様　式　C－１９、F－１９、Z－１９　（共通）

科研費 KAKENHI

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

平成 ２７ 年　 ９ 月 ２９ 日現在

機関番号：１５３０１
研究種目：若手研究(A)
研究期間：2011～2014
課題番号：２３６８５０２８

研究課題名（和文）無機半導体常温印刷デバイスを目指した導電性無機ナノ粒子の創製

研究課題名（英文）Room-Temperature Printing of Organic Thin-Film Transistors

研究代表者
金原　正幸（Kanehara, Masayuki）

岡山大学・その他部局等・助教

研究者番号：４０３７５４１５

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　22,700,000円

研究成果の概要（和文）：今回我々は、すべての印刷プロセスを大気下・室温で行い、1℃も昇温することなくエレクトロニクス素子が製造可能な「室温プリンテッドエレクトロニクス」を確立させました。金属ナノ粒子の配位子として導電性を有する芳香族性の分子を用いたことで、塗布後に焼成することなく金属皮膜を形成させることに成功しました。プラスチックおよび紙基板上に形成した有機TFTは、それぞれ平均移動度7.9および2.5 cm2 V-1 s-1を示しています。これは、アモルファスシリコンTFT の平均的な移動度0.5 cm2 V-1 s-1を大きく上回り、IGZO TFT の移動度（～10 cm2 V-1 s-1）にも匹敵する値です。

研究成果の概要（英文）：The present report describes a method for the room-temperature printing of electronics, which allows thin-film electronic devices to be printed at room temperature without the application of heat. The development of π-junction gold nanoparticles as the electrode material permits the room-temperature deposition of a conductive metal layer. Room-temperature patterning methods are also developed for the Au ink electrodes and an active organic semiconductor layer, which enables the fabrication of organic thin-film transistors through room-temperature printing. The transistor devices printed at room temperature exhibit average field-effect mobilities of 7.9 and 2.5 cm2 V-1 s-1 on plastic and paper substrates, respectively. These results suggest that this fabrication method is very promising as a core technology for low-cost and high-performance printed electronics.

研究分野：ナノ材料合成

キーワード：ナノインク　プリンテッド・エレクトロニクス　トランジスタ

１．研究開始当初の背景

可溶な有機半導体や金属インクを様々な印刷技術でパターニングするプリンテッドエレクトロニクスは、現状の半導体エレクトロニクスの製造コストを劇的に引き下げ、環境にやさしいボトムアップ方式(9)による素子の作製が可能になると期待されています。特に、有機 TFT を印刷で製造することが可能になれば、フレキシブルな電子ペーパーやディスプレイといった従来にないエレクトロニクス製品が、低コストの印刷で可能になると考えられています。

その一方で、TFT はソース･ドレイン電極、半導体層、絶縁層、ゲート電極と最低でも 4 層の積層構造を持ち、素子の製造にはミクロンオーダーの精密な印刷が要求されます。そのため、プラスチックや紙といった耐熱性の弱いフレキシブル基板上に素子を作製する場合は、プロセスが基板の伸縮や破壊を起こさない低温であることが必須の条件でした。しかし、現状で用いられている塗布式導電材料はすべて高温（100～200℃以上）での焼成が必要であるため、基板としては耐熱性を有する特殊なプラスチックかガラスのような材料を用いるしかありませんでした。そこで、室温～60℃程度の低温でプリンテッドエレクトロニクスを行うことが可能な新しい手法の開発は、実用化を進める上で不可欠であると考えられていましたが、これまで実現されていませんでした。

２．研究の目的

室温～60℃程度の低温でプリンテッドエレクトロニクスを行うことが可能な新しい手法の開発は、実用化を進める上で不可欠であると考えられていましたが、これまで実現されていませんでした。本研究では、室温プリンテッドエレクトロニクスの実現を目的としました。

３．研究の方法

室温で塗布乾燥するだけで固体金属と同レベルの導電性を有する金属ナノインクの開発に成功しました。ナノメートルサイズの金属粒子に芳香族性の分子を配位させ、インクに分散させることにより、室温導電性が発現しました。これにより非耐熱性基板への電極形成が可能になりました。基板の表面を薄い撥水性ポリマーの膜で覆い、光学的手法で形成した親水性のパターンに金属ナノインクを選択的に塗布して、精密な電極を形成する新しいプロセスを開発しました。

４．研究成果

今回の研究では、有機 TFT を構成するすべての部材を室温で成膜可能なインクとし、熱処理が不要なプロセスを用いることによって、1℃の昇温も行うことなく印刷で素子を作製する「室温プリンテッドエレクトロニクス」を実現しました。特にネックとなってい

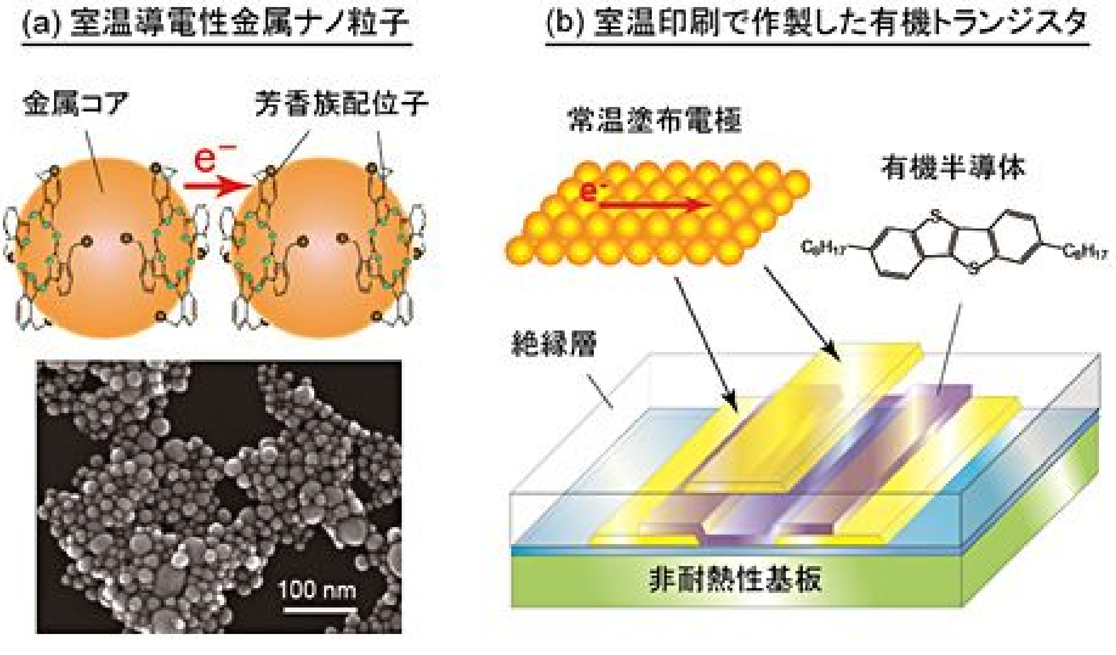

図 1　本研究で作製した室温導電性金属ナノ粒子と、室温印刷による有機トランジスタ
(a) 室温導電性金属ナノ粒子の模式図と走査電子顕微鏡写真。導電性を有する芳香族性の配位子を用いることによって、室温乾燥で金属並みの導電性を発揮することができます。(b) 室温印刷プロセスによって形成した有機 TFT の模式図。1℃の昇温も行うことなく TFT のすべての層を形成できるため、耐熱性を持たない材料でも基材として用いることが可能です。さらに、従来の有機 TFT と比較して、非常に高い移動度を発揮します。

たのは電極を構成する材料であり、従来の金属ナノインクや導電性ポリマーは 100～200℃以上の熱処理が必須とされていました。我々は、高温プロセスが必要な理由を材料にまでさかのぼって追求し、金属ナノインクが熱処理を必要とするのは絶縁性の配位子を用いているためであることに着目しました。そして、金属ナノ粒子に芳香族性の配位子を導入することによって、室温で塗布乾燥するだけで金属レベルの導電性を発現する金属ナノインクの開発を行いました（図 1(a)）。その結果、金属インクは塗布後に焼成することなく金属皮膜を形成し、抵抗率 9×10^{-6} Ω ㎝の薄膜を得ることに成功しました。室温導電性インクを用いて、電極、半導体層をすべて印刷で形成した有機 TFT をプラスチックおよび紙基板上に作製し（図 1(b)）、それぞれ平均移動度 7.9 および 2.5 $cm^2 V^{-1} s^{-1}$ を達成しました。

選択的塗布技術を用いることで、有機 TFT のすべての層をフレキシブル基板上に室温で印刷することが可能になります。以下の例では､室温印刷プロセスを用いて、数 100 個の有機 TFT をプラスチック基板上に一括で印刷しています (図 2(a))。ソース・ドレイン電極、有機半導体層、ゲート絶縁層、ゲート電極の 4 層を、完全なパターニングを行った上で積層していますので、素子間のクロストークやリーク電流といった問題を生じることなく、各素子を独立して動作することができます (図 2(b))。室温印刷による有機 TFT の出力特性 (図 2(c)) と伝達特性 (図 2(d))を示します。これらの特性は､印刷有機 TFT が理想的な薄膜トランジスタとして動作していることを示しています。素子の移動度の平均値は、7.9 $cm^2 V^{-1} s^{-1}$ と見積もることができました。

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 2 件）

1) M. Kanehara, J. Takeya, T. Uemura, H. Murata, K. Takimiya, H. Sekine, and T. Teranishi, Bull. Chem. Soc. Jpn. 85, 957-961 (2012). 査読あり

2) T. Minari, Y. Kanehara, C. Liu, K. Sakamoto, T. Yasuda, A. Yaguchi, S. Tsukada, K. Kashizaki, and M. Kanehara, Advanced Functional Materials, 24, 4886 (2014). 査読あり

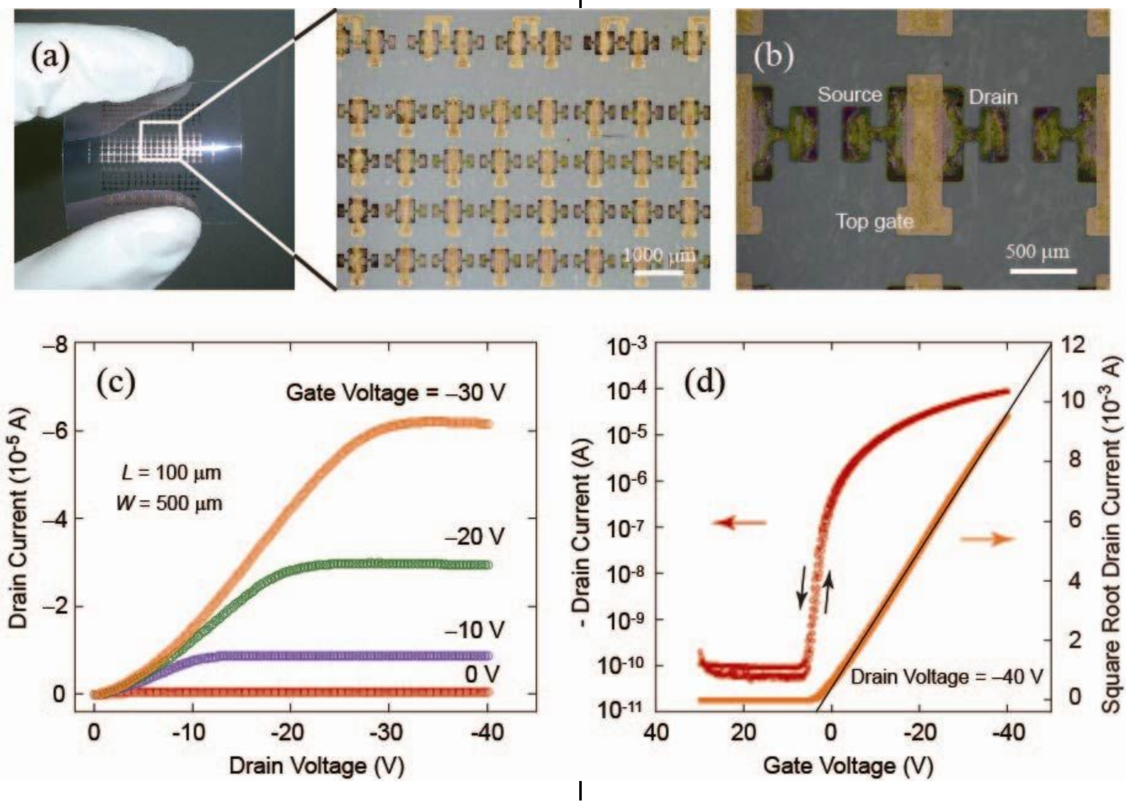

図 2　室温印刷による有機 TFT の動作特性(a) プラスチック基板上に室温印刷プロセスで形成した有機 TFT アレイ。(b) 単一の素子の拡大図。すべての素子は完全にパターニングされ、独立に動作します。(c) 室温印刷プロセスで形成した有機 TFT の出力特性。(d) 室温印刷プロセスで形成した有機 TFT の伝達特性。

〔学会発表〕（計０件）

〔図書〕（計０件）

〔産業財産権〕
○出願状況（計０件）

〔その他〕
ホームページ等

６．研究組織
(1)研究代表者
　金原　正幸（Kanehara Masayuki）
　岡山大学・異分野融合先端研究コア・助教
（特任）
　研究者番号：４０３７５４１５