

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：15201

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25820010

研究課題名(和文) 非線形電気弾性理論によるフレキシブル有機トランジスタのマルチフィジックス解析

研究課題名(英文) Multiphysics analysis of flexible organic transistors based on nonlinear electro-elasticity

研究代表者

森本 卓也 (MORIMOTO, TAKUYA)

島根大学・総合理工学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：30451660

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000 円

研究成果の概要(和文)：曲げ変形を受けるフレキシブル有機トランジスタ(OFET)の力学的特性と電気的特性を検討した。まず、曲げ変形の理論解析および有限要素解析による検証を行い、OFETに生じるひずみを求めた。次に、OFETの曲げ変形前後でのキャパシタンスと電界効果移動度の変化率を求めた。ひずみの局所化が電気的特性の破綻をもたらすものではなく、電極と誘電層との界面はく離に起因することが明らかとなった。一方で、基板や誘電層にエラストマを用いた伸縮性OFETの構造では、電極の界面で生じるひずみを低減できることが示唆され、基板と誘電層の厚さの比率および弾性係数の比率の最適値が存在することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The mechanical and electrical characteristics of flexible organic field-effect transistors (OFET) due to bending have been investigated. First, the structural variations have been determined through the theoretical and finite element analyses. Second, the relative changes in the capacitance and field-effect mobility have been derived with the structural variations. It is found that the critical bending strain at which the electrical performance loss does not result from the strain localization but the debonding between the electrode and the dielectric layer. For the stretchable OFETs that can deform largely without interfacial failures, the maximum strain at the interface of electrodes can be reduced and there exist the optimal combinations of the ratios of layer thicknesses and elastic moduli.

研究分野：連続体力学

キーワード：有限変形 超弾性体 積層構造 伸縮性エレクトロニクス 有機トランジスタ

1. 研究開始当初の背景

フレキシブルエレクトロニクスは極めて薄い高分子フィルムやガラス基盤上に能動・受動デバイスや配線などあらゆるものを印刷技術によって形成できるため、低環境負荷で大面積化が低コストで実現できる次世代産業の技術革新として世界的な開発競争が繰り広げられている。フレキシブルエレクトロニクスの新たな付加価値は、しなる・丸められるという「可とう性」、さらには伸縮自在でいかなる形状にも形を変えられる「伸張性」といった力学的特性であり、変形理論（材料・幾何学的非線形性）にもとづいた設計手法の確立が必要不可欠である。しかしながら、当該分野では力学的視点からの研究は限定されている状況にあった。

Suo ら (Appl. Phys. Lett., 1999) は、ガラス基板上の有機トランジスタ (OFET) を対象にして初等的な材料力学で単純な多層モデルの理論を構築し、ひずみを生じない中立面に TFT を配置する設計方法を提案した。この方法にもとづいて Sekitani ら (Appl. Phys. Lett., 2005) は OFET を作製し、曲げ半径は 0.5mm まで曲げても機能低下しないことを実験的に確認した。しかし、単純な多層モデルによる限界曲げ半径の予測値は 0.1mm で理論と実験は一致しておらず、より洗練されたモデルが必要とされていた。

また、OFET の電気的特性の評価は、電界効果にもとづく有機半導体の移動度（電界効果移動度）を測定することが必須である。この移動度は純粋な物性値ではなく OFET の構造に依存するものであるため、OFET では曲げ変形前後での移動度の変化を評価する必要があった。これまでの実験報告で、OFET に 1% 程度の曲げひずみを与えるだけで移動度を 10% 以上も増加あるいは減少させることが明らかにされているが、そのメカニズムの理解には至っていない現状があった。

2. 研究の目的

フレキシブル有機トランジスタ (OFET) が曲げ変形を受けて生じるひずみによって電界効果移動度が変化するという実験結果を説明できる力学理論を構築すること、ならびに曲げ変形を受けても電気的特性を損なわず使用可能である限界の曲げ半径の予測可能な力学理論を構築することを本研究の目的とした。

3. 研究の方法

図 1 に示すように、代表的な OFET のデバイス構造を二層構造体にモデル化して、理論解析を行った。

(1) 二層構造体の変形解析

まず、デバイス構造の代表長さスケールにおいて、連続体力学の枠組みで曲げ変形により生じる二層構造の寸法変化がキャパシタンスや電界効果移動度に与える影響を明らかにするための変形解析を行った。微小変形理論にもとづく初等的な材料力学（線形弾性理論）

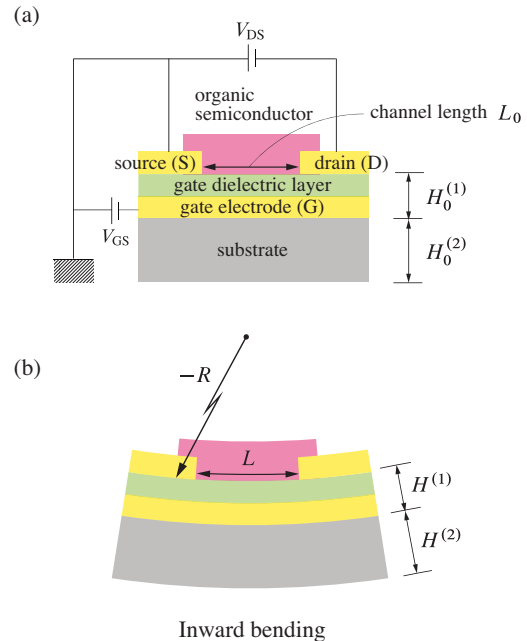


図 1 OFET の二層構造近似モデル

による定式化と、有限変形理論にもとづく非線形弾性理論による定式化を行った。微小変形理論ではパラメータ間の関係を明示的に導出することが可能であるが、限界曲げ半径を決定するためには、微小変形モデルにおける仮定が破綻する条件下では、有限変形理論が必要となる。一方、有限変形理論では、最終的な解は数値的に求める必要があり、明示解が得られないが、材料非線形性や幾何学的非線形性を考慮することでひずみの局所化に対する理論展開を行える。また、両者を比較することで材料の非線形弾性の影響を検討することが可能となる。

(2) キャパシタンスと電界効果移動度

次に、決定された二層構造に生じるひずみをトランジスタ理論に適用することで、線形／非線形弾性理論とトランジスタ理論によるマルチフィジックス解析を行い、キャパシタンスと電界効果移動度の変形前後での変化率の表式を導出した。有機トランジスタの動作原理は、現状では半導体層に有機半導体を用いている点を除いて無機トランジスタと同様に理解されている。トランジスタの基礎特性解析にあたり、緩やかなチャンネル近似が適用した。この近似では、チャンネル長 L_0 がチャンネル蓄積領域の深さと絶縁層の厚さよりも十分に長い、キャリア移動度が電界に依存しない、などの仮定が置かれる。この解析から得られる飽和領域でのドレイン電流にもとづいて、実験的に得られた素子特性から半導体層の電界効果移動度を算出する。ここで W_0 と C_0 はそれぞれ変形前の幅と静電容量であるが、曲げ変形下での構造因子のおよび静電容量 C が変化するため、移動度を算出するには変形後の構造因子 (W と L) を用いた評価が必要である。そこで、(1) で決定された微

小変形モデルならびに有限変形モデルによるひずみを用いることで、電界効果移動度の変化率に及ぼす影響を検討した。

4. 研究成果

(1) 二層構造体の変形解析

①微小変形モデル

初等的な多層モデルによる曲げ変形解析では、各層の変形後の厚さを近似的にしか見積もることができない。そこで、平面ひずみ問題として曲げ変形問題を考える。トランジスタの構造は、基板、ゲート電極、ゲート絶縁層、有機半導体層、ソース電極、ドレイン電極から構成される積層構造となっている（図1）。この構造体が曲げ変形を受ける際の構造因子（ W , L ）の変化は、静電容量 $C = \epsilon S^{(2)} / H^{(2)}$ の変化を引き起こす。ここで ϵ は誘電率である。 S は絶縁層の表面積である。通常、絶縁層の厚さは基板のものと比べて十分小さいので、絶縁層の上表面部でのひずみは $\epsilon \equiv \epsilon_x \approx H_0^{(2)} / (2R - H_0^{(2)})$ で近似できる。ここで R は曲げ半径である。一方、平面ひずみ状態下で各層にフックの法則を仮定すると、厚さ方向のひずみ $\epsilon_z \equiv (H^{(1)} - H_0^{(1)}) / H_0^{(1)}$ と幅方向の曲げひずみ $\epsilon \approx H_0^{(2)} / (2R - H_0^{(2)})$ の比は、 $\epsilon_z / \epsilon_x = -\nu / (1 - \nu)$ となる。したがって、変形前の平行平板間の静電容量は $C = \epsilon S^{(1)} / H_0^{(1)}$ で与えられるので、変形前後におけるキャパシタンスの変化率 C / C_0 は次式のように表すことができる。

$$\frac{C}{C_0} = \frac{H_0^{(1)} S^{(1)}}{H^{(1)} S_0^{(1)}} = \frac{(1 - \nu)(1 + \epsilon)}{1 - \nu(1 + \epsilon)} \quad (1)$$

ここで $\nu \sim O(10^{-1})$ および $\epsilon_x \sim O(10^{-2})$ と見なせば、 $C / C_0 \approx 1 + \epsilon_x / (1 - \nu)$ で近似でき、既往の知見が近似解として得られることが確認できる。

次に、変形前後での電界効果移動度の変化率に及ぼす曲げひずみの影響について検討する。変形前の移動度 μ_0 はドレイン／ソース電流の平方 $\sqrt{I_{DS}}$ とゲート／ソース電圧 V_{GS} のプロットからその傾きとして抽出される。電流－電圧関係は $\sqrt{I_{DS0}} = \sqrt{\mu_0 W_0 C_0 / (2L_0)} \cdot (V_{GS} - V_{TH0})$ で与えられる。下付添字0は変形前の量を表す。OFETの幅 W_0 はチャネル長 L_0 よりも十分に長く、閾値電圧 V_{TH0} は変形中に一定であると仮定する。グラジュアル近似を満足するとき、移動度の変化率は $\mu / \mu_0 = (L / L_0)(C_0 / C)(a / a_0)^2$ で表わされる。 a と a_0 はそれぞれ $\sqrt{I_{DS}}$ vs. V_{GS} および $\sqrt{I_{DS0}}$ vs. V_{GS0} のプロットから抽出した傾きである。微小ひずみを仮定し、はりの曲げ問題と平面ひずみ問題を組み合わせた微小ひずみモデルでは、

$$\mu / \mu_0 = (1 - \epsilon)(a / a_0)^2 \quad (2)$$

ここで有限ひずみモデルとの比較のために非圧縮性（ $\nu = 0.5$ ）を仮定した。これは圧縮ひずみ（ $\epsilon < 0$ ）が作用すると移動度の変化率が増加（ $\mu / \mu_0 > 1$ ）することを表している。この事実は多くの実験結果で報告されている。

$$\frac{\mu}{\mu_0} = \left(\frac{L}{L_0} \right) \left(\frac{W_0}{W} \right) \left(\frac{C_0}{C} \right) \left(\frac{a}{a_0} \right)^2 \quad (3)$$

②有限変形モデル

OFETを基板（厚さが $H_0^{(2)}$ 、せん断弾性係数 $G^{(2)}$ ）と誘電層（厚さが $H_0^{(1)}$ 、せん断弾性係数 $G^{(1)}$ ）の二層構造で、平面ひずみモデルを構築する。各層（ $s = 1, 2$ ）はひずみエネルギー密度関数が $\hat{W}^{(s)} = \mu^{(s)} / 2(\lambda^{-2} + \lambda^2 - 2)$ である非圧縮性ネオ・フック体を仮定する。また、等容変形となるような純曲げの変形勾配を仮定し、平面ひずみ下における非圧縮性ゴムブロックの純曲げに対する Rivlin の解を利用する。そして、二層の接合面で応力が連続であり、OFETの上下表面で無応力の境界条件を課すと、力のつり合いから変形後の誘電層の厚さ $H^{(1)}$ と誘電層の上面での曲げ曲率 $1/R$ を数値的に決定することができる。これらから応力成分も求められる。微小変形モデルでは、ひずみは曲げ曲率半径 R から $\epsilon = H_0^{(2)} / (2R - H_0^{(2)})$ で計算されるが、（ $H^{(2)}$ は基板の厚さ）、有限変形モデルではひずみは $\epsilon = 2\bar{\theta}R / L_0 - 1$ から計算される。ここで $\bar{\theta}$ は曲げの中心角である。

ゲート／ドレイン電極間のキャパシタンスは、曲げ変形による誘電層の形状変化の影響を受ける。曲げ変形前のキャパシタンスは単純な平行平板のキャパシタで与えられる： $C_0 = \epsilon^* S_0^{(1)} / H_0^{(1)}$ ここで ϵ^* はゲート絶縁体の誘電率で、 $S_0^{(1)}$ はゲート電極の表面積である。OFETの厚さ $H_0^{(1)} + H_0^{(2)}$ に対して十分大きな曲率半径 R で曲げられるときを考えているので、曲げ変形後のキャパシタンスも同様に平行平板のキャパシタ $C = \epsilon^* S^{(1)} / H^{(1)}$ で表すことができる。ただし、誘電率 ϵ^* は変形前後で一定と仮定する。よって、キャパシタンスの変化率は

$$\frac{C}{C_0} = \frac{H_0^{(1)} 2\bar{\theta}R}{H^{(1)} L_0} \quad (4)$$

これを用いて、微小変形モデルと同様に考えることで、有限ひずみモデルでの電界効果移動度の変化率は次式のように導かれる：

$$\mu / \mu_0 = (H^{(1)} / H_0^{(1)})(a / a_0)^2 \quad (5)$$

$H^{(1)} / H_0^{(1)}$ は暗にひずみ ϵ に依存している。

(2) キャパシタンスと電界効果移動度

図2は曲げ変形の前後的ゲート／ドレイン電極間のキャパシタンスの変化率 C / C_0 をひずみ ϵ の関数でプロットしたものである。実線は基板と誘電層の厚さの比 $H_0^{(1)} / H_0^{(2)} = 10^{-1}$ の結果を、破線は $H_0^{(1)} / H_0^{(2)} = \{10^{-2}, 10^{-3}\}$ の結果（二本の線が完全に重なって見えている）を3つのせん断弾性係数の比 $G^{(1)} / G^{(2)} = \{1, 10, 100\}$ について示している。ひずみの絶対値が0から増加していくほど C / C_0 は線形変化からわずかにずれて減少していく。微小ひずみ領域でよく一致しているおり、これはポアソン効果として知

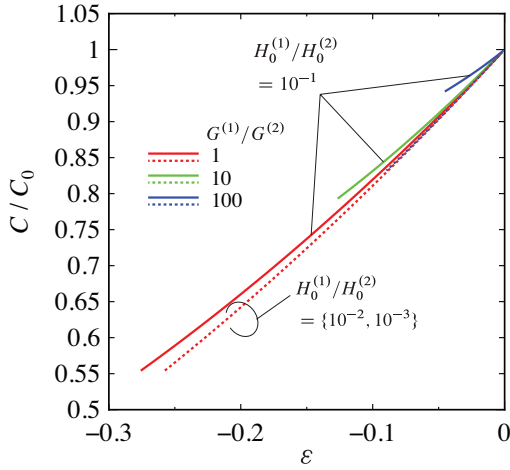


図2 セン断弾性係数の比と厚さの比がキャパシタンスの変化率に及ぼす影響

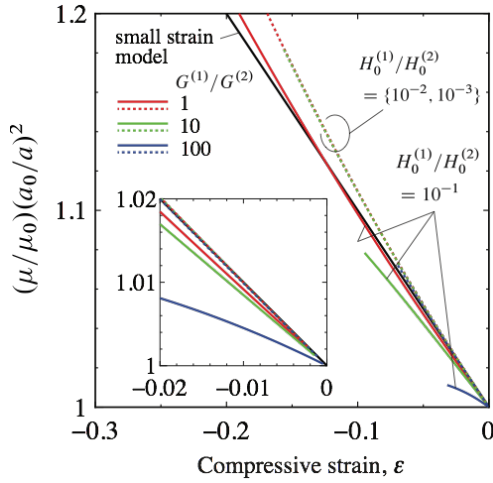


図3 電界効果移動度の変化率

られているもので、ゲート電極の表面積の変化率 $S^{(1)}/S_0^{(1)}$ が圧縮ひずみを受けて減少するためである。厚さの比が十分に小さいケース ($H_0^{(1)}/H_0^{(2)} = 10^{-2}, 10^{-3}$) では、 C/C_0 はせん断弾性係数の比 $G^{(1)}/G^{(2)}$ に依存しない。

図3は、式(1)の微小ひずみモデルと式(4)の有限ひずみモデルから計算された移動度の無次元変化率を比較したものである。黒の実線は微小ひずみモデルの結果を示している。差込図は微小ひずみ領域を拡大したものである。微小ひずみモデルでは $H_0^{(1)} \ll H_0^{(2)}$ が仮定されているため、 $H_0^{(1)}/H_0^{(2)}$ の依存性はない。ゆえに、厚さの比が十分に小さいケース ($H_0^{(1)}/H_0^{(2)} = 10^{-2}, 10^{-3}$) では、両モデルの結果は $G^{(1)}/G^{(2)}$ の値に依らず一致している。一方、 $H_0^{(1)}/H_0^{(2)} = 10^{-1}$ のケースでは、 $G^{(1)}/G^{(2)}$ の大きさに依存しており、有限ひずみの効果が現れている。ただし、微小ひずみ領域では $G^{(1)}/G^{(2)} = 10$ 程度のケースまで、ほぼ一致していると見なせる。

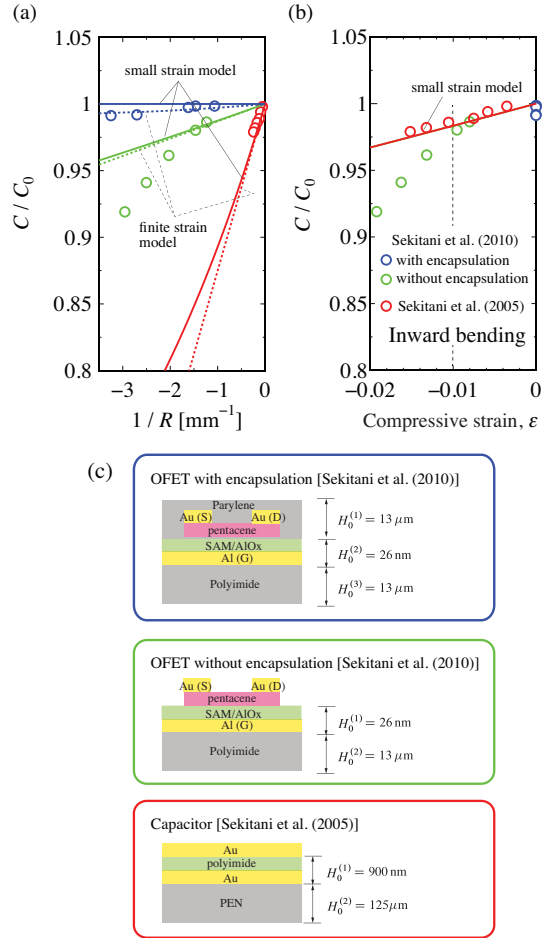


図4 キャパシタンスの変化率

図4は、手に入る実験データと式(1)と式(4)で与えられる理論予測との比較を示している。同図(c)に対応するデバイス構造の模式図を示している。図4(a)の結果から、基板上のトランジスタ構造の上に封止材の層を導入して、曲げひずみがゼロとなる中立面上にトランジスタを配置することで曲率半径がより小さな曲げ変形を行っても静電容量の変化率が安定していることがわかる。しかし、封止材の層がないトランジスタ構造では、ある一定の曲げ曲率 $1/R$ の値から急激に静電容量の変化率が変化しており、この構造に対する平面ひずみモデルによる予測は失敗する。図4(b)は、実測された曲げ半径 R を用いてひずみ $\epsilon_x \approx H_0^{(2)}/(2R)$ に換算してプロットしたものである。ひずみの大きさはほぼ同じであるにもかかわらず、圧縮のひずみが0.01程度より大きくなると予測値から大きく外れてくる。圧縮ひずみが ~ 0.011 を超えると、ソースとドレインの電極が座屈またはクラックを生じ、移動度が急激に低下することが報告されており、誘電層と電極界面での座屈／クラックの発生に関する解析が限界曲げ半径を予測する上で必要とされる。

(3) 成果のまとめと今後の課題

OFET が曲げ変形を受けて電気的特性が失われる限界曲げ半径の理論的予測に対して、曲げ変形の幾何学および材料非線形性の影響を検討するために、まず曲げ変形の理論解析（微小変形と有限変形）および有限要素解析（有限変形）による検証を行った。つぎに、OFET の曲げ変形前後でのキャパシタンスと電界効果移動度の変化率を求めた：

$$\frac{C}{C_0} = \begin{cases} \frac{(1-\nu)(1+\varepsilon)}{1-\nu(1+\varepsilon)} & \text{for small strain model} \\ \frac{H_0^{(1)} 2\bar{\theta}R}{H^{(1)} L_0} & \text{for finite strain model} \end{cases} \quad (6)$$

$$\frac{\mu}{\mu_0} = \begin{cases} (1-\varepsilon) \left(\frac{a}{a_0} \right)^2 & \text{for small strain model} \\ \frac{H^{(1)} \left(\frac{a}{a_0} \right)^2}{H_0^{(1)}} & \text{for finite strain model} \end{cases} \quad (7)$$

曲げ変形下で OFET が受けるひずみが微小で典型的なポアソン比の値をとる場合には、ポアソン効果として知られている既往の知見が近似解として得られることを確認した。また、電界効果移動度に及ぼすひずみの影響は、積層構造の長さスケールにもとづいた理論解析では捉えられないことが明らかとなり、有機半導体層における変形に伴う結晶構造の変化を考慮したマルチスケールモデリングの必要性を示唆し、今後の課題として残った。

OFET の限界曲げ半径の予測に対しては、ひずみの局所化が電気的特性の破綻をもたらすものではなく、電極と誘電層との界面はく離に起因することが明らかとなった。すなわち、曲げ変形を受ける OFET において、電極のエッジでのエネルギー開放率の最大値が界面はく離強度よりも高くなるときに電気的特性を損なう限界曲げ半径を与えるものと考えられる。

一方で、有限変形理論の解析結果からは、基板厚さに対するフィルムの厚さが小さくなるほど、ひずみの局所化が始まるひずみの臨界値は大きくなることがわかった。典型的な OFET のデバイス構造では、 $H_f/H_s=1/1000$ であるので、 $G_f/G_s=1000$ であれば局所化が開始する臨界ひずみは 30%以上と大きな値となる。これは界面はく離を伴わないような、エラストマ層を基板に用いた伸縮性エレクトロニクスデバイスの設計において重要な知見となる。さらに、やわらかいエラストマの誘電層が用いられた伸縮性の OFET 構造では電極の界面で生じるひずみを低減できることが示唆された。そして、基板と誘電層の厚さの比率および弾性係数の比率が OFET 内に生じる最大ひずみに及ぼす影響を有限要素解析によって系統的に調査した結果、ひずみを抑制するための最適な厚さの比率と弾性係数の比率が存在することを明らかにした。この知見は、OFET だけでなく、特に伸縮性エレクトロニク

スデバイスの積層構造に対する設計指針を与えるものである。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕（計 8 件）

- ① 山根大介, 森本卓也, 芦田文博, 二層エラストマ構造体の曲げ変形解析, 日本機械学会中国四国支部第 53 期総会・講演会, 近畿大学 (広島県・東広島市), 2015 年 3 月 6 日.
- ② 森本卓也, 芦田文博, 山根大介, 伸張性積層デバイスの有限曲げ変形解析, 日本機械学会計算力学部門 第 27 回計算力学講演会, 岩手大学 (岩手県・盛岡市), 2014 年 11 月 22 日.
- ③ 森本卓也, 芦田文博, 二軸圧縮下における多層構造体のしわ形成過程, 第 58 回日本学術会議材料工学連合講演会, 京都テルサ (京都府・京都市), 2014 年 10 月 27 日.
- ④ D. Yamane, T. Morimoto, F. Ashida, Finite Element Analysis of Stretchable Multilayer Structures Subjected to Bending, The Fourth Asian Conference on Mechanics of Functional Materials and Structures (ACMFMS 2014), 新公会館 (奈良県・奈良市), 2014 年 10 月 10 日.
- ⑤ T. Morimoto, D. Yamane, F. Ashida, Finite bending of organic field-effect transistors, The Fourth Asian Conference on Mechanics of Functional Materials and Structures (ACMFMS 2014), 新公会館 (奈良県・奈良市), 2014 年 10 月 10 日.
- ⑥ T. Morimoto, F. Ashida, Folding of neo-Hookean bilayer under biaxial compression, 11th World Congress on Computational Mechanics (WCCM XI), バルセロナ (スペイン), 2014 年 7 月 20 日.
- ⑦ 森本卓也, 芦田文博, 硬質層と軟質層の二層構造における伸縮性発現メカニズムの検討, 日本機械学会計算力学部門 第 26 回計算力学講演会, 佐賀大学 (佐賀県・佐賀市), 2013 年 11 月 2 日.
- ⑧ 森本卓也, 芦田文博, フレキシブルトランジスタの曲げ変形解析, 日本機械学会材料力学部門 材料力学カンファレンス 2013, 岐阜大学 (岐阜県・岐阜市) 2013 年 10 月 13 日.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森本 卓也 (MORIMOTO TAKUYA)

島根大学・大学院総合理工学研究科・准教授
研究者番号：3 0 4 5 1 6 6 0