

令和 2 年 5 月 19 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14110

研究課題名（和文）有機FETを用いたフレキシブル圧力センサの開発

研究課題名（英文）Development of a flexible pressure sensor using an organic field-effect transistor

研究代表者

但木 大介（Tadaki, Daisuke）

東北大学・電気通信研究所・助教

研究者番号：30794226

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、有機電界効果トランジスタ（OFET）層と、圧電性高分子であるポリフッ化ビニリデン（PVDF）層とが一体となった、新規フレキシブル圧力センシングデバイスの開発に挑んだ。作製工程を進める中で克服すべき課題が顕在化したため、当初計画の全てを完了するまでには至らなかったものの、デバイスの実用化のために必要不可欠となる複数の基盤技術の確立に成功した。具体的には、PVDFセンサの出力特性を顕著に向上させるための新規ポーリング法を見出すとともに、単体のセンサが平面上に多数個配置された構造を有する二次元マッピングデバイスの開発に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって確立された新規ポーリング（分極処理）法および二次元圧力マッピングデバイスの作製法は、PVDFに代表される有機強誘電体材料を用いた圧力センシングデバイスの実用化を推進させるための重要な基盤技術であると言える。前者は、表面科学の研究分野に有用な知見を与えるだけでなく、低温溶液プロセスと結合可能な技術であることから、現在一般的に行われている、高温下での高電界印加を伴う高コストな方法に取って代わる画期的な方法ともなり得る。また後者は、デバイス実用化にとって非常に重要な、圧力センサの集積化のための第一歩となる基礎的な構造を有するセンサの作製技術であり、両者とも学術的・実用的意義は大きい。

研究成果の概要（英文）：In this study, we attempted to develop a novel flexible pressure sensing device that combines both layers of an organic field-effect transistor (OFET) and a polyvinylidene fluoride (PVDF), which is a piezoelectric polymer. Although our original plans were not completed due to a problem in the fabrication process, we succeeded in establishing underlying technologies that are necessary for a practical application of the device. Specifically, we found a new poling method for improvement of the output characteristics of the PVDF sensors, and successfully developed a two-dimensional mapping device in which each sensor is arranged on a plane.

研究分野：応用物性関連

キーワード：圧力センサ 有機トランジスタ 圧電性高分子 ポリフッ化ビニリデン 溶液プロセス 分極処理 表面修飾 圧力マッピング

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

1. 研究開始当初の背景

近年、溶液プロセスによって簡単に作製が可能であり、低コストで薄型・軽量かつ大面積なフレキシブル有機デバイスに関する研究が盛んに行われている。この有機デバイスを駆動させるためのアクティブ素子として、有機半導体をアクティブ層に用いた有機電界効果トランジスタ (OFET) が特に注目されており、その特性向上を目指した研究がこれまで広く行われてきた。しかし一般に、OFET の特性は、金属電極 (ソース) と有機半導体層との界面におけるキャリア注入特性に顕著に依存することが知られており、結果として、本デバイスが実用化され得るまでの水準には未だ至っていない。このたび研究代表者らは、OFET の特性向上のためには、ソース電極以外からの伝導キャリアの供給が効果的ではないかと考え、これまで形成技術の構築を行ってきた圧電性高分子材料である PVDF (ポリフッ化ビニリデン) に着目した。PVDF フィルムは、圧力が印加される際に、層内部の分極量が一時的に変化することにより層表面に電荷が誘起されるという特徴を有している。このため、本フィルムを従来の OFET 層と結合することによって、OFET 層への伝導キャリアの供給を圧力印加で補うことのできる、全く新しい動作機構を有するフレキシブル圧力センサを創成できるのではないかと考えるに至った。また、本研究で開発を目指すデバイスは、OFET と圧力センサとが一体となった構造の単一デバイスであることから、従来の個別型デバイスに比べデバイス面積の縮小化や応答時間の短縮化といった面で優位性を獲得できると見込まれる。さらに、本デバイスは、脈拍や触覚といった様々な生体情報を非侵襲的に計測するためのバイオ(生体)センサとしても機能させることが可能と見込まれることから、バイオエレクトロニクスとの融合分野を切り拓くためのキーデバイスになると期待できる。

2. 研究の目的

本研究では、研究代表者らが培ってきた有機電界効果トランジスタ (OFET) の作製技術と、圧電性高分子材料である PVDF (ポリフッ化ビニリデン) のフィルム形成技術とを融合させることにより、全く新しい動作機構を有するフレキシブル圧力センサの開発を行う。まず、当該デバイスの開発に先立ち、単体の PVDF フィルムが有する圧力応答特性の再現性について検証するとともに、センサ特性の最適化を試みる。次に、OFET との一体型デバイスの試作を行うとともに、再現性に優れた作製法の確立を目指す。また、作製されたデバイスから得られる圧力応答特性について詳細に解析することにより、本センサの動作メカニズムの解明を試み、OFET に関する新たな学術的知見の獲得を目指す。さらには、本センサが平面上に多数個配置された構造を有するマッピングデバイスの開発方針を検討することにより、今後のウェアラブル圧力センサへの応用の可能性についても探る。

3. 研究の方法

本研究では、上で示した目的の内容に沿う形で、以下の3点について重点的に取り組む。

- (1) 単体の PVDF センサの圧力応答特性の再現性検証、及びセンサ特性の最適化
- (2) OFET との一体型デバイス (新規圧力センサ) の試作と再現性に優れた作製法の確立
- (3) 新規圧力センサが多数個配置された構造を有するマッピングデバイスの開発

本研究の主目的である新規圧力センサの開発は、実施項目 (2) に該当する。本センサの開発方針に基づく具体的な構造は、下図 1 に示すように、プラスチック (PET) フィルムを基板とし、直上にそれぞれ、Au、PVDF、SiO₂、Au、有機半導体 (P3HT) 層の順で形成させることにより実現するものである。実施項目 (1) では、本構造のデバイスの開発に先立ち、PVDF 層を上下の Au 層で挟み込んだ単純な構造の PVDF センサを作製し、圧力応答特性の再現性検証とセンサ特性の最適化を試みる。その後、実施項目 (2) において、まず PVDF 層と OFET の有機半導体 (P3HT) 層とを絶縁するための SiO₂ 層について、その絶縁性が十分であるか検証する。具体的には、SiO₂ 層を上下の Au 層で挟み込んだ構造のサンプルにおいて、Au 電極間の抵抗測定によって調査する。これらの結果を踏まえた上で、図 1 の構造を有するデバイスの開発に取り組む。最後に (3) では、(1)・(2) で得られた知見を基に、マッピングデバイスの開発方針について検討を行う。特に、圧力を位置的に差別化する際の指標である平面分解能に注目しながら、まずはより簡単な一次元デバイスの試作・評価を行った上で、その後の二次元デバイス開発の実現可能性について探る。

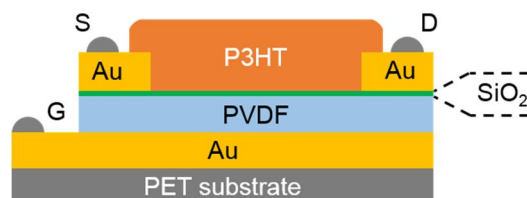


図 1. 開発方針に基づく OFET との一体型デバイスの断面構造模式図

4. 研究成果

(1) 化学修飾表面を用いた PVDF 膜中の新規ポーリング（分極処理）法の確立

本実施項目では、まずプラスチック（PET）基板の上に、下地電極となる Au を真空蒸着し、その上に PVDF 膜を溶液法によって形成させた。そして、上部電極となる Au を再び真空蒸着することにより単体の PVDF センサを作製した。しかしながら、本センサからは十分な出力応答が得られなかった。研究代表者らは、本結果の原因が、PVDF 膜中の分極が十分に揃っていない点にあると考察した。そこで、下地の Au 電極上の表面ダイポールに着目し、これらの向きを一律に揃えておくことによって、直上に成膜される PVDF 膜中の分極を配向制御させられるのではないかと、この仮説を立てた。この仮説を検証するため、下地 Au 電極にチオール修飾を施し表面ダイポールを制御させた上で作製されたセンサ（図 2）の出力応答と、未修飾のセンサにおけるそれとの比較を行った。

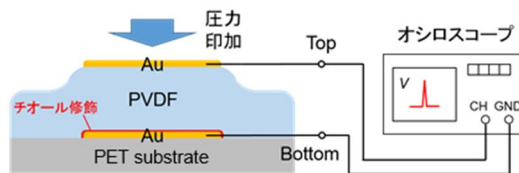


図 2. 単体の PVDF センサの断面模式図と測定系

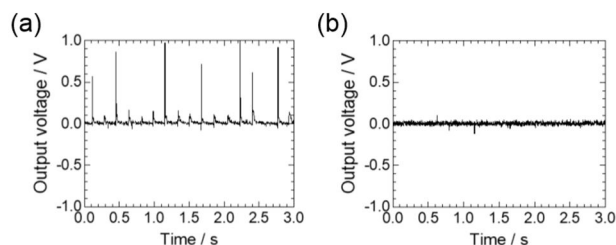


図 3. タッピング圧力印加による、(a) チオール修飾サンプル、(b) 未修飾サンプル、それぞれにおける出力応答波形

図 3 の結果を見ると、修飾が施されたサンプルでは出力が顕著に得られており、かつ符号も一方向に揃っている（図 3 (a)）一方で、未修飾のサンプルでは出力が殆ど得られていない（図 3 (b)）ことが分かる。これは、化学修飾によって一律に揃えられた表面ダイポールが、仮説のとおり、直上に成膜される PVDF 膜中分子の配向制御のために重要な役割を果たすことを示唆するものである。詳細なメカニズムについては今後調査していく必要があるものの、本研究によって、化学修飾に基づく新規ポーリング（分極処理）を見出すことに成功した。

(2) OFET との一体型デバイス（新規圧力センサ）の開発に当たっての知見の獲得

続いて、図 1 に示した構造を有する新規圧力センサの開発研究を遂行した。はじめに、作製工程を進める中で、PVDF 層と OFET 層とを隔てるための酸化絶縁膜（ SiO_2 膜）が十分に成膜できない問題に直面したことから、研究代表者らが現有する電子ビーム蒸着装置を新たに稼働させ、最適な成膜条件を探索した結果、十分な厚さの SiO_2 膜が再現よく形成可能となった。次に、 SiO_2 膜を上下の Au 層で挟み込んだサンプルを試作し Au 電極間抵抗の測定を行ったところ、電流の大きなリークが見られたことから、上からの（Au の）真空蒸着によって本酸化膜が容易に絶縁破壊を引き起こすことが判明した。この結果を踏まえ、当初計画に基づく作製工程では、当該デバイス開発における最終段階への到達は困難であるとの結論に至った。このことから、本デバイスの開発に当たっては、サンプルへのダメージを極力抑制できる低温プロセスをベースとした作製法の確立が望ましいとの知見を得た。

(3) 一次元方向における位置検出用 PVDF マッピングデバイスの作製法の確立

実施項目 (1)・(2) の結果を踏まえ、新規圧力センサではなく、単体の PVDF センサが平面上に多数個配置された構造を有するマッピングデバイスの開発に注力することとした。その結果、図 4 に示すような一次元検出用マッピングセンサの作製法の確立に成功した。ここで、作製法については、下部及び上部 Au 電極形成のための真空蒸着の際に、微細パターンを有するメタルマスクを用いる点以外は、項目 (1) でのそれと同様である。図 4 から、横方向に延びている下部電極と、縦方向に延びている上部電極とが均等に立体交差している様子が分かる。この際、各電極間抵抗値が少なくとも $10 \text{ M}\Omega$ 以上である（リークがほぼ無視できる水準にある）ことを確認した。本デバイスにおいて、下部電極を全て接地した上で、圧力印加治具（上部電極に平行な向きに突起が付いた治具）を横方向に走査した際の、各電極（ $V_1 - V_4$ ）から出力される電圧をオシロスコープによって同時計測した。その結果、電極の平面分解能（電極中心間距離 $200 \mu\text{m}$ ）にほぼ準ずる形で、検出位置の差別化に成功した。このことから、本作製法の活用によって、当該マッピングデバイスの二次元化開発が可能になるとの良好な見通しを得た。

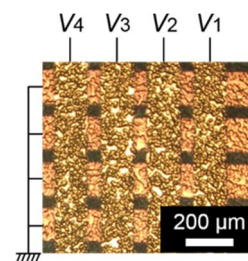


図 4. 作製した一次元マッピングセンサの上面顕微鏡像

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 山宮 慎、但木 大介、馬 騰、今井 裕司、平野 愛弓、庭野 道夫
2. 発表標題 金チオール修飾表面を用いたPVDF膜中の配向分極制御
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山宮 慎、但木 大介、馬 騰、今井 裕司、平野 愛弓、庭野 道夫
2. 発表標題 PVDF膜中の配向分極制御のための金表面処理
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 但木 大介、山宮 慎、馬 騰、今井 裕司、平野 愛弓、庭野 道夫
2. 発表標題 圧力マッピングへの応用を指向した金属細線包埋型PVDF薄膜センサの作製
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 但木 大介、山宮 慎、馬 騰、今井 裕司、平野 愛弓、庭野 道夫
2. 発表標題 金チオール修飾表面を用いたPVDF膜中の分極処理
3. 学会等名 2019年度電子デバイス（ED）研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daisuke Tadaki, Shin Yamamiya, Teng Ma, Yuji Imai, Ayumi Hirano-Iwata, Michio Niwano
2. 発表標題 A new approach for the poling of piezoelectric PVDF thin films using surface chemical modification
3. 学会等名 E-MRS Spring Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Daisuke Tadaki, Shin Yamamiya, Teng Ma, Yuji Imai, Ayumi Hirano-Iwata, Michio Niwano
2. 発表標題 A new method for polarization control of piezoelectric PVDF thin films using surface chemical modification
3. 学会等名 10th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE10) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本 晋太郎、但木 大介、山宮 慎、馬 騰、今井 裕司、平野 愛弓、庭野 道夫
2. 発表標題 有機強誘電体膜を用いた二次元圧力マッピングセンサの作製
3. 学会等名 2019年度電子部品・材料(CPM)若手ミーティング
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松本 晋太郎、但木 大介、山宮 慎、馬 騰、今井 裕司、平野 愛弓、庭野 道夫
2. 発表標題 金属細線電極を包埋したPVDF圧力マッピングセンサの作製
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 圧電素子および圧電素子の製造方法	発明者 但木 大介、平野 愛 弓、庭野 道夫、今井 裕司	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-155471	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	庭野 道夫 (Niwano Michio)		
研究協力者	平野 愛弓 (Hirano-Iwata Ayumi)		
研究協力者	今井 裕司 (Imai Yuji)		
研究協力者	馬 騰 (Ma Teng)		
研究協力者	山宮 慎 (Yamamiya Shin)		
研究協力者	松本 晋太郎 (Matsumoto Shintaro)		