



濡れ性パターンを用いた微粒子の自己整列(第1報)*

—手法の提案と整列条件の検討—

諸 貫 信 行** 小 木 曾 淳 一*** 金 子 新**

Self-Assembly of Fine Particles using Patterned Wettability
- Proposal of Assembling Method and Consideration of Conditions for Assembly -

Nobuyuki MORONUKI, Jun-ichi KOGISO and Arata KANEKO

This paper proposes a technique to assemble fine particles combining the continuous-convective-method and patterned wettability. A substrate patterned with hydrophilic or hydrophobic region is drawn-up from suspension that contains particles at specific angle. At the boundary of air/suspension, the particles arrange themselves selectively on hydrophilic region as the evaporation of water. Firstly, we discuss the method of wettability patterning. Line-and-space patterns that consist of PTFE/SiO₂ and OTS/SiO₂ were prepared. Then, the relationship between the contact angle of each region and trapping force of suspension was discussed. Secondary, design guideline is discussed where the condition to full-up the particles only in hydrophilic region is focused. It was found that the width and spacing of hydrophilic region should be designed to keep sufficient supply of particles.

Key words: patterned wettability, contact angle, self-assembly, fine particles

1. 緒 言

粒径ナノメートルオーダーの微粒子を精度よく整列させると、光の回折を利用した発色¹⁾、マイクロレンズ²⁾、フォトニック結晶³⁾などといった幅広い応用が期待できるため、大面積、高精度かつ所望の位置への整列技術が望まれている。従来試みられた方法として、レーザトラッピングやSPMマニピュレーションがある⁴⁾。これらは自由度の高い操作が可能ではあるものの、微粒子1個ずつを逐次的に扱うため、効率に制約がある。

微粒子を一括で整列させる方法として、電場あるいは磁場を用いた泳動法⁵⁾があるが、単層での整列は一般的に難しい。化学結合法⁶⁾によると微粒子を強固に固定化できるものの、微粒子と基板の組合せが限定される。微粒子を含む懸濁液を型に流し込むマイクロモールド法⁷⁾によれば多層や単層など自由な整列が可能ではあるが、パターンの微小化とともに流れの制御が難しくなる。Langmuir-Blodgett(LB)法を応用して微粒子を整列させる試みもあるが⁸⁾、整列位置の制御は必ずしも容易ではない。懸濁液から基板を上げる移流集積法¹⁰⁾¹¹⁾も同様に効率の良い整列が可能ではあるものの、位置の制御が難しい。

これを解決するために移流集積法に表面形状を利用して選択的配置¹²⁾を試みた例があるが、基板の幾何形状を崩さずに整列をする方が好ましい応用も考えられる。表面処理によって基板に親水部と疎水部を選択配置すれば、親水部のみに微粒子を整列できると考えられる。このような濡れ性パターンは、疎水材のコーティング、微細周期構造(テクスチャ)の付与¹³⁾、あるいは電気濡れ¹⁴⁾などによって実現できる。しかし、これまでこれらの手法の選定指針や適用範囲などは必ずしも明らかにされていない。

そこで本研究では、移流集積法に図1(a)に示すような疎水部と親水部で構成される「濡れ性パターン」を適用し、微粒子を

含む懸濁液を親水部に捕捉する(図1(b))ことで微粒子を所望の位置に自己組織的に整列させる(図1(c))手法を提案し、整列可能な最小幅や親水部への微粒子充填率といった整列性能に影響を及ぼす因子を調べ、その条件選択指針を検討する。

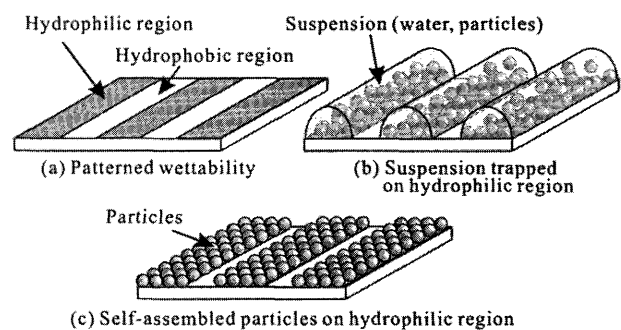


Fig.1 Concept of self-assembly of particles along patterned wettability

2. 濡れ性パターンの作製

親水部と疎水部の接触角が大きく異なるパターンを得るため、本研究では四フッ化エチレン(PTFE)とSiO₂をそれぞれ疎水材と親水材とするPTFE/SiO₂濡れ性パターンと、さらに強い疎水性が期待されるオクタデシルトリクロロシラン(OTS)とSiO₂をそれぞれ疎水材と親水材とするOTS/SiO₂濡れ性パターンを用意した。

PTFE/SiO₂の濡れ性パターンは、フォトリソグラフィとリフトオフを組合せた方法で作製した。すなわち、酸化膜付きシリコン基板にレジストを塗布し、所望のパターンを露光する。この上にPTFEをスパッタ付着し、レジストの現像を行うことで、レジストをPTFEごと部分的に除去して酸化膜を露出させ、他の部分にはPTFEを残すことでパターンを作製した。

OTS/SiO₂の濡れ性パターンは、図2に示す方法で作製した。すなわち、グローブボックス中でシリコン基板を酸化後¹⁵⁾、無水トルエンを溶媒とするOTS溶液に乾燥雰囲気中で浸漬するこ

* 原稿受付 平成17年11月29日

** 正会員 首都大学東京(八王子市南大沢1-1)

*** オリパス(株)(八王子市石川町2951)(元 東京都立大学大学院)

濡れ性パターンを用いた微粒子の自己整列 (第1報)

とでOTSの自己組織単分子膜 (SAM) を作製¹⁶⁾した後、電子線描画装置を用いた電子線照射¹⁷⁾によって不要部分のみ除去を行い、パターンを作製した。

PTFE/SiO₂パターンのPTFE部とSiO₂部の水に対する接触角はそれぞれ104度と5度未満であった。OTS/SiO₂パターンのOTS部とSiO₂部の接触角はそれぞれ108度と33.5度であった。同じSiO₂でも、OTS/SiO₂パターンのSiO₂部の接触角はPTFE/SiO₂パターンのそれより大きな値となった。この理由として、電子線照射によるOTS除去が十分ではなかったことが考えられる。作製したパターンは、整列プロセスを連続的なものとするためにライン・アンド・スペースとし、種々の応用を考えてその親水部幅は極力小さくした。その寸法仕様等を表1にまとめて示す。

また、作製したパターンのAFM観察結果を図3に示す。疎水部は一律な高さを持っていることがわかり、濡れ性境界部分の段差はPTFE/SiO₂濡れ性パターンで10nm、OTS/SiO₂濡れ性パターンで1.4nmであった。後の引き上げ実験に使用した微粒子の粒径(表2)に比べ、この段差は十分に小さい。よって、幾何形状の影響を無視し、表面の濡れ性の影響のみを議論することができると思われる。

3. 微粒子供給方法の検討

3.1 微粒子供給法の選択

懸濁液中の微粒子を自己整列させる代表的手法として滴下法と移流集積法がある。両者とも懸濁液が乾燥する際の微粒子間に作用する液架橋力により、微粒子を自己整列させる手法である。滴下法では図4に示すように懸濁液が表面張力により疎水部から親水部に引き寄せられて濡れ広がり、乾燥とともに微粒子は親水部に整列する。移流集積法の原理は後述するが、懸濁液中から基板を傾けて引上げるものである。両手法の特徴は以下のように整理できる。

- 滴下法 : 実験が容易
- 移流集積法 : 大面積での整列に向く
単層での整列が可能

なお、両手法とも濡れ性パターンへの整列を試みた例はなく、整列メカニズムは十分には解明されていない。

3.2 滴下法による試み

簡便な手法である滴下法により粒径1μm微粒子の整列を試みた結果を図5に示す。以降の実験では表2に示すような市販の標準微粒子懸濁液をそのまま使い、メカニズム解明に資するため2種類の粒径を用意した。疎水部と親水部に2分されたPTFE/SiO₂濡れ性パターンを基板に用いた。微粒子は濡れ性の境界に沿って親水部側に単層で自己整列した(図5左)。境界部の微粒子列の真直度を、仮想直線からの微粒子中心位置の逸脱量の標準偏差で評価したところ、 $\sigma=0.02\mu\text{m}$ と良好であった(図5右)。しかし、境界部から離れると微粒子は多層となり、整列が乱れていた(図5左上方)。また、ラインアンドスペース状のパターン(PTFE幅10μm, SiO₂幅5μm)へ整列させると、同一基板での微粒子の充填率(微粒子が親水部を占める割合)が一定でなく、パターン形状が確認できないほど多くの微粒子が充填された個所もあった。

以上より、滴下法は簡便で濡れ性境界への整列精度には優れているものの、単層に整列する部分が制限される他、微細パターンへの整列には適用困難であることがわかった。そこで、以降では移流集積法を用いることとする。

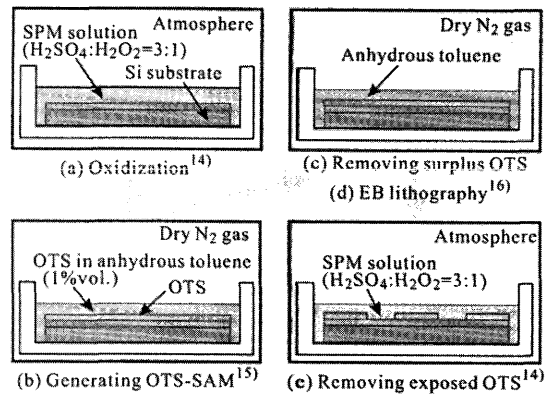


Fig.2 Preparation of OTS-SAM

Table 1 Specifications of patterned wettability

PTFE/SiO ₂ pattern	Pitch	12μm	
	Width of hydrophobic region	4μm	
OTS/SiO ₂ pattern	Pitch	10-100μm	
	Width of hydrophobic region	1-90μm	
	Ratio of hydrophilic area	10-90%	
Contact angle on each area	Hydrophilic	SiO ₂	<33.5 deg.
	Hydrophobic	PTFE	104 deg.
		OTS	108 deg.

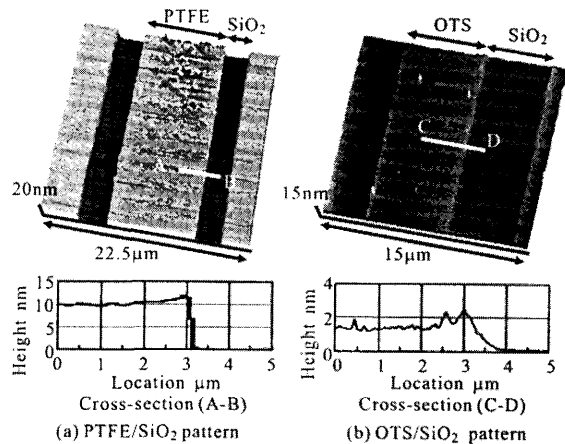


Fig.3 AFM images of patterned wettability and its cross section

Table 2 Specifications of suspension

Particle	Material	Polystyrene
	Diameter	404±5.9(σ)nm
	Content	0.993±0.010(σ)μm
Medium of suspension		Pure water

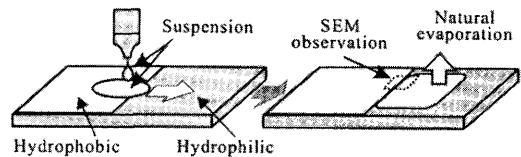


Fig.4 Schematic illustration of suspension drop method

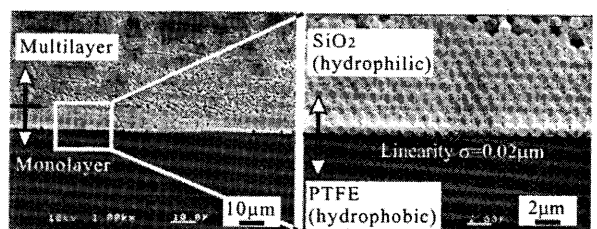


Fig.5 SEM images of the assembled particles near pattern boundary

4. 移流集積法による微粒子の整列

4.1 原理と実験方法

図6に移流集積法と濡れ性パターンの関係を示す。傾けて引上げられる基板の親水部では同図(a)に示すように懸濁液が基板に引き付けられ、ここに引き寄せられた微粒子が親水部に付着し、乾燥時に作用する微粒子間の液架橋力により自己整列すると考えられる。一方、疎水部では同図(b)に示すように懸濁液は基板から離れようとするため、微粒子はこの部分には整列しにくくなり、親水部に選択的に微粒子を自己整列させることができると思われる。

実験は図7に示すような装置で行った。基板の引上げ方向はラインアンドスペース・パターンに平行とした。十分にゆっくりとした速度で引上げるためにインチワームモータ駆動によるリニアステージを用いた。引上げ角度は機構全体を傾けることで設定した。湿度や振動が結果に影響しないよう、恒温恒湿クリーンルーム(20±0.5°C, 50±10%RH, クラス10000)内の防振台上で実験を行った。

4.2 濡れ性パターンを用いた場合の問題点

基板上的懸濁液は、濡れ性パターンの影響を受けて複雑な力を受ける。図1(b)のような二次的な液滴形状を想定し、図8に示すような濡れ性境界をまたぐ液滴に作用する力の釣り合いを考えると、Youngの式を適用して次式が成り立つ。

$$\gamma_{SV2} + \gamma_{SL1} = \gamma_{SV1} + \gamma_{SL2} + \gamma_{LV} (\cos \theta_2 - \cos \theta_1) \quad (1)$$

ただし、 γ_{SV} は固気界面張力、 γ_{SL} は固液界面張力、 γ_{LV} は液気界面張力、 θ は接触角をそれぞれ表し、数字の添字1と2はそれぞれ疎水部、親水部の場合を意味する。式(1)の力が大きいほど、懸濁液が疎水部から親水部に向かって移動しようとする力も大きくなると考えられる。親水部と疎水部では表面材質によって固液界面張力の大きさが異なるため、一般性を持って式(1)の大小関係を議論することは難しい。しかし、右辺第3項は各部の接触角で決まり、この項が大きいほど親水部へ捕捉されやすいことになり、これをパラメータ α と定義し、後で議論する。

$$\alpha = \cos \theta_2 - \cos \theta_1 \quad (2)$$

図9は、親水部・疎水部を等間隔に設けたPTFE/SiO₂濡れ性パターンを水平に置き、水滴の濡れ広がりを観察した結果を示す。これは基板を懸濁液から引上げる際の固液界面形状と類似であり、これを参考に微粒子整列時の問題を議論する。上方の破線で示した「見かけの接触角」は、三次元的に濡れ広がった「ひだ」の部分を見無視して水滴の全体形状から計算した「みかけの接触角」で、ここでは親水部と疎水部の幅を同じにしたためパターン幅によらず約76度でほぼ一定であり、親水部と疎水部それぞれ単独の場合の接触角の中間的な値となった。しかし、親水パターンひだ部の局所的な接触角(パターンと平行に測定)は、パターン幅の減少とともに大きくなることわかった。

親水部の接触角が大きくなった場合の整列への影響を図10に示す。接触角が小さい場合は、水の表面張力の合力が微粒子を基板に押し付けるように作用する。しかし、接触角が大きくなると、合力のうちの微粒子を懸濁液に押し戻すような成分が強くなる。よって、接触角はできるだけ小さい方が整列させやすいと考えられる。同図には粒径の影響についても示しており、粒径が小さい方が基板の高くまで引上げられ、さらに表面張力も基板に固定化するように作用する。一方、粒径が大きい場合は基板への引上げ高さも限られ、表面張力による固定化の作用も弱いことがわかる。よって、整列を行うためには親水部

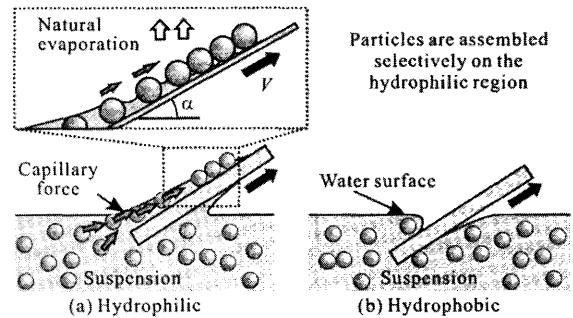


Fig.6 Schematic illustration of continuous convective method

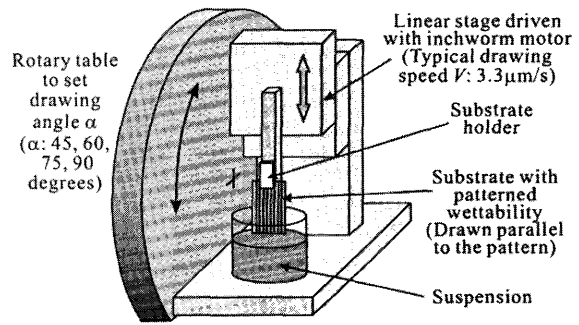


Fig.7 Experimental setup

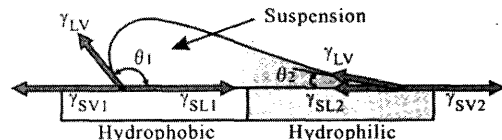


Fig.8 Forces acting on suspension at the boundary

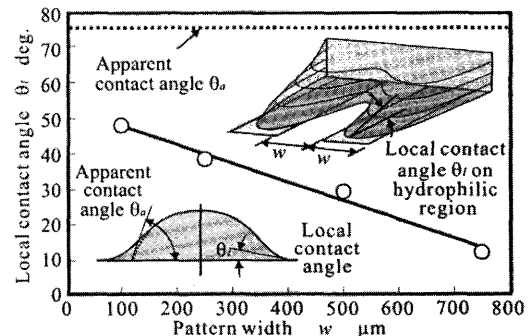


Fig.9 Effect of pattern width on local contact angle

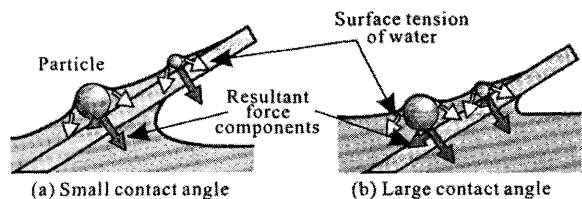


Fig.10 Profile of water boundary and force that acts on a particle

の接触角は小さい方が望ましく、粒径は小さい方が望ましいことがわかり、また図9の結果を考慮すると、整列可能な親水部幅には下限があることが予想される。

なお、以降でいう「整列」とは微粒子が1列でも親水パターンに沿って整列し、複数のパターンをまたがっていない状態を指す。図11にその例を示し、親水部、疎水部それぞれ幅6μmのパターン上に、同図左側では途切れた部分があるものの整列が行われた。しかし同図右側の条件では部分的に微粒子が捕捉されたものの、必ずしもパターンには沿っていない。これら2者の条件の違いは図中に示した引上げ条件の違いによるものであ

濡れ性パターンを用いた微粒子の自己整列 (第1報)

り、後述するように引上げ角度を小さく、また、引上げ速度を遅くする方が、より多くの微粒子が並ぶ傾向にある。所望の位置への微粒子整列を考えた場合、整列可能な最小幅は小さい方が望ましく、これも整列の評価尺度のひとつと考える。

4.3 濡れ性パターンの接触角の影響

粒径 $1\mu\text{m}$ の微粒子を用い、濡れ性パターンの接触角が整列可能な最小幅に及ぼす影響を調べた結果を図12に示す。同図(a)はPTFE/SiO₂濡れ性パターンの結果であり、図11と同じ仕様のパターンを用い、引上げ角度60度、引上げ速度 $5\mu\text{m/s}$ と条件を変えることで、整列幅がほぼ一様の整列が行えた。整列幅は約 $4\mu\text{m}$ であり、親水部幅 $6\mu\text{m}$ よりも小さくなったが、最密構造をとるように微粒子が整列している様子が良くわかる。また、同図(b)はOTS/SiO₂濡れ性パターンの結果を示す。この場合、実験条件を調整しても幅 $35\mu\text{m}$ の親水部の $18\mu\text{m}$ 程しか整列しなかったが、やはり最密構造の整列が可能であった。

PTFE/SiO₂濡れ性パターンとOTS/SiO₂濡れ性パターンのパラメータ a (式(2))を計算してみると、それぞれ1.24と1.14であった(表3)。OTSは強い疎水性を持つものの、親水性のSiO₂部の接触角が大きかったため、OTS/SiO₂パターンが懸濁液を親水部に捕捉する力はPTFE/SiO₂パターンのそれより小さくなり、前述のように親水部の局所的接触角が大きくなり、結果的にPTFE/SiO₂パターンでの整列可能な最小幅の方が狭くなったと考えられる。パラメータ a は重要な指針のひとつと考えられるが、一般的な条件を示すためにはさらに条件を変えた実験が必要である。

なお、濡れ性パターンを適用した移流集積法で微粒子を単層整列させることは確認できたものの、図のような狭い評価範囲では境界部の真直度は滴下法ほどは良くなかった。今後、さらに広範囲にわたる評価も必要である。

4.4 微粒子直径の影響

粒径 400nm および $1\mu\text{m}$ の微粒子を用い、整列可能な最小幅に及ぼす粒径の影響を調べた結果を図13に示す。実験にはOTS/SiO₂濡れ性パターンを用い、観察にはSEMあるいはレーザー顕微鏡を用いた。なお、引上げ条件は30度、 $5\mu\text{m/s}$ を標準とした。

粒径 400nm の場合の結果を同図左側に示す。親水部幅が $25, 10\mu\text{m}$ の場合には整列したものの幅 $5\mu\text{m}$ の場合には整列せず、わずかの微粒子が見られるだけであった。幅 $5\mu\text{m}$ の例では、後述するように引上げ角度を小さくして微粒子の供給を多くしても整列しなかった。幅 $25\mu\text{m}$ の例では、引上げ角度、速度ともに小さくしたため微粒子が多く供給され、単層ではなく多層で並んだ部分(より白い部分)が多く見られる。

一方、粒径 $1\mu\text{m}$ では(同図右側)、親水部幅 $50, 35\mu\text{m}$ の場合には整列したものの幅 $32\mu\text{m}$ の場合には整列せず、一部に微粒子が見られるだけであった。この例でも幅 $50\mu\text{m}$ の例で引上げ角度を小さくしたところ、多層に並んだ部分がみられた。

これらの結果は図9および10に関連した考察で述べたことと良く対応しており、親水部幅が広い場合には懸濁液が引上げられる高さが高く、水の乾燥に伴って表面張力は微粒子を基板に固定化するように作用する。一方、親水部幅が狭くなると引上げられる高さが低くなり、局所的な接触角が大きいため、表面張力は微粒子を懸濁液に戻そうとする成分が大きくなり、微粒子は整列しにくくなる考えられる。小さい微粒子は高い位置まで到達するのにに対し、大きいものは低い位置、すなわち接触角が大きい部分に留まる。従って、親水部幅が狭いほど、また、粒径が大きいほど微粒子は整列しにくくなることになる。

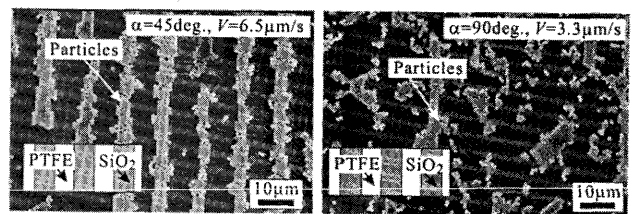


Fig.11 Assembled case (left) and not assembled case (right)

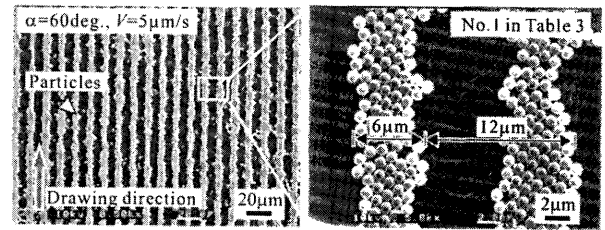
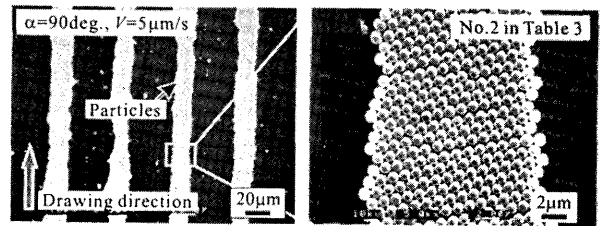
(a) PTFE/SiO₂ patterned wettability(b) OTS/SiO₂ patterned wettability

Fig.12 SEM images of assembled particles on patterned wettability

Table 3 Calculated coefficient a

Pattern	θ_1	θ_2	Parameter a
PTFE/SiO ₂	104	0	1.24
OTS/SiO ₂	108	33.5	1.14

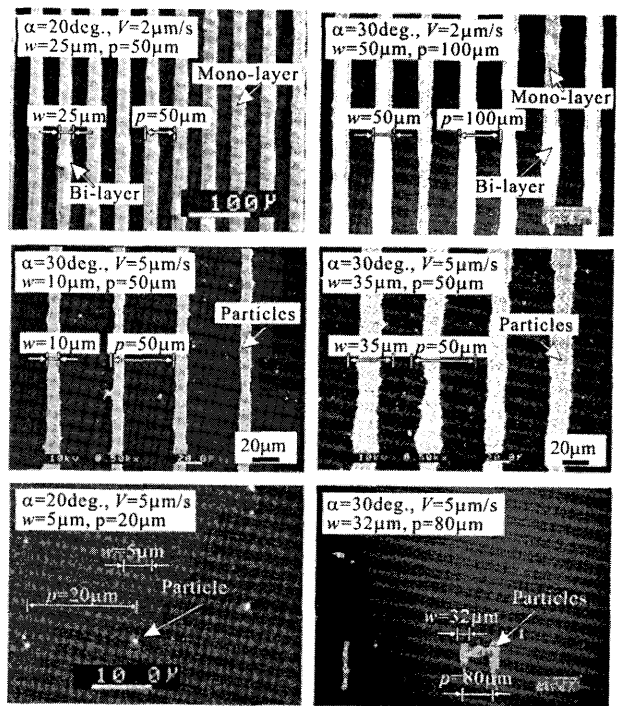


Fig.13 Effect of conditions on the minimum width of assembly

4.5 引上げ角度の影響

PTFE/SiO₂濡れ性パターンを用い、粒径 $1\mu\text{m}$ 、引上げ速度 $3.3\mu\text{m/s}$ という条件で引上げ角度 α の影響を調べた結果を図14に示す。縦軸はパターン全体に対する微粒子の占有面積の割合

を画像処理で求めた結果を示し、引上げ角度を減少させると微粒子の占有面積が増加し、疎水部を含めて多くの微粒子が整列した。しかし従来の研究で充填率 ε は次式で表され、引上げ速度依存性はあるものの、引上げ角度依存性はないとされる¹¹⁾。

$$\varepsilon = \frac{\beta j_c \cdot \varphi}{hV(1-\varphi)} \quad (3)$$

ここで、 β は比例定数、 h は液面上に引上げられた懸濁液部分の長さ、 j_c は乾燥速度、 φ は微粒子の水に対する体積率、 h は整列部の厚さ、 V は引上げ速度である。

濡れ性パターンを付与したことによって生じた引上げ角度依存性を図15に示すモデルにより説明する。親水部に挟まれた疎水部では微粒子が基板に付着しにくいので、その側方にある親水部に回り込み、親水部の微粒子濃度が局所的に上昇すると考えられる。従って、式(3)の φ が増加することで微粒子の供給量が増して ε が大きくなったため、多くの微粒子が整列したと考えられる。この結果を踏まえると、多くの微粒子を整列させるという観点からは、疎水部幅は狭い(同図(b))よりも広い(同図(a))方が好ましいと考えられる。ただし、親水部幅によって接触角も異なってしまうため、この影響も考慮する必要がある。

4.6 パターン寸法の影響

粒径400nm、引上げ速度3.3 μ m/s、引上げ角度30度という条件で、OTS/SiO₂濡れ性パターン幅を種々変えてその影響を調べた結果を図16に示す。横軸は全面積に対する親水部の割合を示し、縦軸はパターン全体に対する微粒子の占有面積の割合を示す。図中の破線が親水部に100%充填される理想的な状況であり、破線より下側では微粒子が親水部を埋め切れなかった、すなわち微粒子供給量の不足を意味する。したがって、本実験では全条件で微粒子の供給が不足していたことがわかる。しかし、親水部の割合が小さい場合、微粒子の占有面積は理想値に近づいている。親水部の割合が少ないため、前述のように周囲にある疎水部からの十分な微粒子供給があったためと考えられる。また、同図からはピッチ p の影響を読み取ることもできるが、明確な傾向は見られなかった。

5. 結 言

濡れ性パターンを利用した微粒子整列技術を提案し、ラインアンドスペース状の濡れ性パターンを作成するとともに、移流集積法を用いて親水部に微粒子を単層で整列させるための条件を検討し、以下の指針を明らかにした。

- (1) 微粒子が整列可能な最小幅は、親水部と疎水部の接触角の違いの影響を受け、係数 a (式(2))をひとつの指針とすることができる。
- (2) 小さい微粒子の方が狭い幅に整列させることができる。
- (3) 引上げ角度は小さい方が、また、引上げ速度は遅い方が微粒子の充填率は高まる。
- (4) 親水部の幅に対して疎水部の幅を広くする方が、微粒子の充填率は高まる。

今後の課題として、パターン周辺での濡れ状態と微粒子の動きを精査し、整列のメカニズムを明らかにするとともに、引上げ条件の一般化を進める必要がある。

謝 辞

論文作成に際し、データ提供や議論で協力してくれた修士修了生の龍 健太郎君と柴田智英君に謝意を表す。

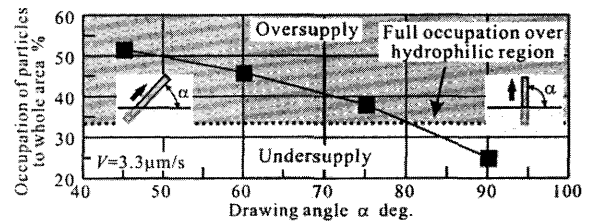


Fig.14 Effect of drawing angle on the occupation of particles

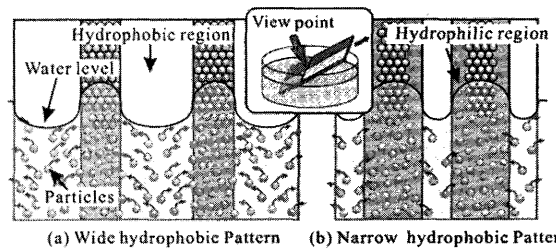


Fig.15 Supply of particles from hydrophobic region to hydrophilic region

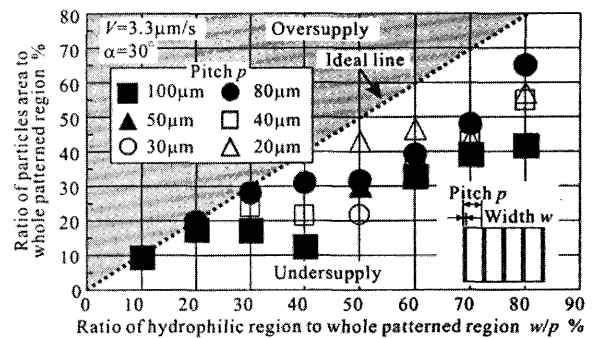


Fig.16 Effect of pattern design on occupation in hydrophilic region

参考文献

- 1) 井上宮雄, 芳賀正明: コロイド微粒子の二次元および三次元配列化とその応用, 色材, 76, 1, (2003)24.
- 2) Y. Lu, Y. Yin, Y. Xia: A Self-Assembly Approach to the fabrication of Patterned, Two-Dimensional Arrays of Microlenses of Organic Polymers, Adv. Mater., 13, 1, (2001) 34.
- 3) S. H. Im, O. O. Park: Three-dimensional self-assembly by ice crystallization, Appl. Phys. Lett., 80, 22, (2002) 4133.
- 4) 樋口俊郎: マイクロマシン技術総覧, (2003).
- 5) A. Makiya et al.: Grain oriented microstructure made in high magnetic field, Key Eng. Mater., 206-213, (2002)445.
- 6) Y. Masuda et al.: Two-Dimensional Self-Assembly of Spherical Particles Using a Liquid Mold and Its Drying Process, Langmuir, 19, 13, (2003) 5179.
- 7) E. Kim et al.: Two-Dimensional Crystallization of Polymetric Microspheres by Micromolding in Capillaries, Adv. Mater., 8, 3, (1996)245.
- 8) F. Lenzmann et al.: Chem. Mater., 6, (1994)156.
- 9) K. U. Fulda, Bernd Tiede: Langmuir Films of Monodisperse 0.5 μ m Spherical Particles with Hydrophobic Core and a Hydrophilic Shell, Adv. Mater., 6, 4, (1994) 288.
- 10) N. D. Denkov and K. Nagayama et al.: Two-dimensional crystallization, Nature, 361, 6407, (1993)26.
- 11) Antony S. Dimitrov et al.: Continuous Convective Assembling of Fine Particles into Morpho-Colored Two-Dimensional Arrays, Langmuir, 12, 5, (1996)1303.
- 12) Y.-H. Ye et al.: Self-assembly of colloidal spheres on patterned substrate, Appl. Phys. Lett., 79, 6, (2001)872.
- 13) 諸貫信行, 高山明典, 金子 新: 濡れ性制御のためのテクスチャ設計, 日本機械学会論文集 B 70, 693, (2004)1244.
- 14) T. N. Krupenkin et al.: From Rolling Ball to Complete Wetting: The Dynamic Tuning of Liquids on Nanostructured Surfaces, Langmuir, 20, 10, (2004)3824.
- 15) P. Harder, K. Bierbaum et al.: Induced orientational order in long alkyl chain aminosilane molecules by preadsorbed octadecyltrichlorosilane on hydroxylated Si(100), Langmuir, 13, 3, (1997)445.
- 16) Y. Masuda, M. Itoh et al.: Low-Dimensional Arrangement of SiO₂ Particles, Langmuir, 18, 10, (2002)4155.
- 17) M. J. Lercel et al.: Self-assembled monolayer electron-beam resists on GaAs and SiO₂, J. Vac. Sci. Technol. B, 11, 6, (1993)2823.