

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 4 月 23 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630028

研究課題名(和文) 機能性表面創成のための多層・多段階インプリントプロセス

研究課題名(英文) Fabrication of Functional Surface by Multi-step Imprint Process for Layered Sheet Material

研究代表者

津守 不二夫(Tsumori, Fujio)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10343237

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：二層に重ねた材料に対し、マイクロパターンの転写成形を行うことにより、二層材料表面のみならず、層界面にもパターンを生成することが可能となる。本研究では、このような多層材料へのインプリントプロセスについて、2種類の異なるスケールの型を用いた加工を行い、多階層構造を作製した。この方法により単純な鋳型を2種類用意するだけで、両方のスケールを持つ表面構造を作製できた。このような多階層構造は自然界にも存在し、蓮の葉の超撥水構造はその典型である。本研究においても、多階層構造がより高い撥水性を発現することを確認した。

研究成果の概要(英文)：Two layered sheet material was prepared for hot embossing process, which can form micro pattern not only on the surface but also the interface between the layers. In this work, two kinds of mold were applied for the layered sheet material to fabricate a multi-scale surface structure. Only molds with simple patterning were needed for the process. The multi-scale surface structure can be found in nature, such as on a lotus leaf, which is famous for its super-hydrophobic surface. The fabricated multi-scale surface structure in the present work showed higher hydrophobicity than simple micro-patterned surface.

研究分野：粉末冶金，微細加工，MEMS

キーワード：ナノインプリント 生体模倣 微細加工 多階層構造 機能性表面

### 1. 研究開始当初の背景

インプリントプロセスは、樹脂に対する、いわゆるホットエンボス加工である。1990年代にプリンストン大学の Chou 教授がナノレベルの加工が可能であることを証明し、一躍話題となった。その後も世界中において活発な研究が続いており、半導体業界への応用を中心に、フォトニックデバイス、バイオ産業といった分野まで広く注目されている。加工解像度はシングルナノレベルにまで達しており、高アスペクト比(高さ/幅)構造の作製も可能となっている。

しかしながら、これらの構造は2次元パターンを押し出したのみの構造となっており、また、材質も一般には熱可塑性の樹脂に制限されていた。

### 2. 研究の目的

上記の通り、インプリントプロセスは超高解像度の転写成形プロセスとして確立された技術である。本研究では、多層シート材料に多段階インプリントプロセスを適用することにより、形状および材料の大幅な自由度の向上を目指すものである。特に出発材料として多層シートを用い、多層材料に対してインプリント加工を施すことにより、形状および材料の大幅な自由度の向上を目指す。さらには、多段階のインプリントプロセスを用いることにより、多層の構造を作製することを狙う。

### 3. 研究の方法

具体的なプロセスとしては、下層にセラミックス粉末材料を樹脂に分散させたコンパウンド材料を用い、上層に樹脂のみの材料を重ね合わせたシートにインプリント加工を施す。最終的に成形されたシートは加熱処理を施すことにより、上層やコンパウンド中に含まれる樹脂成分が完全に分解される。さらに、セラミックスの焼結温度で処理し、表面にパターンを有するセラミックシートを得ることになる。

多段階積層インプリント法では上層にセラミックスを含まないシート、下層にセラミックスのコンパウンドシートを積層して用いる。この積層シートにモールドを用い加圧成形を行う。これにより、上層のみならず上層と下層の界面にもパターンを成形することが可能となる。次に、より粗いパターンのモールドで転写を行う。最後に、サンプルに対して脱脂焼結プロセスを行うことで、樹脂のみの上層部は分解し除去され、セラミックス焼結体を得ることができる。同時に上層と下層の表面パターンが表層部に多層構造として残る。プロセスの概要を Fig. 1 に示す。

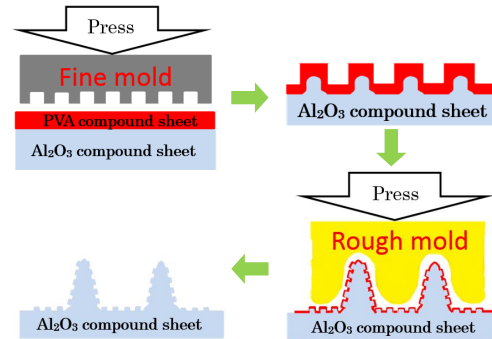


Fig. 1 多層多段階インプリントプロセスの流れ。

基本は Fig. 1 の流れで実験を行った。上層樹脂は PVA (ポリビニルアルコール)、下層コンパウンドはアルミナ粉末と PVA を混練したものである。下層には可塑剤としてグリセリンを添加し、粉末材料の分散を高めるための分散剤も加えた。アルミナは最も一般的な構造セラミック材料であり、また、粉末粒径もナノレベルであるため、微細加工に良好な粉末としてこれを使用している。モールドはライン&スペース形状のものを用い、微細パターンとしてシリコン製のシングルマイクロレベルの構造を用い、粗いパターンとして、耐熱性の高いポリイミドフィルムにレーザーでライン&スペースパターンを刻印したものの両方を用いた。

インプリント加工にはステージ上の温度制御が可能なエアプレス装置を用いた。サンプルは 100℃ で加熱し、加圧成形を行った。

この一連のプロセスは PVA 樹脂材料を熱により分解除去するプロセスである。ただし、後述のように、PVA 樹脂を上層とした場合には良好な成形結果が得られなかった。そこで、シリコーンゴム材料 (PDMS) を用い、加圧・加熱成形後にシリコーン樹脂部を剥がした後に焼結処理を行う手法も検討した。

### 4. 研究成果

PVA を上層として用いた場合の成形例を示す。Fig. 2 は 1 段階目のインプリント加工結果である。ここでは上層の PVA 層の初期厚さを 1.5 μm とした。

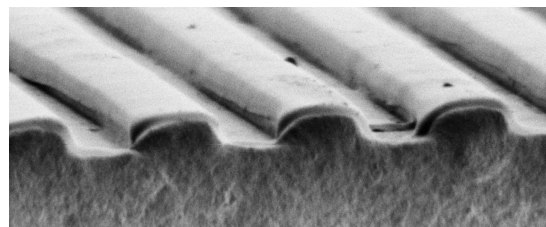


Fig. 2 二層材料へのインプリント加工例。スケールバーは 10 μm。

このシートに粗いモールドを用いて成形した例を Fig. 3 に示す .この結果を見ると、

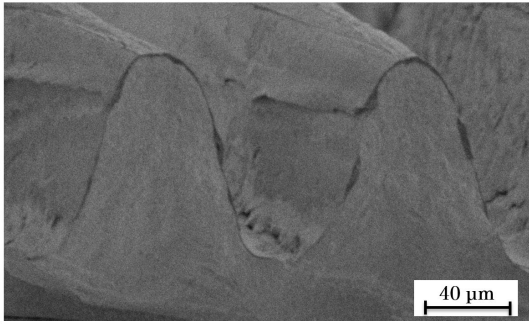


Fig. 3 二段階インプリント結果 .

大きな波型構造の表面に薄く濃い PVA 層が観察される .このように、微細パターンは残るものの、鮮明には残らないことが示された .そこで、アルミナコンパウンド単層のシートを微細パターンでインプリント加工した後、その表面をシリコンゴム材料でコーティングし、この二層の材料を粗いモールドでインプリントすることを試みた .

Fig. 4 は最終的な焼結体写真である .微細な表面パターンと同時に粗いパターンも成形され、多階層構造が得られていることが分かる .

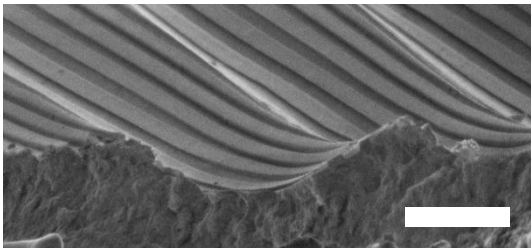


Fig. 4 多階層構造を持つ焼結体 .スケールバーは 50 μm.

また、このような多階層構造を有する表面の濡れ性を評価した .インプリント加工を施さない平らなパターン、微細なパターンだけを加工したもの、粗いパターンだけを加工したもの、両方を加工した多階層構造、の 4 サンプルについて水の液滴の接触角を測定した .その結果、平板試料では 116 °、微細パターンおよび粗いパターンだけのものは 130 ° 前後、多階層構造を有する試料は 135 ° 前後の接触角を示した .本研究で提案する新たなインプリント加工により、撥水性の高い表面構造が得られることが示される結果である .

#### 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 6 件)

Lijan Shen, Fujio Tsumori, Xu Yang, Toshiko Osada, Hideshi Miura,

Hierarchical patterning by multi-step micro imprinting process for layered material, Manufacturing Review, (in print).

Fujio Tsumori, Yang Xu, Yuki Tanaka, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Micrometer-scale Imprinting Process for Ceramic Sheet from Powder Compound Material, Procedia Engineering, 81 (2014) 1433-1438.

Fujio Tsumori, Yuki Tanaka, Xu Yang, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Development of improved solid oxide fuel cell electrolyte sheet by microimprinting for layered material, Japanese Journal of Applied Physics, 53 (2014) 06JK02-1-6.

XU YANG, Fujio Tsumori, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Improvement of solid oxide fuel cell by imprinted micropatterns on electrolyte, Micro & Nano Letters, 8-10, (2013) 571-574.

Fujio Tsumori, XU YANG, HYUNGOO KANG, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Simulation of Deformation of Layered Sheet during Micro Powder Imprinting Process, Proc. XII International Conference on Computational Plasticity, (2013) 1267-1273.

XU YANG, Tsumori Fujio, HASHIMOTO Seiya, TAKAHASHI Masashi, KANG HYUNGOO, Osada Toshiko, Miura Hideshi, Improvement of Solid Oxide Fuel Cell by Imprinted Patterns on Electrolyte, Proc. IEEE-NEMS2013, (2013) 887-890.

[学会発表](計 8 件)

Lijan SHEN, Fujio Tsumori, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Hierarchical patterning by multi-step micro imprinting process for layered material, 7th Asia Workshop on Micro/Nano Forming Technology, 2014.11.10.

Fujio Tsumori, XU YANG, Yuki TANAKA, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Micrometer-scale imprinting process for ceramic sheet from powder compound material, 11th International Conference on Technology of Plasticity, 2014.10.23.

津守 不二夫, 田中優紀, XU YANG, 長田稔子, 三浦 秀土, 積層インプリントプロセスによるセラミックシート両面への微細パターンニング, 平成 26 年度塑性加工春季講演会, 2014.06.07.

赤峯彰, 山口 哲生, 沈立然, 津守 不二夫, 澤江 義則, ヤモリを模擬したミクログリッド配列構造の動力学, 日本機械学会九州学生会第 45 回卒業研究発表講演会, 2014.03.04.

Yuki Tanaka, Fujio TSUMORI, XU YANG, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Development of improved SOFC electrolyte sheet by micro imprinting process for layered material, 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, 2013.11.07.

Fujio TSUMORI, XU YANG, HYUNGOO KANG, Toshiko Osada, Hideshi Miura, Simulation of Deformation of Layered Sheet during Micro Powder Imprinting Process, XII International Conference on Computational Plasticity, 2013.09.05.

津守 不二夫, XU YANG, 高橋 昌史, 橋本 聖矢, KANG HYUNGOO, 長田 稔子, 三浦 秀土, 多段階積層インプリントプロセスによるセラミックス微細薄膜構造体の作製, 粉体粉末冶金協会春季大会, 2013.05.28.

XU YANG, TSUMORI Fujio, HASHIMOTO Seiya, TAKAHASHI Masashi, KANG HYUNGOO, Osada Toshiko, Miura Hideshi, Improvement of Solid Oxide Fuel Cell by Imprinted Patterns on Electrolyte, IEEE-NEMS2013, 2013.04.08.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

津守 不二夫 (TSUMORI, Fujio)  
九州大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 10343237

### (2) 研究分担者

山口 哲生 (YAMAGUCHI, Tetsuo)  
九州大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 20466783

### (3) 連携研究者

河野 正道 (KOHNO, Masamichi)  
九州大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 50311634