

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月15日現在

機関番号：82626  
 研究種目：若手研究（B）  
 研究期間：2010～2011  
 課題番号：22750138  
 研究課題名（和文）自己組織化マイクロリンクルにおける欠陥構造の時空間制御  
 研究課題名（英文）Control of topological defects in self-organized microwrinkles  
 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・ナノシステム研究部門・研究グループ長  
 研究者番号：40344030

研究成果の概要（和文）：自己組織化マイクロリンクルにおけるストライプパターンに発生する欠陥構造を画像解析する手法を確立し、静的な迷路状パターンに適用した結果、マイクロリンクルに特徴的なストライプ方向の相関を明らかにした。またストライプパターンに時間変化する外部歪みを加える装置を開発し、欠陥構造の時空間挙動を調査できる状況に至った。

研究成果の概要（英文）：The method to analyze the stripe patterns formed on the self-organized microwrinkles was established and applied to the static patterns. As a result, a characteristic spatial correlation between the stripe orientations was found. Moreover, a device, with which the temporal strain can be exerted to the sample, was developed. The experimental setup enable us investigate the spatio-temporal dynamics of the defect structures in the wrinkle stripe patterns.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	600,000	180,000	780,000
2011年度	2,600,000	780,000	3,380,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：複合化学・機能物質化学

キーワード：表面・界面、表面可変微細構造、メカニカル自己組織化

1. 研究開始当初の背景

学術背景；全体構想：自己組織化過程への期待と動かせる微小凹凸構造（リンクル）の発見

近年、時空間を考えた自己組織化現象と、その結果の構造やパターンを機能材料へ利用する期待と要求が、その省エネルギー性や

特異機能性により高まっている（山口智彦、自己組織化再考—自己集合と散逸構造の統

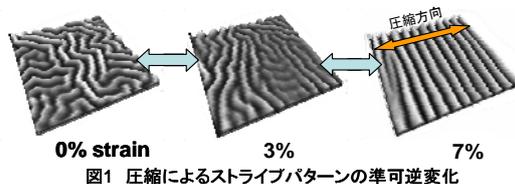


図1 圧縮によるストライプパターンの準可逆変化

合的な理解へ向けて 化学と工業、 154 1363 (2001))。その一例として、柔らかい基板に密着した数十ナノメートル程度の厚みの薄膜が、側方圧縮歪みを受けて曲がることで空間周期 $\lambda$ のそろった表面凹凸であるリンクル (図1、皺:しわ) が最近研究され始めた。シリコン弾性体の場合、薄膜作製条件により $\lambda$ は約0.1-50 $\mu\text{m}$ で制御が可能である。この表面構造は、異方的力学材料、マイクロ流路、光学材料、液晶配向膜、生体組織培養機材などへの応用が期待される。世界的には、そのリンクル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 (Bowden, et. al Nature 1998) が研究されるに留まる。

対して私の研究では、そのリンクルパターンの動的特性に注目した調査をしていた。最近、応力を加えることで、そのリンクルパターンが様々な非線形応答をする (上図, Ohzono, Shimomura, Phys. Rev. B 69 132202 [2004]) ことを見出したが、メカニズムなど詳細は未解明であった。そこで、この“動かせる微小構造”の動的特性を制御することで、上記の静的な応用に時間的な因子を加え、微小スケールでの可動構造体などの

全く新しい時空間材料への展開を目指した。技術シーズとしての高い可能性にも関わらずリンクルの研究自体が世界的に少ない上に、国内での研究は殆ど無いため研究の進展が必要という状況であった。

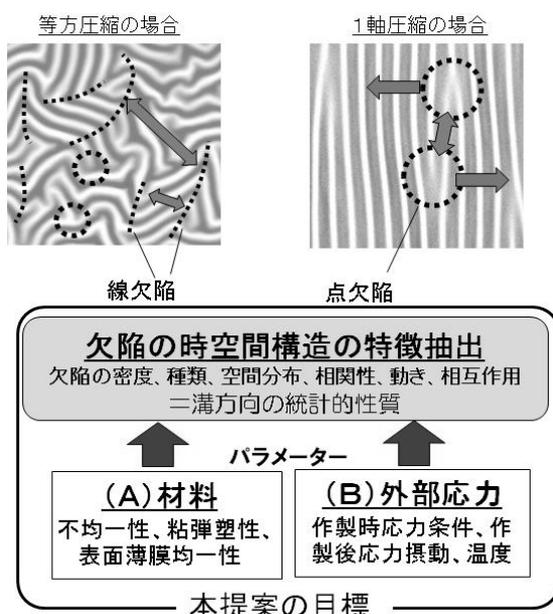
## 2. 研究の目的

上記の全体構想のもと、本研究の目標は、リンクルパターンの欠陥の時空間構造 (=溝方向の統計的性質) の (A) 材料性質への依存性、(B) 動的な外部応力変化への応答を調査し、欠陥発生機構の解明とその欠陥の高次構造の時空間制御である。

この課題提起理由は、リンクルストライプパターンの統計的性質が殆ど知られていないためである。例えば、図1のような等方的な応力下で発生したパターンは様々な方向をもつストライプドメインがモザイク状に並び、その境界はトポロジカル欠陥である。また、上図右のように比較的一方向に揃ったパターンでも周期の乱れたトポロジカル欠陥が多く存在している。このようにリンクルパターンは、方向の揃ったドメインと力学エネルギーの集中した不安定なはずのトポロジカル欠陥から構成されている。しかし、その欠陥の密度、欠陥の種類 (点欠陥、線欠陥など)、空間相関性、材料や作成方法への依存性は不明なため、本研究で解明する。さらに、外部応力によりこれら欠陥の運動や生成消滅過程を調査することで、その発生機構を明らかにし、欠陥の時空間制御を試みる。特に、無欠陥構造が達成できれば応用へのインパクトは大きい。

## 3. 研究の方法

本研究では、自己組織化マイクロリンクルの2次元ストライプパターンにおけるトポロジカル欠陥の時空間的な配置を観察し、そ



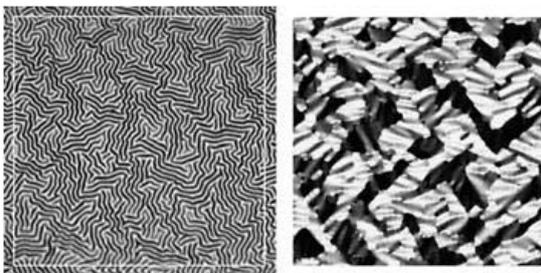
の制御可能性を探る。

具体的には、顕微鏡観察とそれに引き続く画像解析により時空間挙動を抽出する。また、外部応力印加時の欠陥のダイナミクスを同様に解析し特徴を調査する。マイクロリンクルの表面薄膜材料を金属、ポリマーなどに変化させ、粘弾塑性と上記の欠陥構造特性との相関を見ることで、欠陥の発生のメカニズムを探求する。その後、材料の選択、応力のかけ方を最適化することで欠陥密度やダイナミクスの制御を試みる。シミュレーションを併用することで理解を深めた。

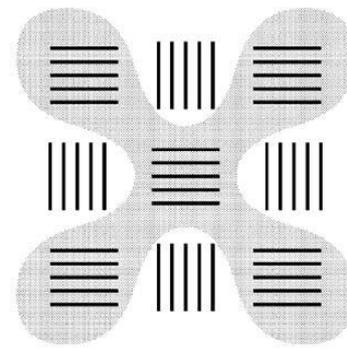
#### 4. 研究成果

##### (1) 等方圧縮下の迷路状パターン解析

まず等方的な平面圧縮場における複雑な迷路状の欠陥構造をそのストライプパターンの統計的性質を調べた。まず円筒状のシリコーンゴム基板を用意し、その円形の平滑表面に対して金属薄膜を蒸着により形成する。この表面に等方圧縮を加えるために、光彩紋り機構に基づいた等方圧縮装置を作製する(下図)。その後圧縮を加えることで迷路状の周期  $1 \mu$  程度のマイクロリンクル表面を得る。このパターンを光学顕微鏡にて観察し、電子画像を計算機に取り込み、解析を行う。解析はストライプ方向の空間相関について行った。(上図右は方向を明度で表示) その結果、ストライプ方向はそのストライプの向



きに対して  $45^\circ$  方向に対して優位は空間相関があることが見出された(下図)。この結果は、共同研究者(内田就也氏、東北大)の



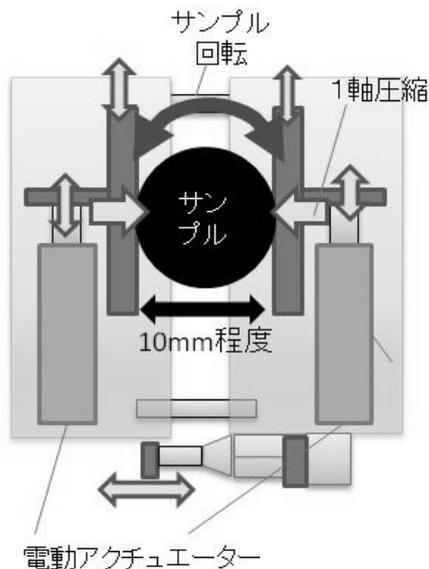
理論解析およびシミュレーションによっても得られ、数あるストライプ構造でもこのマイ

クロリンクルの系に特徴的な結果であることが解かり、共同研究者とともに論文で発表した。この結果はすなわち、欠陥構造についても関連して同様な方向相関性があることの証拠であるが、その欠陥についての解析(密度、欠陥の種類、欠陥の異方性極性、空間相関性など)は引き続き調査中であり、特徴を上手く抽出する評価法を検討中である。

##### (2) 欠陥構造の動的性質の調査

成果：上記で確立された欠陥構造のパターン解析法によって欠陥の動的挙動についても調査することが最終目的であったが、そのための実験装置をデザイン、作製することまで達成できた。

まず円筒状のシリコーンゴム基板を用意し、その円形の平滑表面に対して金属薄膜を蒸着により形成する。この表面に一軸圧縮応力を加えると、方向が揃った凹凸構造が発生する。その圧縮状態でその試料を回転させることで、実質的に1軸圧縮方向を回転させることができ、この時の欠陥挙動に注目する。この挙動を顕微鏡観察するために、観測点をできるだけ定点固定する必要がある。これを可能にするために、1軸圧縮を手動で行い歪みを固定したうえで、両側で挟んだ板を逆位相で移動することが必要であり、このための装置のデザイン(下図)を行い、作製に至った。



この結果動的な欠陥の運動等を観測できることが確認されたが、その本格的な解析（欠陥密度、欠陥の種類、欠陥の異方性極性、空間相関性など）は現在継続中である。

### (3)まとめ

本研究では動的な欠陥挙動を解析し背景に有る原理を解明に迫ることで、欠陥の状態の動的制御に向けた初期検討が行えた。今後、この変形可能な微細凹凸構造の動的応用（凹凸構造変化に誘起される機能スイッチング等）に対する要素技術に向けて重要な基礎を提供できる研究成果である。

## 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3件）

- ① 大園拓哉、物部浩達、Microwrinkles: Shape-tunability and applications、Journal of Colloid and Interface Science、368、査読有、2012、1-8  
DOI:10.1016/j.jcis.2011.11.075

- ② 大園拓哉、動かせる微細なシワ・マイクロ

リンクルとその応用、表面技術 62、査読有、2011、104-108

- ③ 内田就也、大園拓哉、Orientational ordering of buckling-induced microwrinkles on soft substrates、Soft Matter、6、査読有、2010、5729-5735  
DOI: 10.1039/C0SM00357C

〔学会発表〕（計2件）

- ① 大園拓哉、自己組織化マイクロリンクルと応用、日本化学会 第92回春季大会、2012/3/26、神奈川県、慶応大学（日吉キャンパス）
- ② 大園拓哉、物部 浩達、清水 洋、可動な微細なシワ：マイクロリンクルとその応用、高分子討論会、2010/11/16、北海道大学

## 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・ナノシステム研究部門・研究グループ長

研究者番号：40344030