

平成21年6月22日現在

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2006～2008

課題番号：18750195

研究課題名（和文） 弾性高分子表面の自己組織化微小しわパターンへの応答

研究課題名（英文） Response of self-organized microwrinkles to external strains

研究代表者 大園 拓哉（OHZONO TAKUYA）

独立行政法人産業技術総合研究所・ナノテクノロジー研究部門・研究員

研究者番号：43044030

研究成果の概要：FIBやEBなどのナノリソ技術を用いて微小な皺構造の自己組織化をアシストすることで、欠陥のない皺構造（微小凹凸構造）を誘起させ、さらに皺方向のスイッチング制御をする方法を確立した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	1,800,000	0	1,800,000
2007年度	900,000	0	900,000
2008年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	270,000	3,870,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学・（高分子・繊維材料）

キーワード：自己組織化、微小機械、表面、マイクロリンクル

1. 研究開始当初の背景

時間・空間を考えた自己組織化現象および、その結果の構造やパターンを機能材料として利用する期待と要求が研究開始当初から現在に渡り高い。その現象の一例として、弾性体表面をプラズマ処理することで、表面近傍が硬化し、表面とバルクとの弾性定数の差と熱膨張の影響により空間波長 λ のそろった皺（しわ）が自発的に発生する現象がある。シリコン弾性体の場合、処理条件により λ は0.2-50 μm で制御が可能である。その高低差は波長の0.1倍程度である。この表面構造は、異方的力学材料、マイクロ流路、フォトニッ

ク材料、生体組織培養機材などへの応用が期待されるが、世界的には、その皺パターンの静的利用（マイクロ加工の代用）のための発生制御が研究されるに留まっていた。対して私の研究では、その皺パターンの制御と動的特性に注目し調査していたので、その新規時空間材料としての展開にむけて、この研究の加速が必要であった。

2. 研究の目的

微小な皺構造の自己組織化を制御し、その外場への応答挙動を調査し、その制御法の確立と構造変化メカニズムの解明を目指す。

3. 研究の方法

FIBやEBなどのナノリソ技術を用いて微小な皺構造の自己組織化をアシストすることで、欠陥のない皺構造（微小凹凸構造）を誘起させ、さらに空間波長と皺方向の制御を目指す。その制御された構造の外場応力への応答について微小機械スイッチ応用を念頭に調査を進める。

皺を形成する基板はシリコンゴムであるが、これは熱硬化性の弾性体である。よってネガティブマスター鋳型としてシリコン基板上へのFIBによりナノパターンを作成し、それをシリコンゴムへナノインプリントすることで突起状のナノパターンを作成した。その表面に金属蒸着により硬い薄膜を形成し、1軸圧縮応力を加えることで皺構造形成を誘発する。その皺構造を光学顕微鏡およびAFM装置を用いて観測し、ストライプパターンの解析を行った。

4. 研究成果

(1) 主な成果

Fig. 1 に FIB による加工パターンとその上に薄膜を形成し、1 軸圧縮応力を加えることで発生した“制御された”マイクロリンクル構造の光学顕微鏡像を示す。デザインされたナノパターンによって囲まれた中央の長方形の擬 1 D 領域において、ナノパターンが境界条件として働くことにより、ストライプの方向が 4 つの状態 (n : -2, -1, +1, +2) で安定化されることが分かった (Fig. 2)。

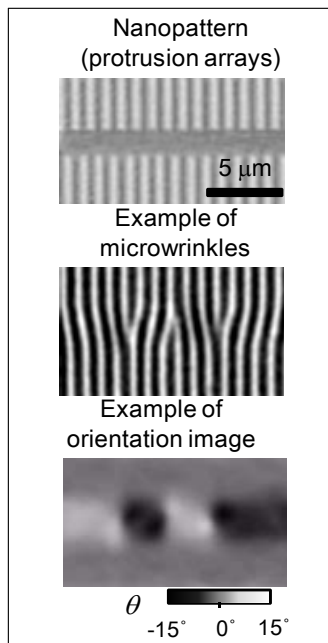


Fig. 1. (上) ナノリソグラフィーで作製した人工凹凸パターン（白い部分が 50nm 高い突起）、(中) 人工凹凸パターンによって制御されて自己組織化した皺のストライプパターン、(下) そのストライプ方向、 θ を解析した画像。

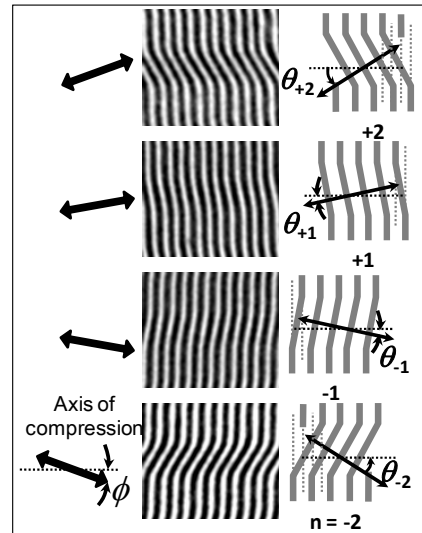


Fig. 2. 1 軸圧縮方向を変化させた場合のパターン中央部分のストライプ方向変化の 4 状態安定化（光学顕微鏡像）。右にストラップパターンの模式図を示す。

本結果から、人工パターンと外部応力を組み合わせることで、自己組織化したストライプパターンの方向（すなわち表面の傾き）が特定方向間でスイッチできることが明らかとなった。この結果は、リンクルに基づく表面微細構造変化を局所的に制御した世界初の例である。

今後、今回見出されたスイッチング挙動を大面積に拡張し、広域的な性質を調査し、制御することで新しいマイクロメカニクス技術要素として展開を試みる。またこのスイッチング挙動を用い、液体のマイクロ流路のスイッチングデバイスへの応用を目指す。

(2) 副成果

表面の硬い膜を高分子レジンなどで形成した表面膜についてその皺構造評価と構造制御を行った。

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 8 件)

[国際誌 査読有り 筆頭]

- ① T. Ohzono, "Hysteresis in Coupled Arrays of Bistable Microwrinkles" **Appl. Phys. Express** 1 (2008) 065002
- ② T. Ohzono, H. Watanabe, R. Vendamme, C. Kamaga, T. Ishihara, T. Kunitake, M. Shimomura, "Spatial

Forcing of Self-organized Microwrinkles by Periodic Nanopatterns" **Advanced Materials**, 19, 3229 **2007**.

- ③ T. Ohzono, M. Shimomura, "Defect-mediated stripe reordering in wrinkles upon gradual changes in compression direction", **Physical Review E**, vol.73,pp.040601-(1-4) (Rapid Comm.), 2006
- ④ T. Ohzono, M. Shimomura, "微小な皺(リソグラフィー)パターンによる熱的・力学的擾動下の記憶と塑性" **Bussei Kenkyu** (物性研究, 京大基研) 88, 328-334 **2007**.

[国際誌 査読有り 非筆頭]

- ⑤ H. Watanabe, E. Muto, T. Ohzono, A. Nakao and T. Kunitake **J. Mater. Chem.**, 19, 2425-2431 (2009)
- ⑥ H. Watanabe, T. Ohzono, T. Kunitake, "Fabrication of Large Nanomembranes by Radical Polymerization of Multifunctional Acrylate Monomers", **Polymer Journal**, (2008) 40 379-382.
- ⑦ H. Watanabe, T. Ohzono, T. Kunitake, "Fabrication of large, robust nanomembranes from diverse, cross-linked polymeric materials", **Macromolecules** (2007) 40 1369-1371.
- ⑧ R. Vendamme, T. Ohzono, A. Nakao, M. Shimomura, T. Kunitake "Synthesis and micromechanical properties of flexible, self-supporting polymer-SiO₂ Nanofilms" **Langmuir** **23**, (2007) 2792-2799.

[学会発表] (計 10 件)

- ① マイクロリソグラフィーと人工パターンの融

合, 大園 拓哉, 第 18 回非線形反応と協同現象研究会, 同志社大学, 2009/01/10

- ② マイクロリソグラフィーパターンの局所スイッチング, 大園 拓哉, 物理学会, 岩手大学, 2008/09/22
- ③ Spatial forcing of microwrinkle patterns, 大園 拓哉, (依頼), アメリカ化学会年会, New Orleans, US, 2008/04/08
- ④ Microwrinkles under mechanical perturbations, 大園 拓哉, (依頼), アメリカ化学会年会, New Orleans, US, 2008/04/09
- ⑤ マイクロリソグラフィーパターンのトポロジカル欠陥, 大園 拓哉, 第 63 回日本物理学会, 近畿大学, 2008/03/25
- ⑥ 外場下のマイクロリソグラフィー, 大園 拓哉, (招待), 自己組織化討論会, 千葉 生命の森, 2008/01/13
- ⑦ マイクロリソグラフィーパターンの位相欠陥, 大園 拓哉, 第 17 回非線形反応と協同現象, 千葉大, 2008/01/12
- ⑧ マイクロリソグラフィーパターンの形成と記憶, 大園 拓哉, 塑性の物理, 鳥取, 2007/12/19
- ⑨ 自発形成マイクロリソグラフィーのパターン強制, 大園 拓哉, 日本物理学会, 札幌 (北大), 2007/09/24
- ⑩ 自発形成する微小な皺の構造制御, 大園 拓哉, 高分子学会 56 回年次大会, 京都国際会議場, 2007/05/30

[図書] (計 2 件)

- ① 大園拓哉「自発形成した微小皺構造 “マイクロリソグラフィー” の外部応力への非線形応答」、(章分担)、自己組織化ハンドブック 印刷中, **2009**.
- ② (1 chapter in a Book: to be appear in 2007), T. Ohzono, "Nonlinear behaviors

of microwrinkles under compression”, in
Colloid and Surface Research, Ed.
Frank Columbus, Nova Science
Publishers, Inc. US.

〔産業財産権〕

○出願状況（計 1 件）

名称：微小形状スイッチアレイ

発明者：大園 拓哉

権利者：産業技術総合研究所

種類：特許

番号：特願 2008-133741

出願年月日：2008/05/22

国内外の別：国内

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大園 拓哉 (OHZONO TAKUYA)

独立行政法人産業技術総合研究所・ナノテ
クノロジー研究部門・研究員

研究者番号：43044030

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし