

平成 30 年 6 月 8 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26289249

研究課題名(和文)乱雑さを制御した複合プロセスによる、高機能発色材の実現

研究課題名(英文) realization of highly-functional color materials using multi-processes by controlling a structural randomness

研究代表者

齋藤 彰 (SAITO, Akira)

大阪大学・工学研究科・准教授

研究者番号：90294024

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,300,000円

研究成果の概要(和文)：ナノの乱雑さを含む複合プロセスを用いることで、大面積(80 mm)かつフレキシブルなモルフォ蝶型発色膜の作製プロセスについて、ほぼ完成することができた。そのプロセスでは量産化用の複製工程において、鋳型のフレキシブル化と、レプリカのフレキシブル化、2つのルートが可能にし、生産工程の自由度を格段に上げることができた。作られた発色体は、モルフォ発色固有の光学特性がフレキシブル条件下でも保持されただけでなく、自立したフレキシブルフィルムとして自由な変形に耐え、強度も実用に耐えるレベルであることがわかった。

研究成果の概要(英文)：Using multi-processes including nanoscale randomness, I achieved the fabrication process for large-area (80 mm square) and flexible Morpho-color materials. In these developments, I enabled double-ways, i.e. both the flexible mold and flexible replica, which increased largely a flexibility of the fabrication process. The realized color materials maintained the original and specific Morpho-color properties even under the flexible-film conditions. Moreover, they have mechanical strength and endurance against repeated bending, which are available for applications.

研究分野：応用光学、ナノ加工、表面科学

キーワード：構造色 モルフォ蝶 ナノインプリント ナノ構造 フレキシブル 薄膜 発色体 応用

1. 研究開始当初の背景

研究対象はモルフォ蝶の巧妙な光学構造、およびその構造に基づく「高機能発色材」である。発色の長所は、「高輝度」の干渉色に矛盾した「広角の色不変性」と「色素不要」(退色無し・低環境負荷)な点である。研究開始当初は、基本特性の実証を経て、各種の分析が進展中であり、また諸般の応用技術が開発途中であった。分析は「乱雑さの光学的役割」が主であり、応用技術は量産化、大面積化、特性制御、等である。しかしナノの乱雑さという困難な構造要因があるため制御が困難であり、また、生産技術もナノ構造をもつ光学薄膜(真空蒸着が前提)であるため形状・工程の制約が大きく、応用にはほど遠い状況であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、生物(モルフォ蝶)の巧妙な光学構造に基づく「高機能発色材の開発」、特に複合プロセスに基づく生産技術の開発である。前項のとおり、本発色材には固有の実用的長所が多く存在する。しかし、ナノの乱雑さという困難な構造要因ゆえ、応用にはほど遠い状況であった。そこで申請者の開発した「乱雑ナノ構造の光学効果」の数値計算、薄膜技術、レーザ加工と簡易砥粒加工、乱雑さ制御、を組み合わせることで、乱雑ナノ構造から光学特性制御に至るプロセスを、一貫して開発する。これにより、効果的な量産化と大面積化を、発色の設計・制御とともに行うこと、さらに工程(ナノインプリント・真空蒸着)による形状の制約(平板の厚い基板上でのみ)を開放し、基板フリーの「フレキシブル膜」実現、を経て、「使えるモルフォ発色材」を実現することを目的とする。

3. 研究の方法

まずベースは、1) 複合プロセス(レーザ加工と砥粒加工)による超高速・大面積作製と、2) 「ナノの乱雑さ設計」による光特性制御である。1)2) は不可分であり、試作段階の1) 複合プロセスに、2) 「乱雑さの光効果」の数値計算をフィードバック・制御し、「乱雑さ設計」による効率的な超高速作製プロセスを確立する。

モルフォ発色体の製作プロセスは、特殊な乱雑ナノパターンニングと多層膜蒸着の2段階で構成される。前者では上面から見た長軸方向に乱雑な長さ分布をもつ長方形を配置し、確率1/2で乱雑に凹凸を彫ることが設計の肝であった。このナノパターンがモルフォ発色5原理(多層膜で色決定、回折広がり、稠密性、乱雑さ、異方性)の後半4条件を一度に満たす。ここをいかに高速化するかが鍵である。

そこで大面積(の鋳型)用に、新工程(レーザ加工)の超高速・大面積ナノパターン形

成を行う。このレーザ加工は各パラメータ制御性に不確かな部分が非常に大きく、このパラメータ制御をできるように条件を詰める。

次の『ナノの乱雑さ設計』では、加工だけでなく成膜も含めた総合的な設計を行う。光特性制御モルフォ発色体の色は、多層膜で決まる。しかし乱雑さを含む構造が基本となるため、その制御は一般に困難である。我々は理論的な「乱雑構造の光学効果」を予測できる計算技術を開発しており、これを設計に援用することで「乱雑さの設計・制御」を行う。具体的には、乱雑さの各パラメータを現実の作製プロセスにフィードバックするサイクルの確立を行う。

乱雑さを補完するには、異方的な砥粒加工が適すると見積もれているが、その実証には計算のフィードバックを行い、設計とパラメータ制御の反復による整合工程を要する。このパラメータ制御を詰めることで、総合的な超高速・大面積モルフォ発色体作製プロセスが確立し、さらにナノインプリントによる複製を加え初めて、現実的な発色体の作製工程を実現する。

次に、得られた知見を基に、幅広い応用に向けて、フレキシブル膜の実現を進める。このステップは、経験豊富なナノインプリントに基づき、樹脂の膨潤制御によって発色薄膜の剥離条件を探索する。従来はナノインプリントと真空蒸着双方の必要性から厚い平らな基板が不可欠で、用途を大幅に制限していた。解決手段は、ナノインプリント量産基板の構造を有効活用し、ナノパターン(量産型では樹脂)上の発色部(多層膜)を基板から剥離、フィルム化することである。ただし剥離用に犠牲層など余計なプロセス追加は工程を複雑化し、実用化を害する。そこで申請者は、インプリント樹脂を工夫し、熱水で簡便な剥離を行う。剥離の際、発色膜は1mm程度の薄片に千切れてしまうが、保護膜形成や、(萌芽的に見出している)連続剥離の条件を詰めて、膜全体の樹脂の連続剥離を目指す。この独自提案の原理に基づき、ナノパターンのアスペクト比、溶媒・温度等の条件を把握する。そして最適膨潤率の樹脂選択など多くの未知数を詰め、途上にある「膜の大面積化」を実現する。

4. 研究成果

基本作製プロセスは「乱雑ナノパターンニング」と「多層膜蒸着」の2段階で構成される。この2段階の後者において、重要な成膜ノウハウが得られた。それは基板の前工程である黒化処理について、構造上の新たな役割が見出されたという点である。

また基板フリー・フレキシブル発色膜の作製について、作製プロセスで当初予見されていたいくつもの困難を、工夫の積み重ねによって克服し、ほぼモルフォ固有の発色特性を満たすフレキシブル膜の実現が可能となっ

た。また、基板フリー化とともに、上記のフレキシブル膜と相補的な「(膜でなく)フレキシブルモールド」の作製にも成功した。これはナノインプリントによる量産化において、鋳型自体をフレキシブルにできるため、形状の自由度が大きく増すことになる。やはりこの場合も、この鋳型からできた発色体は、モルフォ発色固有の光特性を満たすことが確認できた。

次に、モルフォ固有の発色特性を有するフレキシブル膜の作製について、その工程を可能にする基本原理が不明であったが、それが新たなアンカー効果・クランプ効果に基づくことが判り、またフレキシブルの本質である「曲げ状態下」の挙動(曲げ状態の光特性には一見して予想や直観と矛盾する点や、不明点が多数あった)で新たな知見が得られた結果、プロセスのメカニズムについて特性と構造の全体を矛盾なく説明できるに至った。その結果、プロセスの理解が進み、その応用と改良など展開がより着実にできるようになった。

また、基板フリー化(ナノインプリント樹脂と多層膜部のみの剥離)、モールドのフレキシブル化に加え、レプリカ(レプリカは上記の基板フリー発色体に、大強度のフレキシブル膜を添付)のフレキシブル化が実現できた。この結果、ナノインプリントによる量産化において、形状の自由度が大きく増す。やはりこの場合も、それぞれの発色体は、モルフォ発色の光特性をもつことが確認できた。

さらに標記課題の新たな意義として、よりグローバルな観点からバイオメテイクスという枠組みが顕在化し始め(国際標準化の策定が始まるなど)、本分野の国際動向と連結して新たな価値(特に産業上の価値)も見出された。

もう1つの当初計画「ナノの乱雑さ制御におけるレーザ加工」については、加工自体というより、その精密制御の困難さが引き続き残る。フレキシブル発色膜の作製時、レーザ加工と砥粒加工自体は実施しており、その点で本研究の一連の加工は、ナノ乱雑さ制御を踏まえてはいるが、工夫の途上である。この基板加工の段階では、面内長軸方向に、ある所定の範囲の乱雑さ分布をもつ凹凸作製を行うことが設計の肝である。期間中に行った多数のナノパターンニング試行のうち、モルフォ発色にとって十分な基板ナノ構造パラメータ形成ができたケースは確実にあった。しかし、ナノパターンのパラメータ再現性については、レーザ条件と基板(成分や表面の平坦さ等)および環境を含む諸々の条件などを全く同じように揃えても、十分に制御できたとと言えるのは2回であった。「応用レベル」まで進めるには、レーザ加工の原理について、

学理からさらなる解明を進め、制御パラメータ(レーザのみならず基板・環境の条件も含む)を把握する必要がある。

上記を受け、乱雑さの役割の新知見をもとに、改めて補助的な、ただし新規な乱雑さの設計・作製プロセス開発を行った。つまり「ナノの乱雑さ」設計・加工それぞれにおいて、レーザ加工に加え、それとは別に新たな案に基づく加工プロセスを開発した。具体的には、従来のナノの乱雑さは面内だけで設計・加工されてきたが、深さ方向でも新たな乱雑さを導入する3D設計を考案し、それを実現する新たなプロセス開発を行った。その結果、乱雑さ設計の自由度が広がった。この深さ方向を加味した3D設計への拡張はリソグラフィを前提としており、スループットではレーザ加工に比較できず、むしろパフォーマンス重視の新技术である。しかし「新たな乱雑さの自由度」が得られたため、加工プロセスの新規性では大きな進展であるし、今後の展開に幅広い可能性がある。

最終的に、従来(10 mm)に比べてはるかに大面積(80 mm)かつ、フレキシブルな発色膜の複合作製プロセスについては、実現することができた(高速ナノパターン加工の再現性・制御性については引き続き開発)。そのプロセスでは量産化用の複製工程において、モールドのフレキシブル化と、レプリカのフレキシブル化、2つのルートを可能にし、生産工程の自由度を格段に上げることができた。作られた発色体は、モルフォ発色の光学特性が保持されただけでなく、自立したフレキシブルフィルムとして自由な変形に耐え、強度も実用に耐えるレベルであることがわかった。

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 17 件)

1. A. Saito, K. Ishibashi, M. Akai-Kasaya, Y. Kuwahara, Simple Mass-production Method of Substrate-free Powders for Applications of the Morpho-colored Materials, Proc. SPIE., 有、9429、2015、942912 (9 pages)
DOI: 10.1117/12.2084517

2. R. Yamauchi, Y. Hamasaki, T. Shibuya, A. Saito, N. Tsuchimine, K. Koyama, A. Matsuda, and M. Yoshimoto, Layer matching epitaxy of NiO thin films on atomically stepped sapphire (0001) substrates, Sci. Rep., 有、5、2015、14385 (9 pages)、doi:10.1038/srep14385

3. A. Saito, K. Ishibashi, J. Ohga, Y. Kuwahara, Morpho-colored flexible film fabricated by simple mass-production method, Proc. SPIE、有、10162、2017、101620U (7 pages)
doi: 10.1117/12.2258638

4. 齋藤彰、IoT と ISO: 産業を睨むバイオミメティクスの国際潮流、超精密、無、23、2017、p.44-47

5. A. Saito, K. Ishibashi, J. Ohga, Y. Hirai, Y. Kuwahara, Replication of Large-area Morpho-color Material using Flexible Mold, Proc. SPIE、有、10593、2018、105930C (7 pages)
doi: 10.1117/12.2296532

6. A. Saito, K. Ishibashi, J. Ohga, Y. Hirai, Y. Kuwahara, Fabrication Process of Large-area Morpho-color Flexible Film via Flexible Nano-imprint Mold, J. of Photopolymer Sci. and technol.、有、31、2018、Accepted.

〔学会発表〕(計 44 件)

1. 齋藤彰、IoT と ISO: 産業を睨むバイオミメティクスの国際潮流、精密工学会秋季大会シンポジウム/超精密加工専門委員会 第71回研究会(招待講演)、2017年、大阪大学豊中キャンパス

2. 齋藤彰、広視野・色不変・高輝度な発色材の量産化、応物学会ナノインプリント技術研究会第3回(招待講演)、2017年、ビジョンセンター田町

3. 齋藤彰、蝶のミステリーに学ぶ新たな光輝材料の開発と進展、ネイチャーインダストリアルアワード 基調講演(招待講演)、2016、大阪科学技術センター

4. 齋藤彰、バイオミメティクス世界動向: Biomimexpo など、科研費新学術領域「生物規範工学」公開講演会(招待講演)、2016、近江八幡ラ・コリーナ

5. A. Saito, Developments of new brilliant materials learning from the Morpho-butterfly's color for wide applications, CEEBIOS, GIS (groupes d'innovations stratégiques) "Matériaux bio-inspirés"(招待講演)、2016、IUT Paris Diderot, France

6. Akira SAITO, Morpho-colored Materials having High Reflectance in Wide Angle without Color-change: Multi-developments for Practical Applications, CIMEC 2016 (招待講演)、2016、Centro Congressi Hotel

Quattrotorri, Perugia, Italy

7. 齋藤彰、応用から見たモルフォ蝶の構造色、第16回構造色シンポジウム(招待講演)、2015、東京理科大・野田キャンパス

8. 齋藤彰、バイオミメティクスの国際標準化動向、高分子学会シンポジウム(招待講演)、2015、札幌コンベンションセンター

9. 齋藤彰、光と物質表面の相互作用 モルフォ蝶に学ぶ構造色-、日本学術振興会 第142委員会(招待講演)、2015、東京理科大、東京

10. Akira SAITO, Simple Processes for Substrate-Free Morpho-Color Materials and a Survey of New Trend in Biomimetics, The 15th International Symposium on Biomimetic Materials Processing (BMMP-15) (招待講演)、2015、Nagoya

11. Akira SAITO, Multiple Developments of the Optical Biomimetic Device based on Nanotechnology, 15th Chitose International Forum (招待講演)、2014、Chitose Inst. of Science & Technology

〔図書〕(計 6 件)

1. 齋藤彰、CMC 出版、インスツルメンテーションの視点からみたバイオミメティクス、2016、p.253-263 (in 308 頁)

2. 齋藤彰、日刊工業新聞社、トコトンやさしいバイオミメティクスの本、2016、p.38-39,90-91 (in 160 頁)

3. 齋藤彰、技術情報協会発行・NTS 出版、生物模倣技術と新材料・新製品開発への応用、2014、p.438-444 (in 702 頁)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称: 構造体の製造方法、積層体の製造方法、構造体の製造装置、及び積層体の製造装置

発明者: 齋藤彰
権利者: 大阪大学

種類: 特許

番号: 特願 2014-248919

出願年月日: 2014 年 12 月 09 日

国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www-ss.prec.eng.osaka-u.ac.jp/html/member/stuff/saito.html>

6 . 研究組織

(1)研究代表者

齋藤 彰 (SAITO Akira)

大阪大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号： : 90294024

(2)研究分担者

()

研究者番号：

(3)連携研究者

()

研究者番号：

(4)研究協力者

()