

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：13302

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K21061

研究課題名(和文)印刷法を用いた低電圧駆動有機トランジスタの開発とシート状感圧センサーへの応用

研究課題名(英文) Development of the printed low-voltage operation organic transistors and its application to the pressure sensor sheet

研究代表者

酒井 平祐 (Sakai, Heisuke)

北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・助教

研究者番号：30580401

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：まず予備検討として、溶液プロセスで作製した低電圧駆動有機電界効果トランジスタと感圧キャパシタを1つに統合することで、低電圧駆動感圧センサを開発した。次いで、ここで得られた知見をもとに低電圧駆動有機電界効果トランジスタに圧電性高分子をスタッキングさせ、新規構造であるDual-gateトランジスタ型感圧センサの開発に成功した。この素子は5Vの低電圧で駆動しつつ、電流値の圧力応答は2桁以上を実現した。次いで、素子のフレキシブル化に取り組んだ。同時に素子の性能の改善に取り組んだところ、3Vで圧力センサとしての駆動に成功した。

研究成果の概要(英文)：We developed a prototype of low-voltage pressure sensor by integrating an low-voltage operation organic field-effect transistor (OFET) and a sensing capacitor, which were fabricated by means of the solution process. Next, the piezoelectric polymer film was stacked onto the low-voltage OFET, and then the novel pressure sensor named Dual-gate OFET based pressure sensor was successfully fabricated. This device operated at 5 V and the change of the drain current as a function of pressure load was more than 2 order of magnitude. Then, we attempted to develop a flexible dual-gate OFET based pressure sensor. And the improvement of OFET performance was simultaneously addressed. Consequently, the pressure response of the device was successfully obtained at operation voltage of 3V.

研究分野：有機エレクトロニクス

キーワード：有機トランジスタ 有機センサ フレキシブルデバイス

1. 研究開始当初の背景

世界で1兆個のセンサーが高度な社会基盤を支える Trillion Sensors Universe という概念が近年提唱され、2013年10月に米国 Stanford 大学でキックオフイベントが開催された。ここではセンサーが生活空間やインフラのあらゆるところに配置され、人々の健康や安全を保障し、趣味や快適を手助けするために必要なキーデバイスとなる。現在指数関数的にセンサーの出荷数が増加しており、今後さらにセンサーの技術開発と応用展開が進むことで現在の年間需要の約100倍である1兆個という数は10年以内に達成されると予想されている。

一方で、シート上へ2次元的にセンサーを多数配置することで、センサーシートを作製し、面を対象物をセンシングするという社会的ニーズも高まっている。例えば、シート状の感圧センサーにより、センサー上にある対象物の動きや圧力分布の把握が可能である。未だ大面積化に向けてブレイクスルーとなるような汎用性の高い素子構造と作製法の報告例は無い。

2. 研究の目的

現在研究中のパッシブ型圧力センサーシートと溶液プロセスを用いた低電圧駆動(5V以下)の有機トランジスタに関する知見を融合し発展させることで、低電圧駆動有機トランジスタを用いたアクティブ型感圧センサーの開発に取り組む。さらに印刷法による素子の作製へ展開し、シート状に配置されたセンサーの複数同時駆動と読み取りシステムとの接続による圧力印加状況表示の実現を到達目標としている。このように「低電圧駆動」「アクティブ型」「印刷法」「シート状」という他に類を見ない特徴をもつシート状感圧センサーの基礎研究と開発を進めることが本研究の目的である。

3. 研究の方法

上述の目的を達成するために、本研究は低電圧駆動(5V以下)のアクティブ型感圧センサーの開発に取り組み、そのセンサーを用いた感圧センサーシートの実現をめざす。(1)低電圧駆動(5V以下)のアクティブ型圧力センサー素子の作製と駆動原理の解明
ここでは、低電圧駆動の有機トランジスタを開発し、アクティブ型圧力センサーとしての駆動を実現する。作製プロセスについては、適宜、ハードルの低いものを選択し、プロトタイプ素子を作製する。次いで、その駆動原理についての解明もめざす。

(2)印刷法を用いたセンサーの駆動実現と素子特性に及ぼすプロセス要因の解明

ここでは、印刷法や溶液プロセスを用いて、感圧センサーの駆動を実現する。プロセスに液体プロセスを採用することで生じる課題や問題点などを抽出し、その解決に

努める。

(3)印刷法によるシート状センサーの作製

ここでは、実験(2)で得られた知見をもとに、印刷法や溶液プロセスを用いて、感圧センサーシートの駆動実現をめざす。

(4)センサーとシステムの接続による信号のモニタ表示

上記で開発した感圧センサーシートと読み取りシステムを接続し、センサーシートからの信号を読み取り、それをPCのモニタ上で表示することをめざす。同時に、センサーとシステムの接続や仕様に関する問題点を抽出することで、今後の大面積センサーシート開発への知見を蓄積する。

4. 研究成果

(1)低電圧駆動有機電界効果トランジスタを用いたアクティブ型有機圧力センサーの開発

5Vで駆動する有機電界効果トランジスタと圧電性材料で作製した感圧部を組み合わせ、アクティブ型圧力センサーを開発した。この研究では、100Vで駆動する有機トランジスタを用いたセンサー比較用として作製し評価した(図1)。その結果、我々が作製する感圧部では低電圧駆動の有機トランジスタを用いないと圧力応答(図1での縦軸方向への変化に対応)が明確には得られないことが分かった。

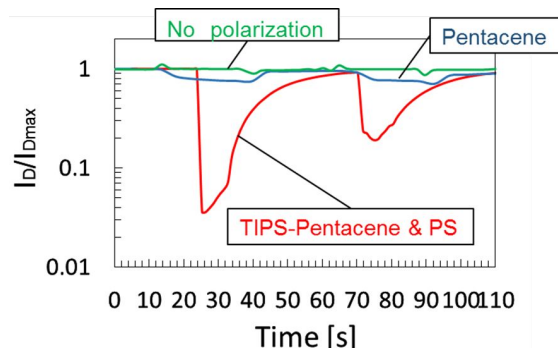


図1 圧力センサーの圧力応答。赤：低電圧駆動有機トランジスタ、青：高電圧駆動有機トランジスタ、緑：圧力応答をしない比較用の素子。

(2)新規圧力センサーの開発

上記の研究で得られた知見をもとに、新規感圧素子を開発した。この素子は5Vで駆動する低電圧駆動有機トランジスタに圧電性高分子であるP(VDF-TrFE)を感圧部として積層したものである。研究計画に則り、このセンサーは5V以下で駆動することと、溶液プロセスを用いて作製可能であることを目標として研究開発に取り組んだ。この圧力センサーの構造は本研究のオリジナルであることからDual-gateトランジスタ型感圧センサーと名付け、特許も出願した。

図2に示すとおり、素子へ圧力を印加すると印加した圧力の大きさに応じて素子の伝達特性が高電圧側（図2左方向）へシフトすることがわかった。このシフトは、素子に組み込まれている有機トランジスタの出力電流値が感圧部に加えられた圧力に応じて変わることの意味している。これは感圧部の分極の大きさが圧力印加に応じて変化していることを反映していると現段階では考察している。比較のために圧力応答をしない（圧電性を持たない）高分子を感圧部に用いたところ、図2のような圧力応答はみられなかった。これらの駆動メカニズムに関する研究は、本研究期間の終了後も引き続き進めている。図2で測定された伝達特性のシフト量と感圧部の分極量の変化を定量的に相関づけることで、メカニズムが明らかになると考えている。

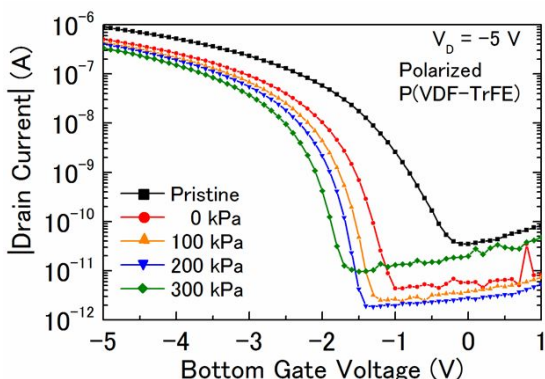


図2 Dual-gate トランジスタ型圧力センサーの圧力応答。

次いで、圧力応答の繰り返し特性を測定したところ、100 kPa ~ 300 kPa の圧力印加に応じて、センサーから出力される電流値が段階的に変化した。さらに、それらの変化は加える圧力を小さくしていくと、段階的に初期値へと戻ることがわかった。（図3）これらの電流値の対数は、圧力に対して線形的に変化することも見出した。（図3 Inset）

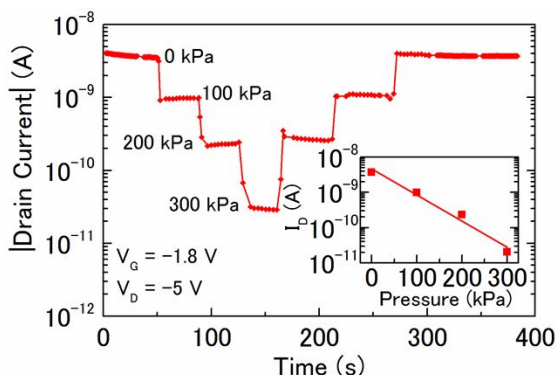


図3 Dual-gate トランジスタ型圧力センサーの圧力応答。Inset: ドレイン電流値の圧力応答

このように、5 V の低電圧で駆動しつつ、電流値の圧力応答は2桁以上を実現することに成功した。このことから、当初の目標であるアクティブ型感圧センサーの開発に成功したと言える。現在はこの素子の性能向上に向けて、有機トランジスタのさらなる低電圧駆動化と圧電性感圧層の作製プロセス改善に取り組んでいる。

(3) Dual-gate トランジスタ型圧力センサーのフレキシブル化

上記の研究活動で新たに開発された Dual-gate トランジスタ型感圧センサーはガラス基板上に作製したものであった。センサーをシート化する上で、ガラスの一枚板上にセンサーアレイを作製することは、基板のもろさや扱いづらさの面からも現実的では無い。そこで、柔軟な PEN 基板上にセンサーを作製した。

フレキシブル基板を使う上での作製プロセスの改善や有機トランジスタの作製条件と素子特性の相関から低電圧化へ向けた条件出し進めたところ、駆動電圧では3 V 以下を実現し、有機トランジスタの低電圧駆動の目安の一つであるサブスレッショルドスロープ値も 100 mV/dec 程度を安定して得られるようになった。この結果をもとに図1と同様に素子の圧力測定を測定した。（図4）

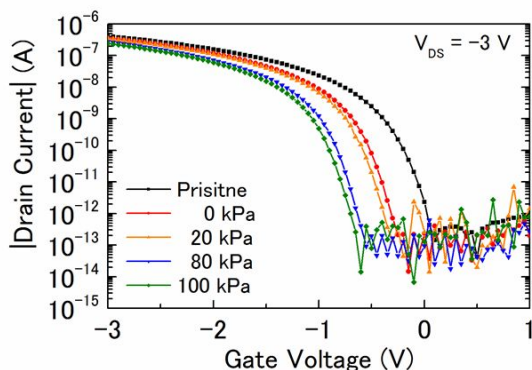


図4 フレキシブル基板を用いた Dual-gate トランジスタ型圧力センサーの圧力応答。

図2の結果と同様にフレキシブルな素子でも圧力応答がみられた。さらに、より低い圧力への応答が得られることがわかった。この高感度化のメカニズムの解明には現在取り組んでいるところである。これらには、感圧部に用いた圧電性高分子の分極配向の評価や帯電の定量的評価が必要となっており、これらの評価と素子の特性を定性的かつ定量的に結びつけることをめざしている。

(4) Dual-gate トランジスタ型圧力センサーのセンサーシート化

得られたセンサーをアレイ化しセンサー

シートの作製を目指した。ここで、センサーとシステムの接続やセンサーからのノイズの発生といった問題が発生し、予定どおりの駆動には至っていない。

現在、この原因の抑制とセンサーシートのデザインの改良を進め、センサーシートの駆動実現に向けた研究活動を進めている。

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 10 件)

1. T. Nobeshima, Y. Ishii, H. Sakai, S. Uemura, and Y. Yoshida, "Electrospun poly(methyl methacrylate) fibrous mat showing piezoelectric properties" *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol.57, 05GC06, 2018. 査読有、DOI: 10.7567/JJAP.57.05GC06
2. Y. Ishii, T. Nobeshima, H. Sakai, K. Omori, S. Uemura, and M. Fukuda, "Amorphous Electrically Actuating Submicron Fiber Waveguides" *Macromol. Mater. Eng.*, 303, 1701302, 2018. 査読有、DOI: 10.1002/mame.201700302
3. D. C. Le, S. Oyama, H. Sakai, T. Porcelli, F. Siviero, E. Maccallini, M. Urbano, and H. Murata, "Fivefold enhancement in the stability of organic light emitting diodes with the addition of non-evaporable getters pumps", *Appl. Phys. Express*, vol.10, 071601, 2017. 査読有、DOI: 10.7567/APEX.10.071601
4. T. M. Cuong, H. Sakai, Y. Kawashima, K. Ohkubo, S. Fukuzumi and H. Murata, "Multi-level non-volatile organic transistor-based memory using lithium-ion-encapsulated fullerene as a charge trapping layer", *Org. Electron.*, vol.45, pp.234-239, 2017. 査読有、DOI: 10.1016/j.orgel.2017.03.018
5. Y. Tsuji, H. Sakai, L. Feng, X. Guo and H. Murata, "Dual-gate low-voltage organic transistor for pressure sensing", *Applied Physics Express*, vol.10, 021601, 2017. 査読有、DOI: 10.7567/Apex.10.021601
6. H. Sakai, Y. Tsuji and H. Murata, "Integration of a low-voltage organic field-effect transistor and a sensing capacitor for a pressure-sensing device", *IEICE Transactions on Electronics*, vol. E100-C, pp.126-129, 2017. 査読有、DOI: 10.1587/transele.E100.C.126
7. T. M. Cuong, H. Sakai and H. Murata, "Effect of Background Pressure on The Performance of Organic Field Effect Transistors with Copper Electrodes", *IEICE Transactions on Electronics*, vol. E100-C, pp.122-125, 2017. 査読有、DOI: 10.1587/transele.E100.C.122
8. T. T. Dao, H. Sakai, H. T. Nguyen, K. Ohkubo, S. Fukuzumi and H. Murata, "Controllable Threshold Voltage in Organic Complementary Logic Circuits with an Electron-Trapping Polymer and Photoactive Gate Dielectric Layer", *ACS Applied Materials & Interfaces*, vol.8, pp.18249-18255, 2016. 査読有、DOI: 10.1021/acsami.6b03183
9. H. T. Pham, T. V. Nguyen, L. Pham-Nguyen, H. Sakai and T. T. Dao, "Design and Simulation of a 6-Bit Successive-Approximation ADC Using Modeled Organic Thin-Film Transistors", *Active and Passive Electronic Components*, vol.2016, pp.11, 2016. 査読有、DOI: 10.1155/2016/7201760
10. T. Nobeshima*, H. Sakai* (*equal contribution), Y. Ishii, S. Uemura and M. Yoshida, "Polarized FT-IR Study of Uniaxially Aligned Electrospun Poly(DL-Lactic Acid) Fiber Films", *J. Photopolym. Sci. Technol.*, vol.29, pp.353-356, 2016. 査読有、DOI: 10.1021/acsami.6b03183

[学会発表](計 43 件)

1. H. Sakai, S. Uemura, Y. Tsuji, and H. Murata, "Flexible Pressure Sensors for Pressure Distribution Monitoring", *International Intercollegiate Workshop on Advanced Materials 2017*, December, 2017 (Tainan, Taiwan)
2. H. Sakai, Y. Tsuji, T. Nobeshima, Y. Ishii, S. Uemura, and H. Murata, "Development of flexible pressure sensors for the detection of pressure distribution", *International Conference on Flexible and Printed Electronics (ICFPE2017)*, September, 2017 (Jeju, Korea) Oral
3. T. Nobeshima, Y. Ishii, H. Sakai, S. Uemura and M. Yoshida, "Electrospun Polymer Fibrous Mats Showing Piezoelectricity and Its Applications", *International Conference on Flexible and Printed Electronics (ICFPE2017)*, September, 2017 (Jeju, Korea)
4. H. Sakai, Y. Tsuji and H. Murata, "Development of a flexible dual-gate organic pressure sensor", *The biannual International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE9)*, June, 2017 (Kanazawa, Japan) Oral
5. C. M. Tran, H. Sakai, T. Murakami, H. Murata, "Write-once-read-many Multi-bit Memory Organic Field Effect Transistor using Poly(vinyl cinammate) as Charge Trapping Layer", *12th International Conference on Nano-Molecular Electronics (ICNME2016)*, December, 2016(Kobe,

- Japan) Oral
6. C. M. Tran, H. Sakai, Y. Kawashima, K. Ohkubo, S. Fukuzumi, and H. Murata, “Multi-Bit Non-Volatile Organic Transistor-Based Memory Using Lithium-Ion-Encapsulated Fullerene As a Charge Trapping Layer”, PRiME2016, 7. October, 2016(Honolulu, USA) Oral
 7. H. Sakai, Y. Tsuji, and H. Murata, “Integration of a Low-Voltage Organic Field-Effect Transistor and a Sensing Capacitor for a Pressure Sensing Device”, 9th International Symposium on Organic Molecular Electronics (ISOME2016), 19. May, 2016 (Niigata, Japan)
 8. C. M. Tran, H. Sakai, T. Murakami, and H. Murata, “Effect of Background Pressure on the Performance of Organic Field Effect Transistors with Copper Electrodes”, 9th International Symposium on Organic Molecular Electronics (ISOME2016), 19. May, 2016 (Niigata, Japan)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称：圧力センサ
発明者：酒井平祐、辻裕司、村田英幸
権利者：国立大学法人北陸先端科学技術大学院大学
種類：特許
番号：特許願 2016-111842
出願年月日：2016 年 6 月 3 日
国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

酒井 平祐 (SAKAI, Heisuke)
北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・助教
研究者番号：30580401

(2)研究分担者

該当無し

(3)連携研究者

該当無し

(4)研究協力者

該当無し