手持輥，在加熱至110°C之加熱板上將所塗樣品(塗佈面向下)層疊至加熱板上之清潔玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

如實例3，移除T50矽化PET離型襯墊，且隨後將層疊樣品置放在箱爐中。使爐及樣品冷卻至環境溫度。如圖17之側截面影像中所示，得到具有奈米結構之透明玻璃基板。

比較實例C2 (QPAC 40/Cyclotene，無奈米結構)

使用間隙設定為201微米的凹口棒塗機將QPAC 40(25 wt%，存於

2-丁酮中)手工塗佈在0.051 mm (0.002吋)厚之T50矽化PET離型襯墊的背面上。塗層在溶劑烘箱中於70℃下乾燥30 min。

使用Plasma-Therm分批反應器(Plasma-Therm型號3032，購自Plasma-Therm, St. Petersburg, FL)，藉由電漿沈積法沈積含矽層而將脫模塗層塗覆至具有600 nm間距線性凹槽的聚合物工具上。所塗膜在66℃(150°F)之溫度下與聚合物工具相抵，在552 kPa (80磅/平方吋)之壓力下，在犧牲性材料面上夾持壓花。壓花線速度為約0.3 m/min(每分鐘1呎)。自所塗膜移除聚合物工具以形成具有壓花結構之膜。

黏著促進層塗佈

CYCLOTENE 3022 (Dow Chemical, Midland MI)用三甲苯稀釋至32 wt%，且隨後旋塗至樣品之回填塗層表面上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、2000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在35℃加熱板上置放10 min以完成乾燥製程。

層疊至玻璃上

拋光玻璃載片(50 mm×50 mm×0.7 mm)用無絨布清潔，在超音波洗滌室中用清潔劑處理20 min，且隨後在具有熱水的兩個級聯沖洗室中各置放20分鐘。載片隨後在具有循環空氣之烘箱中乾燥20分鐘。

在加熱板上使用聚矽氧手持輥，將所塗樣品(塗佈面向下)在加熱至35℃之加熱板上層疊至清潔玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

移除T50矽化PET離型襯墊，且隨後將層疊樣品置放在箱爐(Lindberg Blue M箱爐型號BF51732PC-1, Asheville NC, USA)中，且以約3.5℃/min之速率使其自25℃達到450℃。爐在450℃下保持一小時，且隨後使之冷卻。得到無奈米結構之透明玻璃基板。

實例5 (QPAC 100/PermaNew 6000/Cyclotene，無襯墊)

使用間隙設定為300微米之凹口棒塗機將QPAC 100 (5 wt%，存於1,3-二氧雜環戊烷中)手工塗佈在0.051 mm (0.002吋)厚之T50矽化PET離型襯墊的背面上。塗層在溶劑烘箱中於70°C下乾燥120 min。

使用Plasma-Therm分批反應器(Plasma-Therm型號3032，購自Plasma-Therm, St. Petersburg, FL)，藉由電漿沈積法沈積含矽層而將脫模塗層塗覆至具有600 nm間距線性凹槽的聚合物工具上。所塗膜在66°C(150°F)之溫度下與聚合物工具相抵，在552 kPa (80磅/平方吋)之壓力下夾持壓花。壓花線速度為約0.3 m/min(每分鐘1呎)。自所塗膜移除聚合物工具以形成具有壓花結構之膜。

隨後自犧牲性材料移除載體以形成獨立式複製膜。

回填層塗佈

如實例3中所描述，壓花膜片用PermaNew 6000產品回填。

黏著促進層塗佈

CYCLOTENE 3022 (Dow Chemical, Midland MI)用三甲苯稀釋至32 wt%，且隨後旋塗至樣品之回填塗佈表面上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec (溶液塗覆)、3000 rpm/15 sec (旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec (乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在90°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

層疊至玻璃上

拋光玻璃載片(50 mm×50 mm)首先用無絨布清潔，隨後在洗滌室中用清潔劑超音波處理20分鐘，且隨後在具有熱水的兩個級聯沖洗室中各置放20分鐘。載片隨後在具有循環空氣之烘箱中乾燥20分鐘。

乾燥之載片隨後在90°C加熱板上置放5分鐘，用鋁盤覆蓋。使用聚矽氧手持輥將經CYCLOTENE 3022塗佈之樣品(塗佈面向下)層疊至

此時仍在加熱板上之玻璃載片上，樣品與輥之間具有一片T50矽化PET離型襯墊，以防止樣品黏至輥。

犧牲性模板層移除

如實例3，移除T50矽化PET離型襯墊，且隨後將層疊樣品置放在箱爐中。使爐及樣品冷卻至環境溫度。如圖18之側截面影像中所示，得到具有奈米結構之透明玻璃基板。

實例6 (Promerus/PermaNew 6000/Cyclotene，UV可固化)

使用間隙設定為200微米之凹口棒塗機將50 wt% MIBK至50 wt% PDM 1086之溶液手工塗佈在0.051 mm (0.002吋)厚之T50矽化PET離型襯墊的背面上。塗層在溶劑烘箱中於120°C下乾燥5分鐘。

使用Plasma-Therm分批反應器(Plasma-Therm型號3032，購自Plasma-Therm, St. Petersburg, FL)，藉由電漿沈積法沈積含矽層而將脫模塗層塗覆至具有600 nm間距線性凹槽的聚合物工具上。所塗膜在138°C(280°F)之溫度下與聚合物工具相抵，在552 kPa (80磅/平方吋)之壓力下夾持壓花。壓花線速度為約0.3 m/min(每分鐘1呎)。使聚合物工具與所塗膜接觸。

PDM 1086對365 nm輻射敏感。使PDM 1086交聯所需之能量為來自適當UV光源的200-1000 mJ/cm²。藉由使樣品以15.2 m/min (50 ft/min)之速率通過具有中壓汞弧燈之UV處理器(RPC Industries UV Processor QC 120233AN/DR, Plainfield, IL) 4次來將樣品堆疊曝露於UV光。樣品隨後在90°C烘箱中置放4 min用於促進交聯反應的後固化步驟。樣品自烘箱移除且冷卻至室溫，隨後自所塗膜移除聚合物工具，得到在T50矽化PET離型襯墊之背面上具有壓花結構的固化PDM 1086。為達到最終固化，壓花之PDM 1086膜在烘箱中於160°C下置放60 min。

回填層塗佈

如實例4中所描述，壓花膜片用PermaNew 6000產品回填。

黏著促進層塗佈

如實例1，回填樣品片用CYCLOTENE 3022產品塗佈。

層疊至玻璃上

如實例1，將經CYCLOTENE 3022塗佈之樣品層疊至50 mm×50 mm拋光玻璃載片上。

犧牲性模板層移除

移除T50矽化PET離型襯墊，且將層疊之樣品置放在惰性氛圍爐(Lindberg Blue M馬弗爐型號51642-HR, Asheville, NC, USA)中。在氧氣濃度小於10 ppm之氮氣氛圍中燃燒樣品。溫度以約5°C/min之速率自25°C逐漸上升至350°C，隨後溫度以約1°C/min自350°C逐漸上升至425°C。爐在425°C下保持兩小時，且隨後使爐及樣品自然冷卻。

實例7 (PP/QPAC 100/PermaNew 6000/Cyclotene，擠壓複製)

犧牲性材料層共擠壓及壓花

經由三歧管10吋寬擠壓模產生共擠出膜，該膜由約10微米厚之QPAC 100層(經由直徑0.75吋單螺桿擠壓機在375°F之溫度下擠出)及約200微米厚之聚丙烯1024層(經由兩個直徑1.25吋單螺桿擠壓機在375°F之溫度下擠出)而組成。

此共擠出膜立即自擠壓模中抽出且在104°C之溫度下，與具有600 nm間距線性鋸齒凹槽的金屬主工具相抵，在1.15 kN/cm (650磅/線性吋)之壓力下，使用保持在96°C的夾持捲筒夾持壓花。共擠出膜之各層經配置以使得QPAC 100層接觸金屬主工具。壓花線速度為7.62 m/min (25呎/分鐘)。

回填層塗佈

在捲軸式方法中，使用由Universal Compak 電源 (Enercon Industries Corporation, Menomonee Falls, WI)供電之雙陶瓷桿裝置，

用空氣電暈處理一段共擠出膜。系統經組態可在空氣中以1.5 m/min (5 ft/min)向樣品施加0.75 J，陶瓷桿與樣品之間有3.2 mm (1/8 inch)間隙。

經電暈處理之壓花膜樣品($\approx 2\text{ in} \times 3\text{ in}$)用PermaNew 6000塗佈，其藉由旋塗塗覆至壓花膜樣品上。在塗佈過程中使用顯微鏡玻璃載片支撐膜。旋轉參數為500 rpm/5 sec(溶液塗覆)，5000 rpm/15 sec(旋轉平鋪)。

自旋塗器移除樣品且在70°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。樣品隨後在烘箱中於70°C下固化4小時。

黏著促進層塗佈

拋光玻璃載片(50 mm $\times$ 50 mm $\times$ 0.7 mm)用無絨布清潔，在超音波洗滌室中用清潔劑處理20 min，且隨後在具有熱水的兩個級聯沖洗室中各置放20分鐘。載片隨後在具有循環空氣之烘箱中乾燥20分鐘。

CYCLOTENE 3022 (Dow Chemical, Midland MI)用三甲苯稀釋至16 wt%，且隨後旋塗至拋光玻璃載片上。旋轉參數為500 rpm/5 sec(溶液塗覆)、3000 rpm/15 sec(旋轉平鋪)及1000 rpm/20 sec(乾燥)。

自旋塗器移除樣品且在70°C加熱板上置放5 min以完成乾燥製程。

層疊至玻璃上

使用熱膜層疊機(GBC Catena 35, GBC Document Finishing, Lincolnshire, IL)在230°F下將所塗樣品(塗佈面向下)層疊至經Cyclotene塗佈之清潔玻璃載片上。

犧牲性模板移除

移除聚丙烯層，且將層疊樣品置放在箱爐(Lindberg Blue M箱爐型號BF51732PC-1, Asheville NC, USA)中，且以約1°C/min之速率使之自25°C達到200°C。爐在200°C下保持30分鐘。升高溫度至300°C且保持三小時以分解犧牲性材料。使爐及樣品冷卻至環境溫度。得到具有

奈米結構之透明玻璃基板。

【符號說明】

10	襯墊/載體基板
11	黏著促進層
12	犧牲性模板層
13	步驟
14	結構化表面
15	步驟
16	回填層
17	步驟
18	受體基板
19	步驟
20	結構化表面
21	步驟
22	平坦化層
30	犧牲性聚合物層
31	步驟
34	結構化表面
35	步驟
36	回填層
37	步驟
38	受體基板
39	黏著促進層
40	襯墊(載體基板)
42	犧牲性可釋放層
43	步驟

44	頂層
46	結構化表面
47	步驟
48	回填層
50	黏著促進層
51	步驟
52	受體基板
53	步驟
58	頂部電極
59	OLED層
60	像素界定層
62	底部電極
64	通道
66	高折射率像素電路平坦化層
68	高折射率結構化平坦化層
70	低折射率結構化層
72	像素電路
74	支撐物
78	頂部電極
79	OLED層
80	像素界定層
82	底部電極
84	高折射率奈米結構化平坦化層
86	低折射率奈米結構化層
88	通道
90	像素電路平坦化層

92	像素電路
94	支撐物
98	透明頂部電極
99	OLED層
100	像素界定層
102	反射底部電極
104	奈米結構化層
106	通道
108	平坦化層
110	像素電路
112	支撐物
114	襯墊(載體基板)
115	步驟
116	犧牲性模板層
117	步驟
118	結構化表面
119	步驟
120	回填層
121	步驟
122	黏著促進層
123	步驟
124	受體基板
125	步驟
126	位於結構之間的區域
128	結構化表面
130	擠壓模

132	饋入管
134	饋入管
136	夾壓捲筒
138	加工捲筒
140	剝除捲筒
142	載體基板層
143	頂部反射電極
144	犧牲性模板層
145	OLED層
146	像素界定層
148	透明底部電極
150	平坦化層
152	結構化回填層
154	基板
155	透明頂部電極
156	電極界定層
157	OLED層
158	奈米結構化層
159	底部反射電極
160	基板
162	第一層合物
164	第二層合物
166	載體膜
168	犧牲性模板層
170	回填層
172	基板

174	回填層
176	犧牲性模板層
178	載體膜
180	平坦化層
182	可撓性玻璃層疊基板總成
184	第一層合物
186	第二層合物
188	載體膜
190	犧牲性模板層
192	回填層
194	可撓性基板
196	回填層
198	犧牲性模板層
200	載體膜
202	可撓性玻璃基板總成
204	平坦化層
206	回填層
208	可撓性基板
210	回填層/障壁基板
212	回填層
214	平坦化層
216	光學耦合層
218	頂部電極
220	OLED層
222	像素界定層
224	反射底部電極

226	通道
228	平坦化層
230	像素電路
232	支撐基板
234	障壁基板
236	回填層
238	平坦化層
240	光學耦合層
242	透明頂部電極
244	OLED層
246	電極界定層
248	反射底部電極
250	支撐基板

申請專利範圍

1. 一種用於轉印嵌入式結構化層之層疊轉印膜，其包含：
載體基板，其具有可釋放表面；
犧牲性可釋放層，其具有塗覆至該載體基板之該可釋放表面上的第一表面且具有與該第一表面相對之第二表面；
頂層，其塗覆至該犧牲性可釋放層之該第二表面上且在該頂層之與該犧牲性可釋放層相對之面上具有非平坦結構化表面；及
回填層，其塗覆至該頂層之該非平坦結構化表面上，從而在該頂層與該回填層之間形成結構化界面，
其中該犧牲性可釋放層能夠自該頂層移除，同時使該回填層及該頂層保持實質上完整，且其中該回填層包含聚合物樹脂以及奈米粒子及金屬氧化物前驅物中之至少一者。
2. 如請求項1之層疊轉印膜，其中該載體基板在70℃以上具熱穩定性。
3. 如請求項1之層疊轉印膜，其中該回填層為平坦化層，其中平坦化意謂，如以下方程式： $P\% = (1 - (t_1/h_1)) * 100$ ，所定義之平坦化之量(P%)較佳大於50%，其中 t_1 為表面層之起伏高度，且 h_1 為表面層所覆蓋之特徵的特徵高度。
4. 如請求項1之層疊轉印膜，其中該回填層包含兩種不同材料之雙層，其中該雙層之一包含黏著促進層。
5. 如請求項1之層疊轉印膜，其中該頂層的折射率高於該回填層。
6. 一種用於將嵌入式結構化層轉印至永久性受體上之方法，其包含以下步驟：

提供層疊轉印膜，該膜包含：

載體基板，其具有可釋放表面；

犧牲性可釋放層，其具有塗覆至該載體基板之該可釋放表面上的第一表面且具有與該第一表面相對之第二表面；

頂層，其塗覆至該犧牲性可釋放層之該第二表面上且在該頂層之與該犧牲性可釋放層相對之面上具有非平坦結構化表面；及

回填層，其塗覆至該頂層之該非平坦結構化表面上，從而在該頂層與該回填層之間形成結構化界面，其中該回填層包含聚合物樹脂以及奈米粒子及金屬氧化物前驅物中之至少一者；

將該層疊轉印膜塗覆至該永久性受體上，其中該回填層塗覆至該永久性受體上；

移除該載體基板，同時在該頂層上保留該犧牲性可釋放層的至少一部分；及

自該回填層移除該犧牲性可釋放層，同時使該回填層及該頂層保持實質上完整。

7. 如請求項6之方法，其中該塗覆步驟包含將該層疊轉印膜塗覆至玻璃基板上。
8. 如請求項6之方法，其中該塗覆步驟包含將該層疊轉印膜塗覆至該永久性受體上之緩衝層上。
9. 如請求項6之方法，其中該頂層之折射率高於該回填層。
10. 一種在相對表面上具有層疊轉印膜之受體基板，其包含：

受體基板，其具有第一表面及與該第一表面相對之第二表面；

第一層疊轉印膜，其塗覆至該受體基板之該第一表面上，該第一層疊轉印膜包含：

第一載體基板，其具有可釋放表面；

第一犧牲性模板層，其具有塗覆至該第一載體基板之可釋放表面上的第一表面且具有與該第一表面相對之第二表面，其中該第二表面包含非平坦結構化表面；及

第一熱穩定回填層，其塗覆至該受體基板之第一表面上及該第一犧牲性模板層之該第二表面上，其中該第一回填層具有對應於且塗覆至該第一犧牲性模板層之該非平坦結構化表面上的結構化表面，

其中該第一犧牲性模板層能夠自該第一回填層移除，同時使該第一回填層之該結構化表面保持實質上完整；及

第二層疊轉印膜，其塗覆至該受體基板之該第二表面上，該第二層疊轉印膜包含：

第二載體基板，其具有可釋放表面；

第二犧牲性模板層，其具有塗覆至該第二載體基板之該可釋放表面上的第一表面且具有與該第一表面相對之第二表面，其中該第二表面包含非平坦結構化表面；及

第二熱穩定回填層，其塗覆至該受體基板之該第二表面上及該第二犧牲性模板層之該第二表面上，其中該第二回填層具有對應於且塗覆至該第二犧牲性模板層之該非平坦結構化表面上的結構化表面，

其中該第二犧牲性模板層能夠自該第二回填層移除，同時使該第二回填層之該結構化表面保持實質上完整。

11. 如請求項10之受體基板，其中該受體基板係呈捲筒形式。
12. 如請求項1之層疊轉印膜，其中該聚合物樹脂係橋接型或梯型倍半氧矽烷。
13. 如請求項1之層疊轉印膜，其中該聚合物樹脂係T-樹脂及T-Q樹脂中之至少一者。

圖式

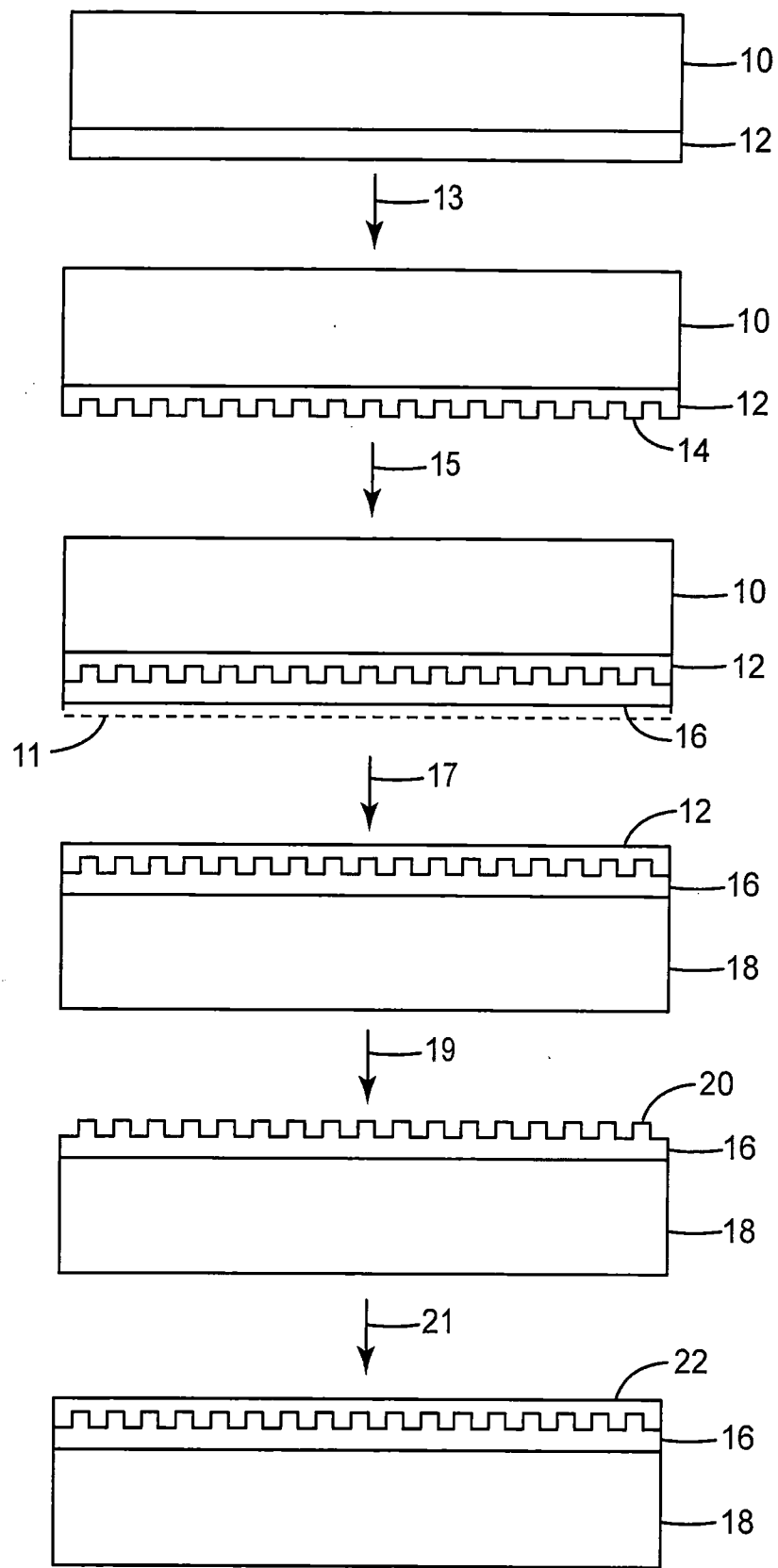


圖 1

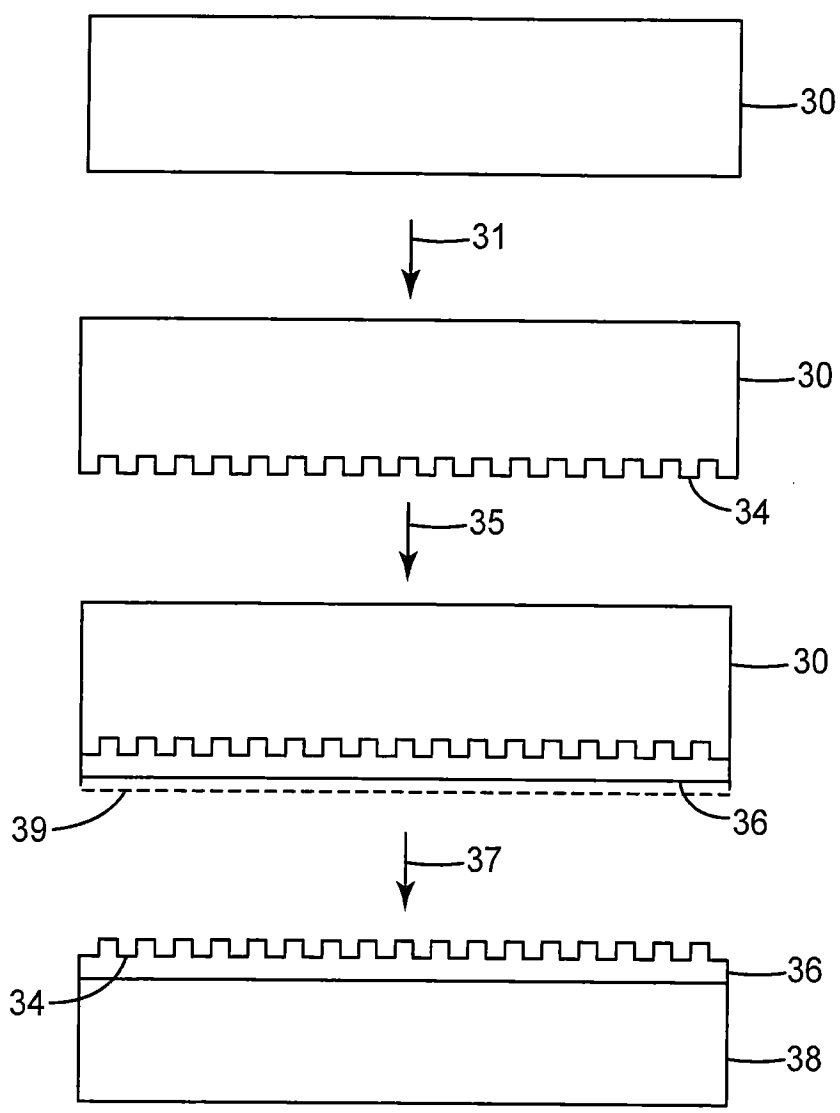


圖2

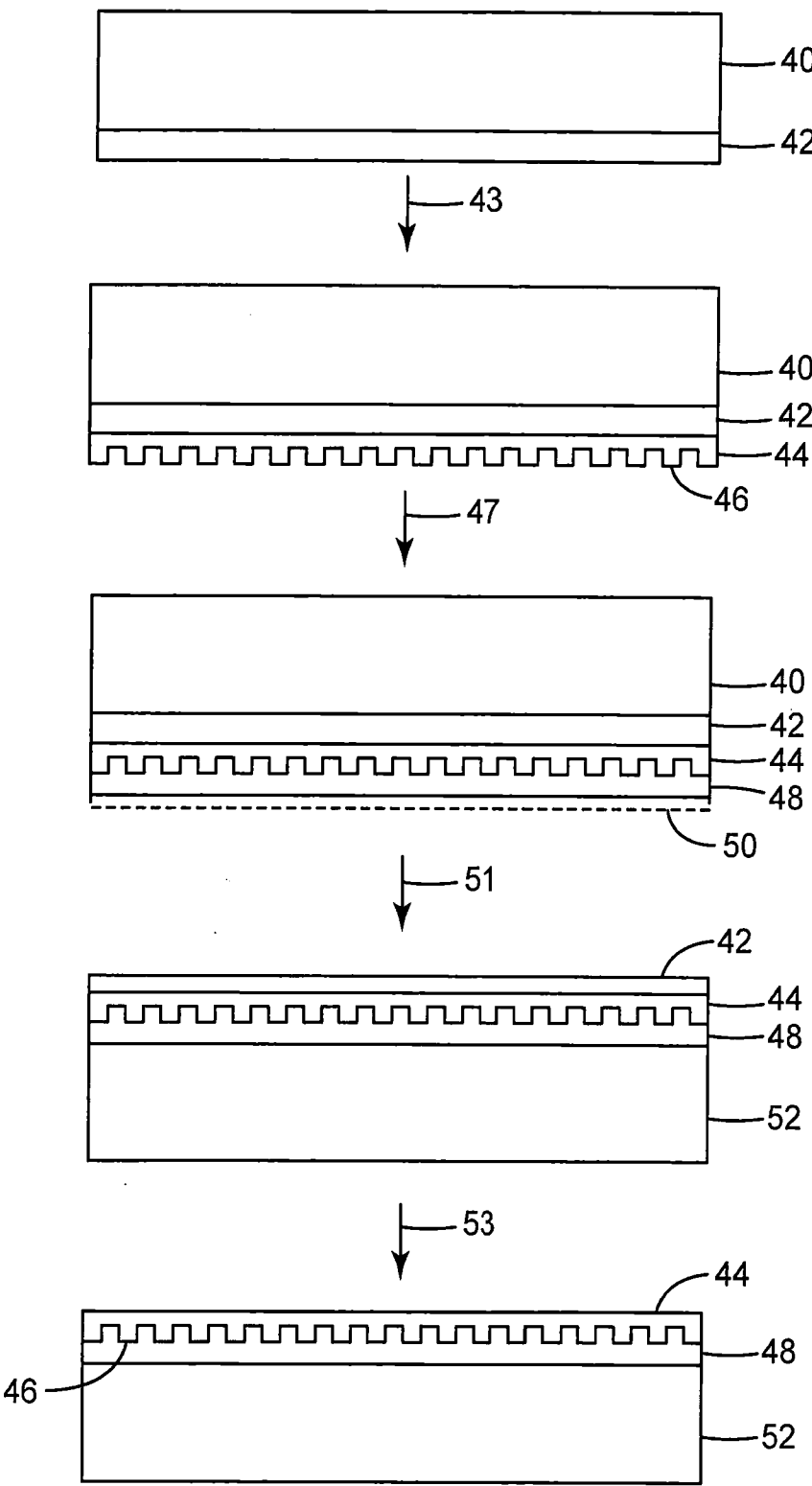


圖3

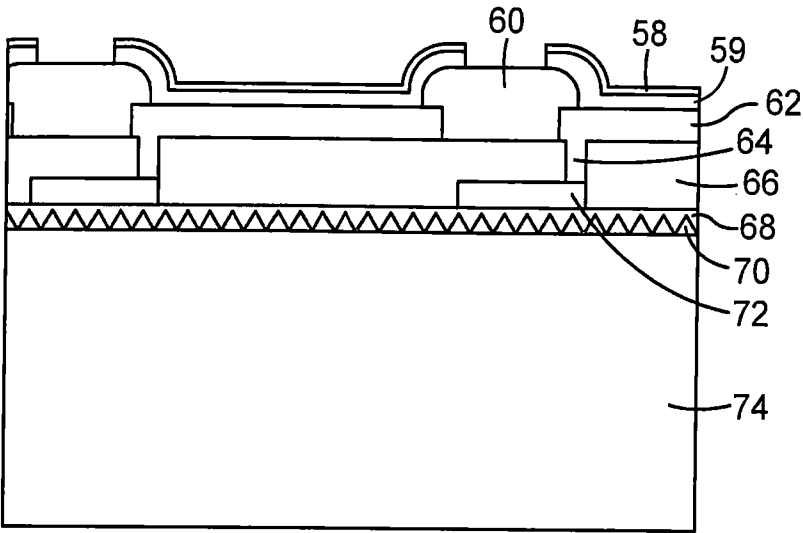


圖4

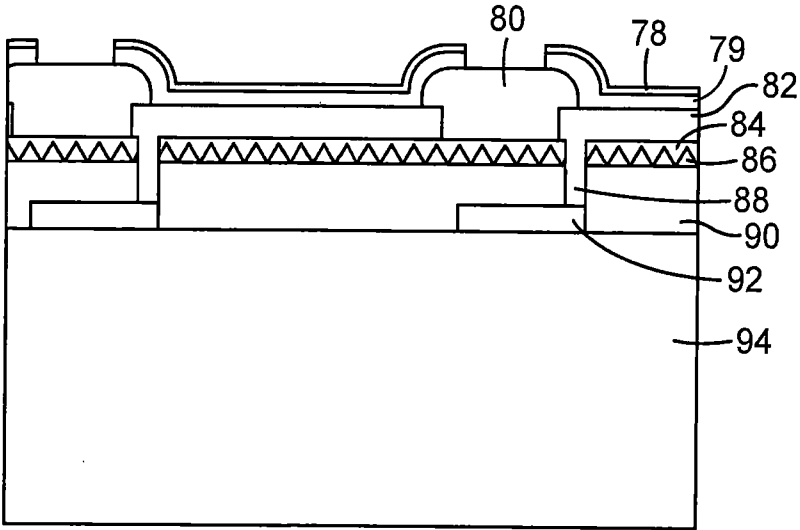


圖5

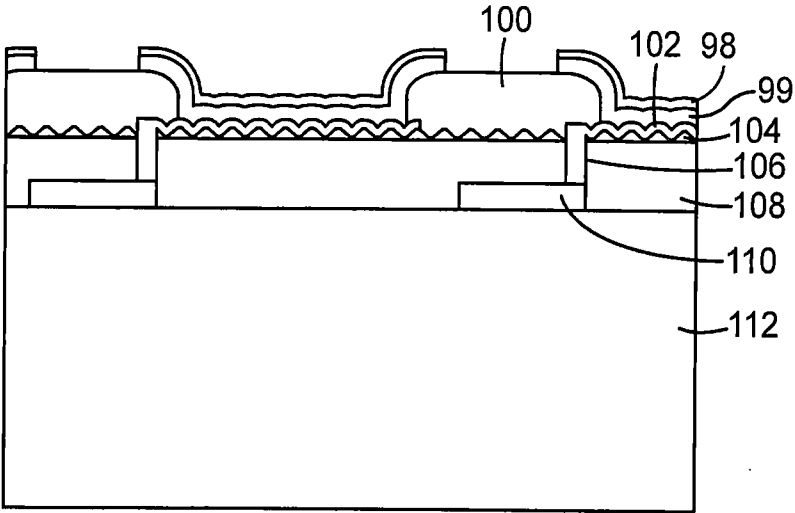


圖6

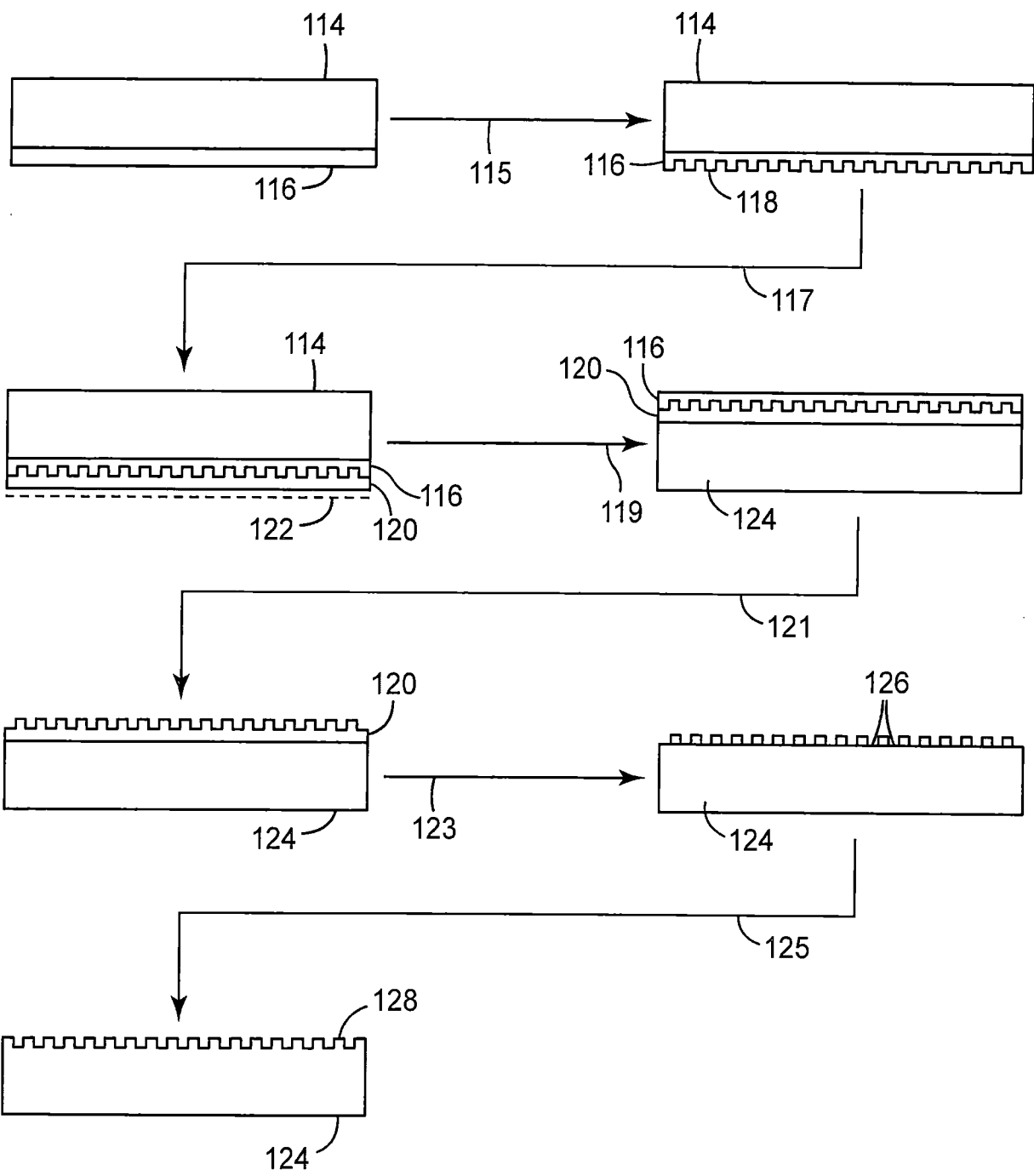


圖7

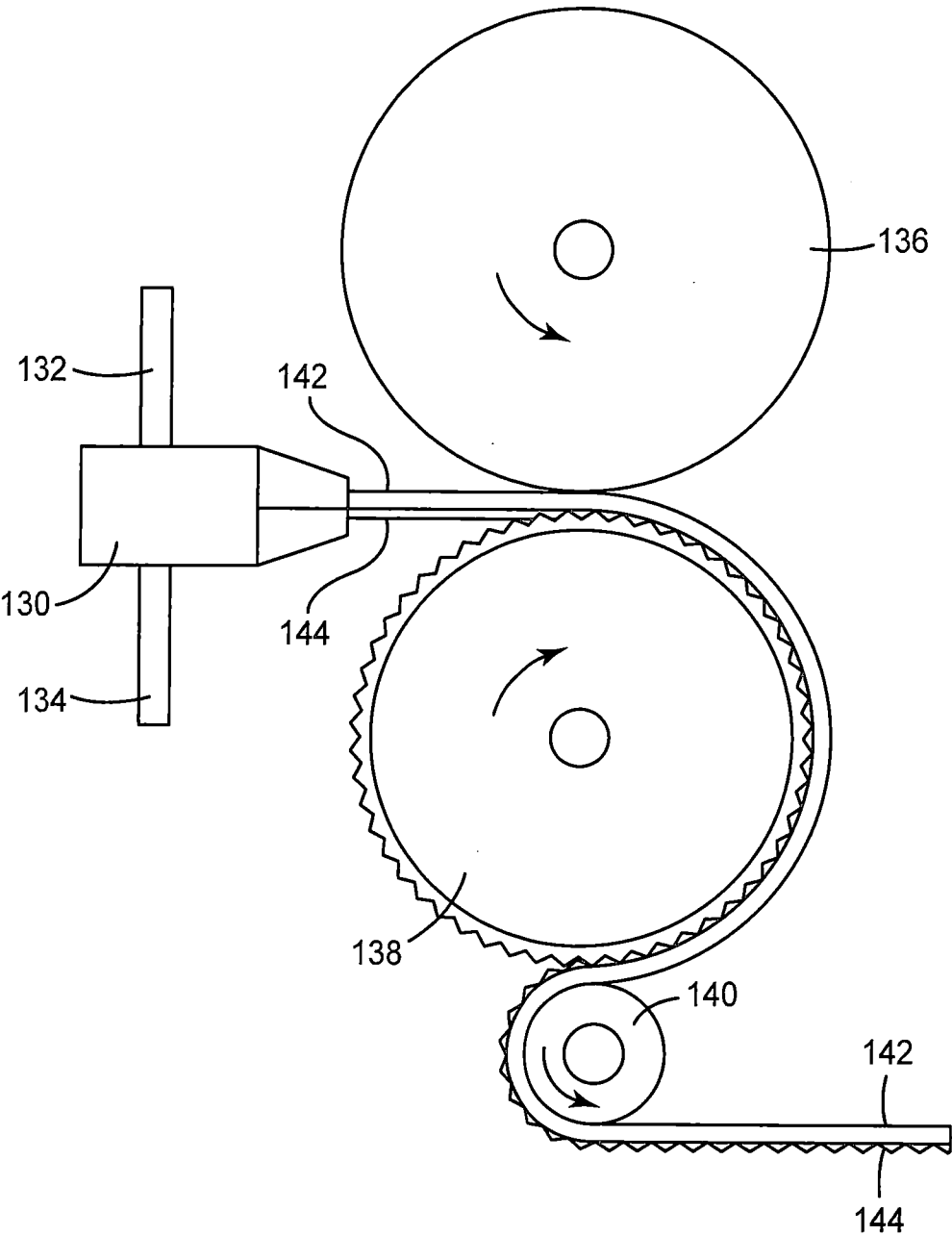


圖8

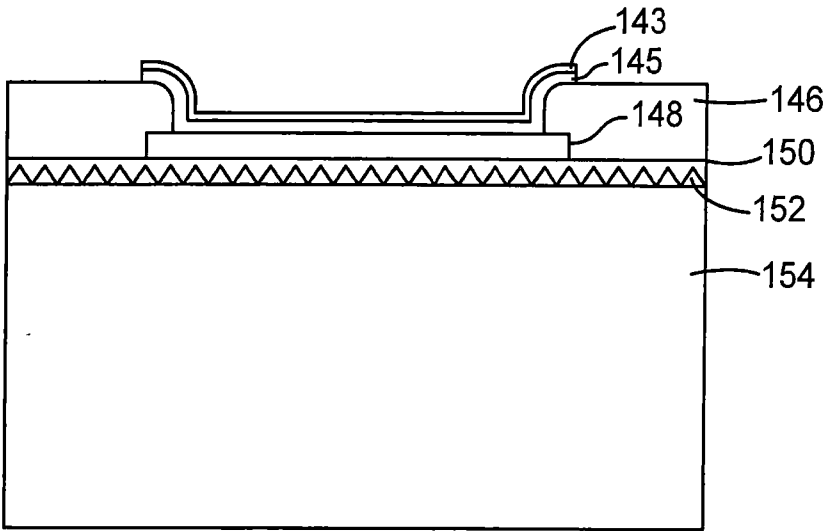


圖9A

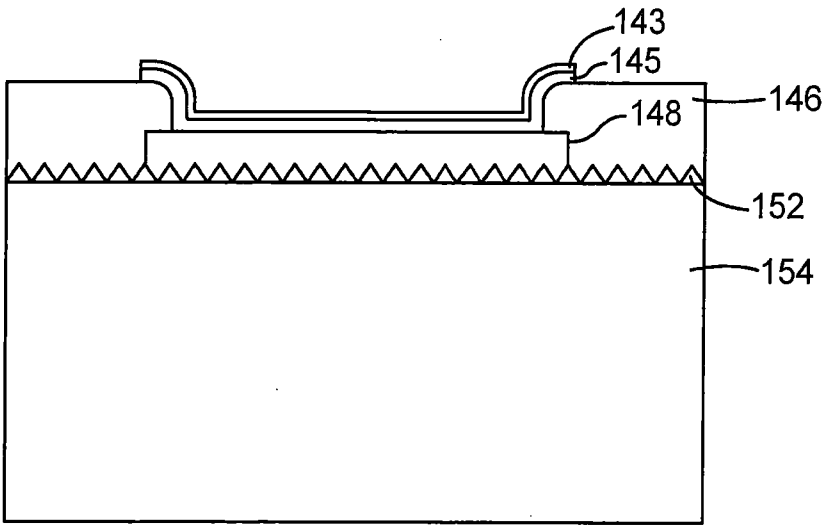


圖9B

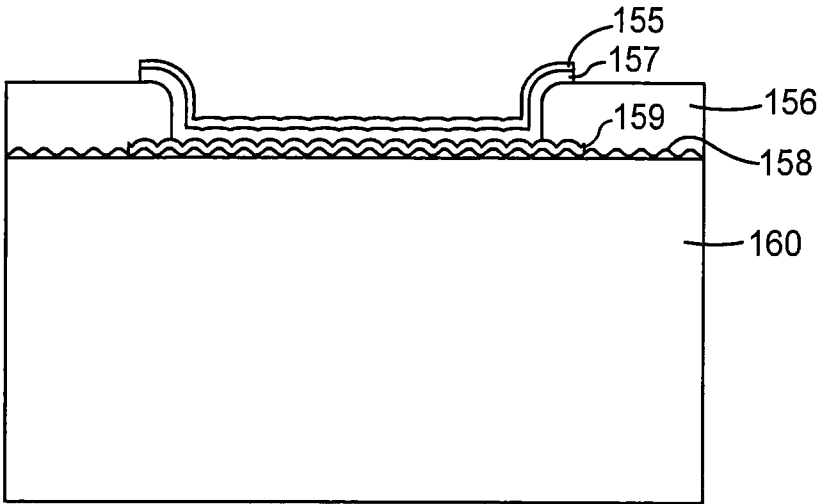


圖10

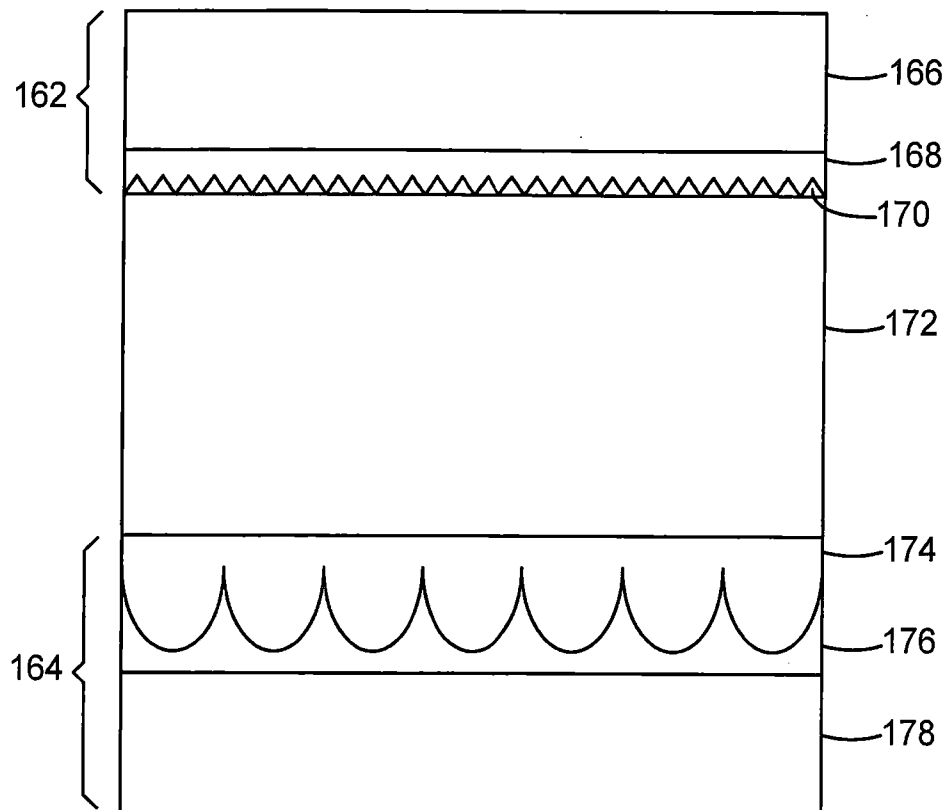


圖11

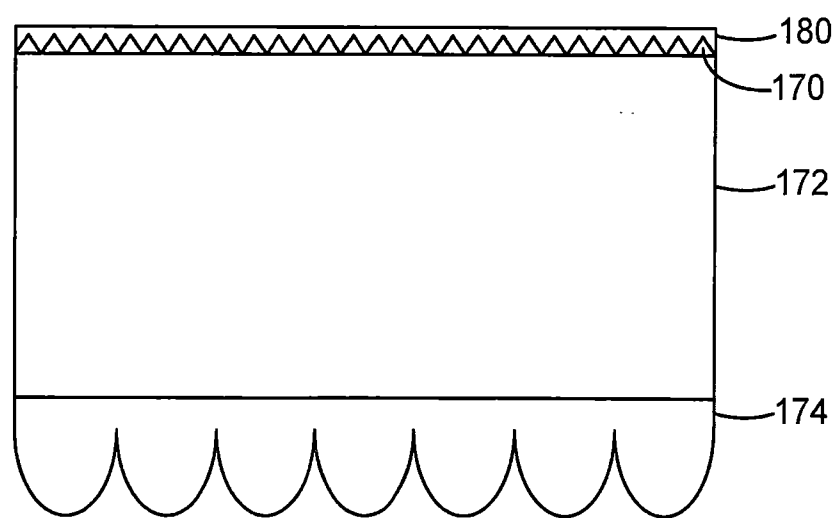


圖12

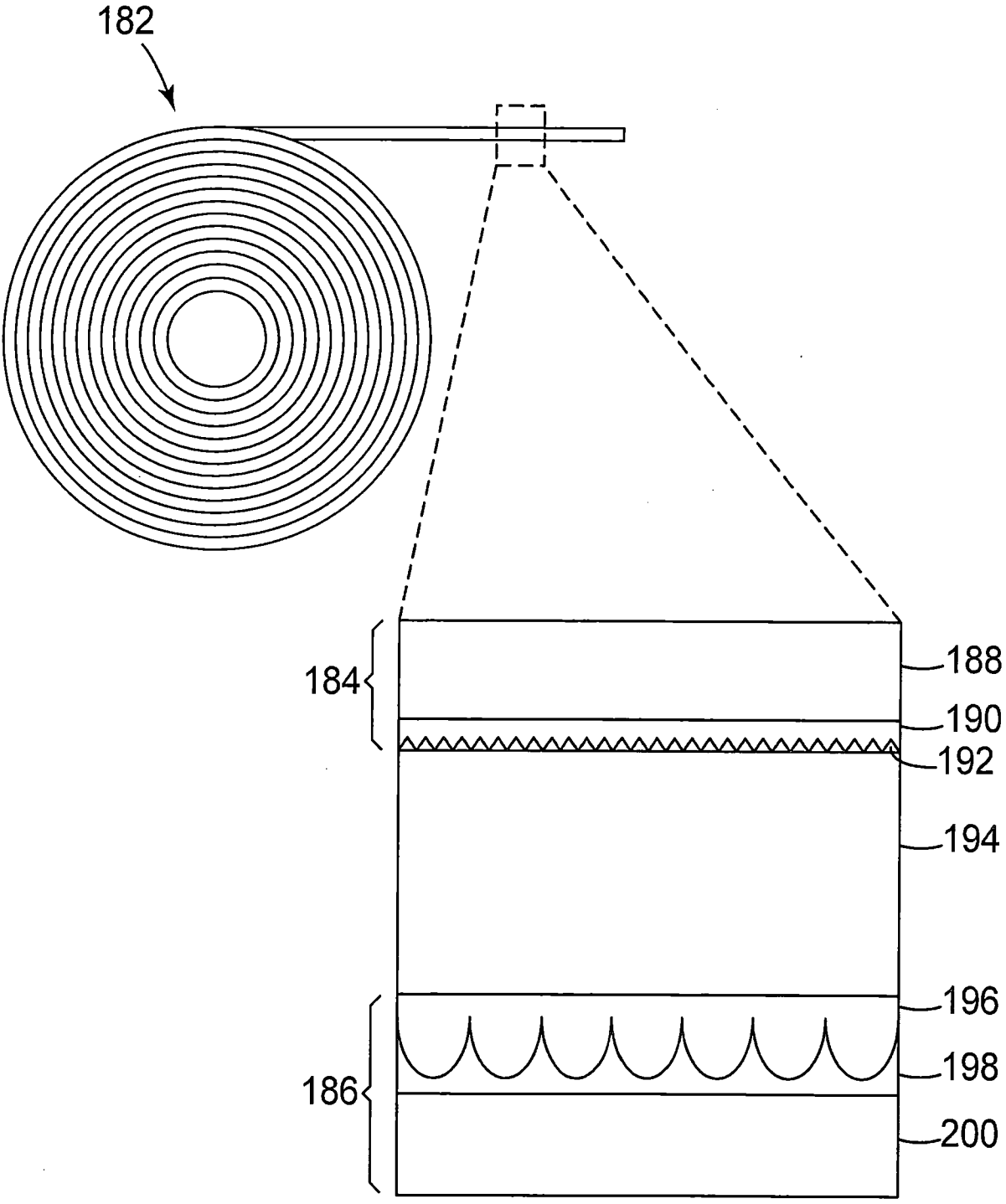


圖13

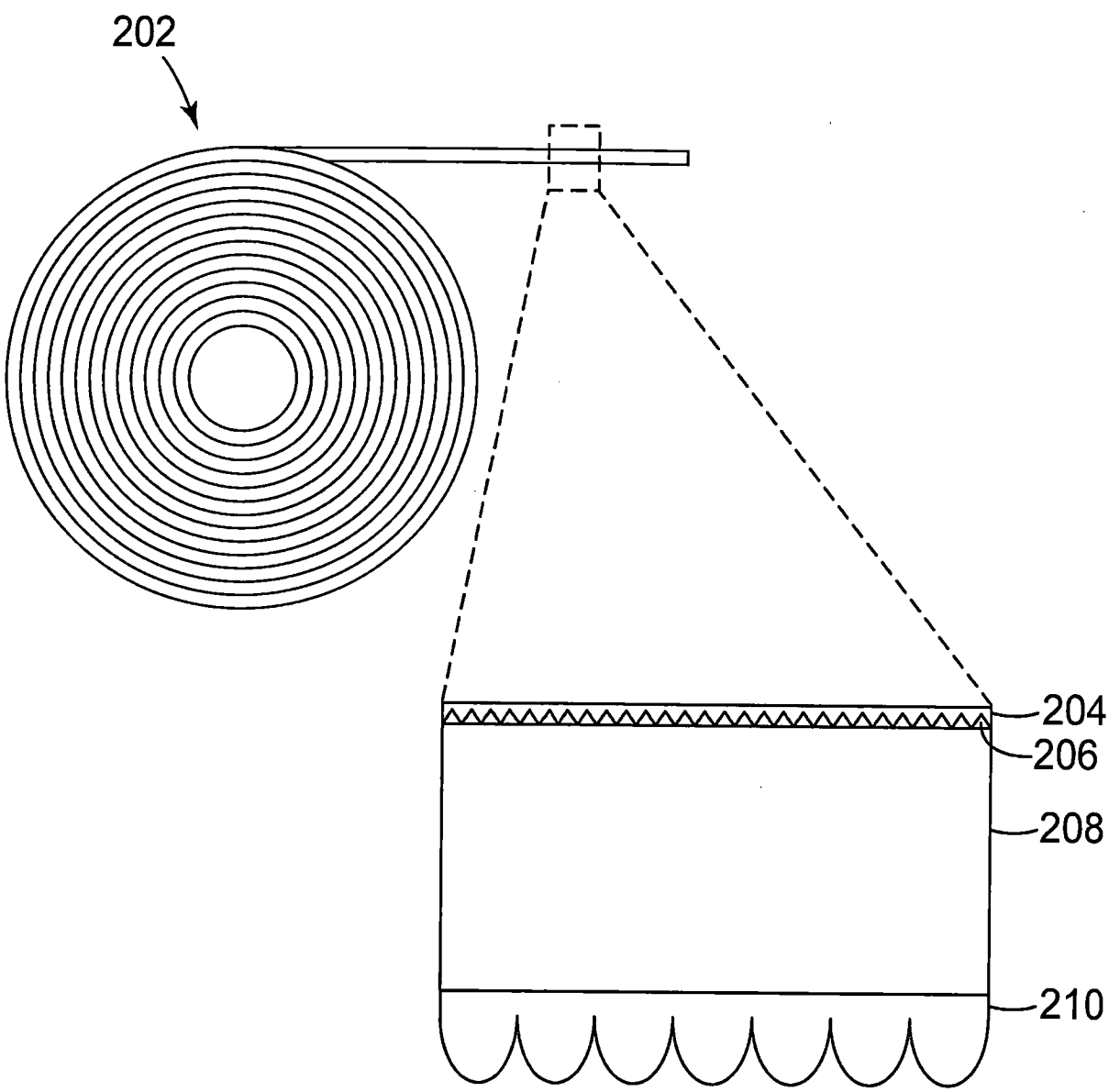


圖 14

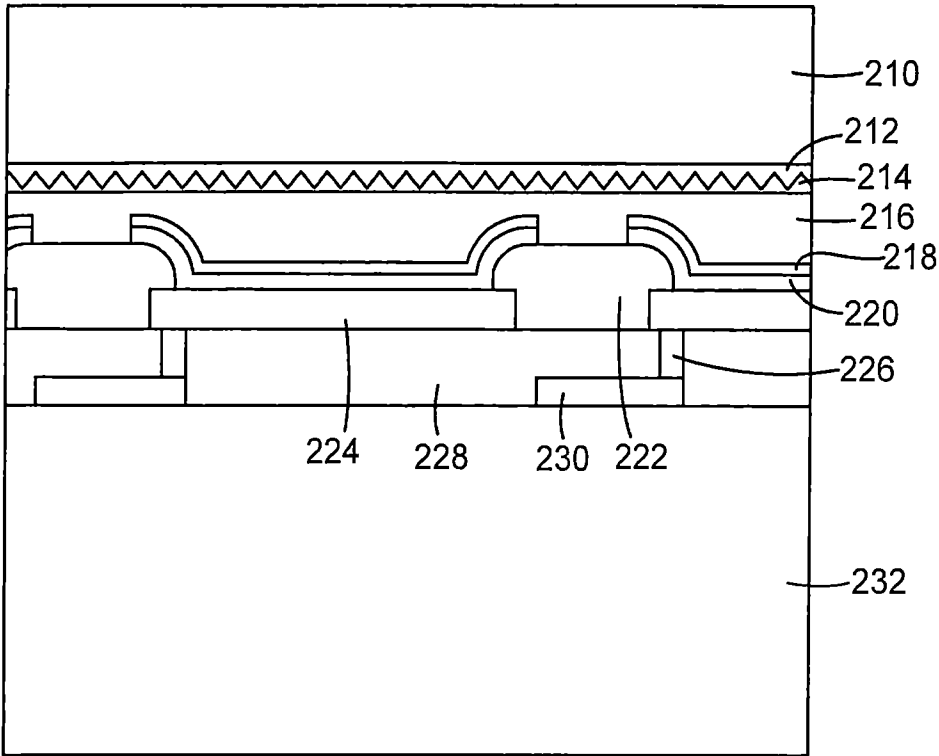


圖15A

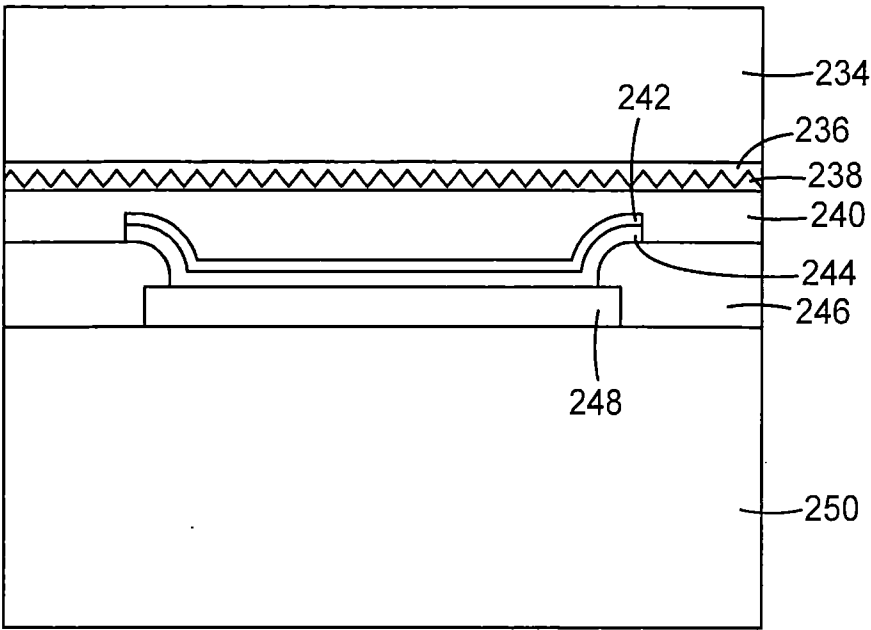


圖15B