

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 24 日現在

機関番号：24403

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2015

課題番号：26709026

研究課題名(和文)ヘルスマニタリング用高性能・多機能無線フレキシブルCMOS/MEMSデバイス

研究課題名(英文)High performance and multi-functional wireless flexible CMOS/MEMS devices for health monitoring

研究代表者

竹井 邦晴 (Takei, Kuniharu)

大阪府立大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：20630833

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、これまで実現されてこなかったフレキシブル基板上での低消費電力・無線CMOS/MEMS集積デバイスの実現を目指し、各デバイス素子の開発及び集積化プロセスの開発を行った。特に、印刷形成により実現する歪みセンサと温度センサを開発し、さらに材料及びプロセスを最適化することでフレキシブルセンサの高感度化を実現した。またフレキシブル基板上に低消費電力トランジスタとして無機材料を用いたCMOS回路を提案し、実際にデジタル回路やアナログ回路を低消費電力で動作可能であることを確認した。最後に本技術を集積化することで健康管理デバイスのプロトタイプ開発も行った。

研究成果の概要(英文)：In this study, we aim to develop a flexible low-power, wireless CMOS/MEMS integrated device by developing each device components and integration process on a flexible substrate for the future electronics. In particular, printed strain and temperature sensors are realized by developing the printed sensor inks using mainly inorganic nanomaterials. Furthermore, by optimizing the ink and fabrication process, we could achieve the high sensitivity for strain and temperature detections compared to previous reports. In addition to the sensors, low power and high performance flexible digital and analog circuits are also demonstrated without any malfunction even under mechanical bending conditions. Finally, by applying the developed technologies, flexible and wearable healthcare device are developed as a proof-of-concept.

研究分野：フレキシブルデバイス

キーワード：フレキシブルデバイス ナノ材料 印刷技術

1. 研究開始当初の背景

現在、次世代の電子機器として機械的柔軟性を有したフレキシブル電子デバイスの研究開発が盛んに行われている。これは、例えば従来の硬い電子デバイスでは困難であった様々な対象物にテープのように添付することで、その対象物に電子的機能を与えたり、又は対象物と人との情報共有を可能にしたりすることが可能となる。さらに絆創膏のように柔軟性を有することで、人の皮膚に添付することで健康状態を違和感なく常時計測することも可能になると期待されている。本実現には、フレキシブル基板上へトランジスタやセンサなどを大面積で形成する技術開発が必要不可欠である。実際これまでに、国内外の多くの研究機関にてフレキシブル基板上へのトランジスタ材料及びセンサ材料の形成技術が開発されている。そしてその応用として、電子皮膚、太陽光発電、健康管理デバイスなどが提案されてきた。しかしながら、現状、大面積化、低コスト化、高性能化、多機能化、そして低消費電力化の全てをフレキシブル基板上で実現することは出来ない。特に上述の応用デバイスのほとんどが半導体プロセスを用いており、微細化は得意とするが、大面積・低コスト化を実現するのは困難な状況である。対照的に、印刷技術を用いた大面積・低コストなデバイス作製方法も提案されているが、印刷材料の形成方法の難しさから高性能化や多機能化には現状至っていない。

2. 研究の目的

そこで本研究では、上記課題を解決するため、無機ナノ材料の大面積印刷技術に注目し、印刷形成用の材料及びインクの開発、印刷技術による多種センサの形成プロセス開発及び最適化、さらに一般的な Si 集積回路に用いられている Complementary Metal Oxide Semiconductor (CMOS)回路構造をフレキシブル基板上で実現することで、低消費電力フレキシブル電子デバイスの実現を目指す。特に、様々なセンサ材料を印刷形成することで、多機能センサアレイを印刷技術のみにより作製するプロセス開発を行う。また無機材料を用いた高性能・低消費電力フレキシブル CMOS 回路については、まだ報告例も少なく技術的な難しさがあるため、提案する構造によるフレキシブル CMOS 回路の動作特性評価に重点を置く。本研究では、CMOS 回路の完全印刷技術による形成は技術的に困難なため、半導体プロセスを用いて作製する。

3. 研究の方法

本研究では、フレキシブル基板上に主に無機ナノ材料を大面積印刷することで作製する高性能フレキシブルデバイス実現を目指した。実験は、センサ材料の印刷用インクの開発、印刷技術開発、そしてそれらを集積化させたフレキシブルデバイスを実際に作製

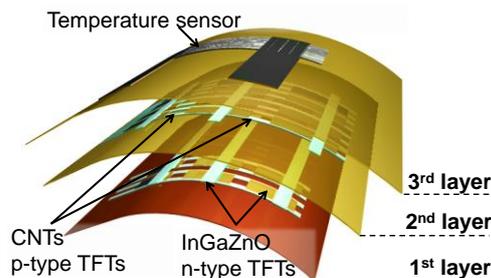


図1. 本研究で開発を目指した縦方向集積フレキシブル回路・センサデバイスのイメージ図。

することで、その可能性を示す。以下に、本デバイス実現へ向けて、主に開発したセンサ及び回路の作製方法について示す。

(1) 歪みセンサ

印刷形成する歪みセンサは、カーボンナノチューブ (CNT) と銀ナノ粒子 (AgNP) の混合インクを形成し、それをスクリーン印刷することでフレキシブル基板上に作製した。印刷後、インクを約 70°C で焼結させることで歪みセンサが完成となる。配線材料には、銀 (Ag) インクを同じくスクリーン印刷し、130°C で焼結することで形成した。

(2) 温度センサ

温度センサ形成には、CNT インクと導電性ポリマーである poly(3,4-ethylenedioxythiophene) polystyrene sulfonate (PEDOT:PSS) 溶液の混合インクを印刷することで作製した。焼結温度は歪みセンサ同様、約 70°C を用いた。本配線材料は歪みセンサ同様の条件で Ag インクを印刷形成した。

(3) CMOS 回路

Si 基板上にスピコーティングしたポリイミドフィルム上に、p 型薄膜トランジスタ (TFT) として半導体 CNT ネットワーク薄膜、n 型 TFT として InGaZnO 薄膜を形成し、集積回

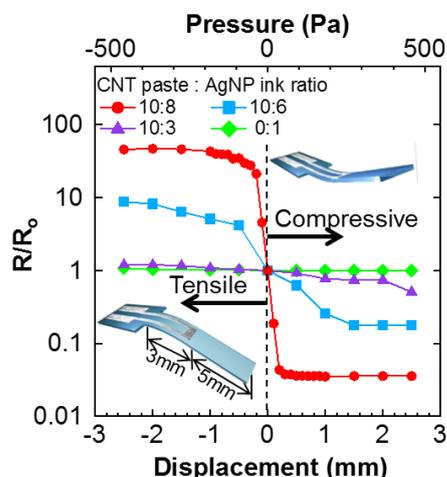


図2 CNT インクと AgNP インクの混合比による基板の曲げ (印加圧力) に対する抵抗変化。

路を作製した。ゲート電極に Al、ゲート絶縁膜に $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_x$ (50 nm)、ソース・ドレイン電極に Cr/Au (5nm/30 nm) を用いた。最後に、基板の曲げ時における TFT への応力印加を緩和させる目的で、パッシベーション膜としてポリイミド又は有機レジストを塗布した。また上述した温度センサなどとの集積化も行い、図 1 に示すようなフレキシブル回路・センサ集積デバイスの開発を行った。

4. 研究成果

(1) 歪みセンサ

図 2 に、CNT インクと AgNP インクの混合比を変えて形成したインクをスクリーン印刷した歪みセンサの、歪みに対する抵抗変化の結果を示す。まず結果から明らかなように、センサ薄膜に引っ張り応力を印加すると抵抗値は増加し、逆に圧縮応力を印加すると抵抗値は減少する結果が得られた。これは、AgNP 間の距離が応力により広がったり縮まったりすることにより生じる抵抗変化を観察しているためである。またインクの混合比を変化させることで、印加応力に対する抵抗変化、即ち検出感度を容易に変化させることが可能であることがわかった。これにより、デバイス構造や作製プロセスによるデザイン変更などを行わなくても、応用に応じて感度を容易に調節することが可能であり、デバイスの低価格化に大きく寄与できると期待できる。本歪みセンサの最も高感度のインク混合比は CNT:AgNP=5:4 で、その感度は約 59%/Pa であった。

(2) 温度センサ

歪みセンサ同様に、温度センサを形成するインクの CNT インクと PEDOT:PSS 溶液の混合比を変化させることで、温度センサの高感度化への条件出しを行った。図 3 に示すように、温度センサは、温度上昇に対して線形的に抵抗が減少する結果が得られた。これは、CNT と PEDOT:PSS 界面に生じる障壁でのホッピング伝導に起因するものである。インクの混合比を CNT:PEDOT:PSS=1:3 にすることで、温度

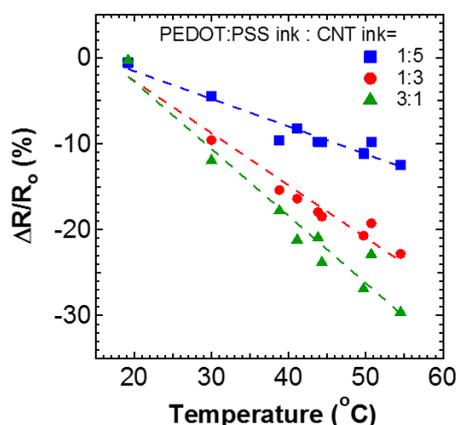


図 3 CNT インクと PEDOT:PSS 溶液の混合比による温度変化に対する抵抗変化。

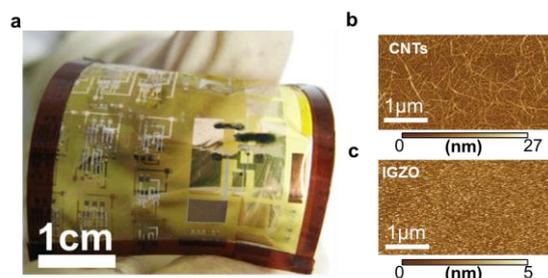


図 4 (a) 開発したフレキシブル CMOS デジタル・アナログ回路の写真。原子間力顕微鏡による (b) CNT ネットワーク薄膜と (c) InGaZnO 薄膜の表面観察結果。

センサの感度、約 0.8%/°C を得ることが可能であることを確認した。

また本稿では示さないが、歪みセンサは温度変化に対して抵抗変化はなく、温度センサは歪み印加に対してほぼ抵抗変化がないことを確認している。これは、センサを集積化させた場合においても、それぞれのセンサが各刺激を正確に計測することが可能であることを示している。

(3) CMOS 回路

本研究では、p 型 CNT-TFT 及び n 型 InGaZnO-TFT をフレキシブル基板上で集積化させることで、高性能なフレキシブルデジタル回路及びアナログ回路の作製を行った。また回路と同時に印刷形成による温度センサを集積化させることで、そのセンサ集積システムとしての実現可能性を示す。図 4 に、実際に作製した温度センサ集積フレキシブル回路を示す。p 型 CNT-TFT は CNT ネットワークを薄膜として作製した(図 4b)。まず簡単な評価として、図 4a に示すように基板を曲げても、電極や半導体材料が基板から剥離や、ひび割れが無いことを確認した。

次に TFT の定量的評価として、TFT のスイッチング ($I_{DS}-V_{GS}$) 特性の測定を行った。図 5 に示すように、両 TFT ともに、良好な I_{on}/I_{off} ($>10^5$) を示し、その移動度は、p 型 TFT で約 $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、n 型 TFT で約 $8 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であった。

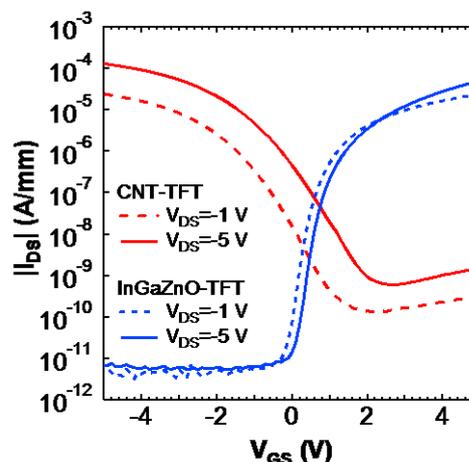


図 5 フレキシブル基板上に作製した n 型 TFT と p 型 TFT のスイッチング ($I_{DS}-V_{GS}$) 特性。

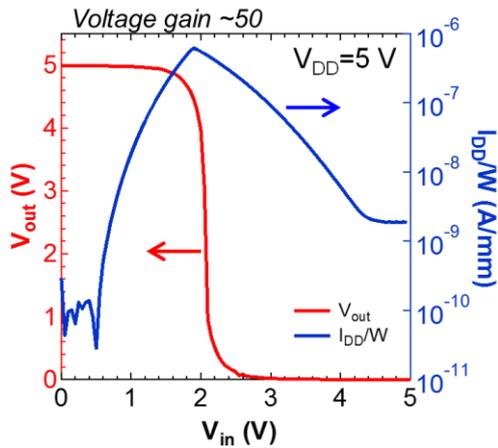


図 6 フレキシブル CMOS 回路の入出力特性と駆動電流結果。

各 TFT のスイッチング特性が良好であることを確認できたので、次に本研究で目指す低消費電力フレキシブル CMOS 回路を作製し、その電気特性評価を行った。図 6 に最も基本的な CMOS インバーター回路の入出力結果及び駆動電流を示す。まずインバーターの電圧ゲインは約 50 とフレキシブル基板上において比較的高いゲインを得ることに成功した。定常状態での消費電力は、7 nW/mm 以下であることが図 6 の駆動電流結果から算出できた。ここで消費電力値は TFT のチャンネル幅で標準化している。本消費電力は、これまで報告されている有機トランジスタによる CMOS 回路の消費電力と同等の値であった。本結果から、比較的高い移動度を有した低消費電力の CMOS 回路を実現することができた。

さらなる集積化の可能性を示すため、p 型 TFT と n 型 TFT をそれぞれ 10 個集積した JK flip-flop デジタル回路を作製した(図 7a-b)。またフレキシブルデバイスの特徴である基板を曲げた際の動作及び曲げを 500 回程度行った場合の動作についても解析を行った。図 7c には、曲げる前及び曲率半径 5.6 mm で 500 回曲げた際の出力結果 Q を示す。ここで J, K は入力信号で、駆動電圧は 5 V を用いた。結果から明らかなように、基板の曲げを 500 回行った場合でも、曲げる前の結果と同様の出力を得ることができている。これは本フレキシブルデジタル回路が、機械的曲げに対して壊れることなく動作していることを意味している。また結果は示さないが、5.6 mm の曲率半径で曲げた状態においても、回路が不具合無く動作していることを確認している。これらの結果より、本フレキシブルデバイスは機械的柔軟性を有し、高い信頼度のデジタル回路として動作可能であることを示すことができた。

デジタル回路に加え、アナログ回路も今後のフレキシブルデバイスの実用化を考慮すると非常に重要な素子である。本研究では、その第一歩として、温度センサを集積させたフレキシブル差動増幅回路を作製した。図

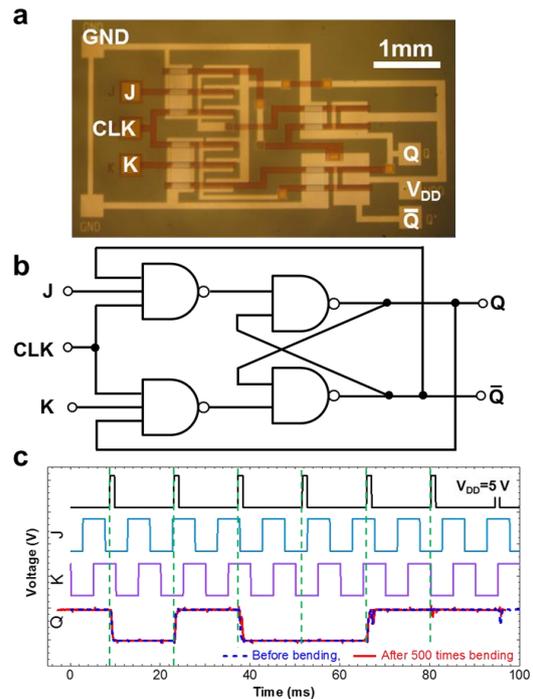


図 7 (a) 作製したフレキシブル CMOS 回路による JK flip-flop デジタル回路写真と (b) その回路図。 (c) JK flip-flop の入力と出力結果。曲率半径 5.6 mm で 500 回曲げた後の出力結果も示す。

8a-b に実際に作製したデバイス写真とその等価回路を示す。出力結果については、参考として差動増幅回路有無による温度センサの出力について測定を行った。図 8c にその出力結果を示す。増幅回路を介さない温度センサの抵抗変化分による出力電圧変化は、 1°C の変化当たり -0.012 V であったのに対し、増幅回路を用いると 29°C 以上の温度で、 1°C 当たり 0.4 V の電圧変化を実現することができた。これは出力信号を約 33 倍増幅していることを意味している。また図 8d-e に示す

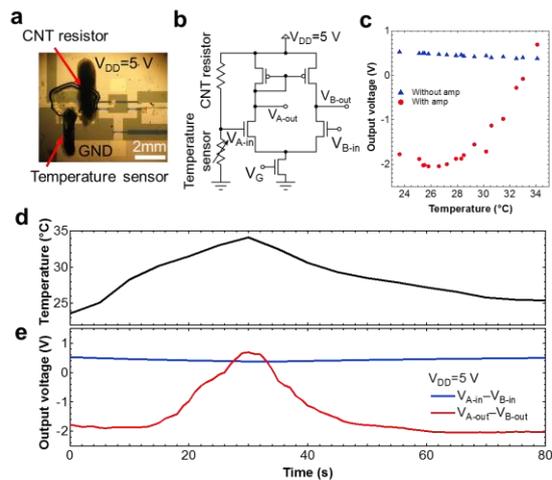


図 8 (a) 作製した温度センサ集積差動増幅回路の写真と (b) 等価回路。 (c) 差動増幅回路有無による温度センサの出力電圧結果。リアルタイム測定 of (d) 温度変化及び (e) 差動増幅回路有無による出力電圧結果。

ように、温度変化をリアルタイムで計測することも可能となっている。本研究では、人の皮膚温度計測を対象としたため、閾値温度を29℃程度としたが、本閾値については図 8b 中の CNT resistor の抵抗値や駆動電圧を変化させることで調整が可能であり、様々な応用用途へ適応可能である。

最後に、本研究では、フレキシブル基板上へのセンサ及び回路の集積化技術、特に低価格センサシート及び高性能・低消費電力デバイスに注目し研究開発を行ってきた。本稿では示していないが、これらの基礎技術を用いて高集積化へ向けた三次元集積化技術、健康管理デバイスへ向けた活動量センサ、無線コイルなど様々な可能性に着目し、材料、作製プロセス、そしてデバイス開発を行ってきた。本デバイスは、現状まだ信号処理回路などの複雑な集積回路などを実現できておらず、実用化へは、様々な課題が残されている。しかしながら、フレキシブルデバイス実用化に向けた課題の一つずつしっかりと解決することが実用化への近道であると考えられる。そして本研究で開発した技術が、その実用化へ向けたフレキシブルデバイス開発の基礎技術となることを期待し、今後も研究開発を継続する。

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 12 件)

- ① S. Nakata, K. Kanao, S. Harada, T. Arie, K. Takei, An Extremely Highly Selective Flexible Compliant Tactile Touch Sensor Sheet, *Physica Status Solidi A*, 査読有, 13, 2016, in press, DOI:10.1002/pssa.201600078.
- ② W. Honda, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Mechanically Flexible and High-Performance CMOS Logic Circuits, *Scientific Reports*, 査読有, 5, 2015, 15099, DOI: 10.1038/srep15099.
- ③ W. Honda, S. Harada, S. Ishida, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Highly Performance, Mechanically Flexible, and Vertically Integrated Three-Dimensional Carbon Nanotube and InGaZnO Complementary Circuits With a Temperature Sensor, *Advanced Materials*, 査読有, 27, 2015, 4674-4680, DOI:10.1002/adma.201502116.
- ④ Y. Yamamoto, K. Kanao, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Air Ambient-Operated pNIPAM-Based Flexible Actuators Stimulated by Human Body Temperature and Sunlight, *ACS Applied Materials & Interfaces*, 査読有, 7, 2015, 11002-11006, DOI:10.1021/acsami.5b02544.
- ⑤ S. Harada, T. Arie, S. Akita, K. Takei,

Highly Stable Liquid-Solid-Metal Contact Toward Multi-Layered Detachable Flexible Devices, *Advanced Electronic Materials*, 査読有, 1, 2015, 1500080, DOI:10.1002/aelm.201500080.

- ⑥ K. Takei, W. Honda, S. Harada, T. Arie, S. Akita, Toward Flexible and Wearable Human-Interactive Health-Monitoring Devices, *Advanced Healthcare Materials*, 査読有, 4, 2015, 487-500, DOI: 10.1002/adhm.201400546.
- ⑦ K. Kanao, S. Harada, Y. Yamamoto, W. Honda, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Highly Selective Flexible Tactile Strain and Temperature Sensors against Substrate Bending for an Artificial Skin, *RSC Advances*, 査読有, 5, 2015, 3017-30174, DOI:10.1039/c5ra03110a.
- ⑧ W. Honda, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Printable and Foldable Electrodes Based on a Carbon Nanotube-Polymer Composite, *Physica Status Solidi A*, 査読有, Vol. 11, 2014, 2631-2634, DOI:10.1002/pssa.201431481.
- ⑨ S. Harada, K. Kanao, Y. Yamamoto, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Fully Printed Flexible Fingerprint-like Three-Axis Tactile and Slip Force and Temperature Sensors for Artificial Skin, *ACS Nano*, 査読有, Vol. 8, 2014, 12851-12857, DOI:10.1021/nm506293y.

[学会発表] (計 35 件)

- ① K. Takei, Challenge and Perspective of Macro-Scale, Multi-Functional High Performance Flexible Electronics, SPIE Defense+Commercial Sensing, 2016 年 4 月 19 日, Baltimore, USA.
- ② K. Kanao, S. Nakata, T. Arie, S. Akita, K. Takei, All Solution-Processed Flexible Memory Integrated with Tactile Sensor, 29th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical System (MEMS2016), 2016 年 1 月 27 日, Shanghai, China.
- ③ S. Nakata, K. Kanao, S. Harada, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Flexible and High Selective Pressure Sensitive Rubber for Tactile Sensing, 29th IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical System (MEMS2016), 2016 年 1 月 25 日, Shanghai, China.
- ④ 竹井邦晴, 高性能・多機能フレキシブルセンサシート, 有機エレクトロニクス材料研究会 第 215 回研究会, 2016 年 1 月 22 日, 新宿 NS ビル (東京都新宿区).
- ⑤ K. Takei, Printed High Performance Flexible Device Sheets, 228th ECS Meeting, 2015 年 10 月 13 日, Phoenix, USA.

- ⑥ K. Takei, Flexible and Wearable Sensors, 16th International Conference on Human-Computer Interaction, 2015年8月7日, Los Angeles, USA.
- ⑦ K. Takei, Inorganic-Based Heterogeneously Integrated Flexible Transistors and Sensors, 15th International Meeting on Information Display (IMID2015), 2015年8月21日, Daegu, Korea.
- ⑧ K. Takei, Carbon Nanotube-Based Printed Flexible Electronics: Materials, Fabrication, and Applications, 16th International Conference on the Science and Application of Nanotube (NT15), 2015年6月28日, 名古屋大学(愛知県名古屋市).
- ⑨ S. Harada, K. Kanao, Y. Yamamoto, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Flexible, Printed Tactile, Friction, and Temperature sensor array for Artificial Skin, 18th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (Transducers 2015), 2015年6月23日, Anchorage, USA.
- ⑩ S. Harada, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Biological Inspired Superhydrophobic and Self-Cleaning Flexible Silicone Rubber, 18th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (Transducers 2015), 2015年6月25日, Anchorage, USA.
- ⑪ W. Honda, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Inorganic Material-Based Flexible CMOS Circuit and Optical Sensor, 18th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (Transducers 2015), 2015年6月24日, Anchorage, USA.
- ⑫ Y. Yamamoto, K. Kanao, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Electrical Powerless, Thermal and Optical Responsive Polymer-Based Actuator, 18th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (Transducers 2015), 2015年6月23日, Anchorage, USA.
- ⑬ 竹井邦晴, ウェアラブルデバイスの開発動向と材料ニーズ, 新化学技術推進協会次世代エレクトロニクス分科会講演会, 2015年3月17日, 新化学技術推進協会(東京都千代田区)
- ⑭ K. Kanao, S. Harada, Y. Yamamoto, W. Honda, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Printable Flexible Tactile Pressure and Temperature Sensors with High Selectivity against Bending, 28th IEEE International Conference on Micro

- Electro Mechanical System (MEMS2016), 2015年1月20日, Estoril, Portugal.
- ⑮ 竹井邦晴, 印刷形成したフレキシブルセンサシートの開発, センシング技術応用研究会第190回研究例会, 2015年1月30日, 大阪府立大学 I-site なんば(大阪府大阪市).
- ⑯ W. Honda, S. Harada, T. Arie, S. Akita, K. Takei, Printed Wearable Temperature Sensor for Health Monitoring, IEEE Sensors 2014, 2014年11月5日, Valencia, Spain.
- ⑰ K. Takei, S. Harada, W. Honda, T. Arie, S. Akita, Nanomaterial-Based Macroscale Printable Flexible Sensors, 226th ECS Meeting, 2014年10月6日, Cancun, Mexico.
- ⑱ K. Takei, Human Interactive Wearable Devices: Applications of Artificial Electronic Skins and Smart Bandages, 16th International Conference on Human-Computer Interaction (HCII 2015), 2014年6月27日, Crete, Greece.
- ⑲ K. Takei, Printable Nanomaterial Devices on User-Defined Substrates, Mingdao Forum, Business Technology Fair, 2014年5月28日, Shanghai, China.

[図書] (計 2 件)

- ① 竹井邦晴他, 技術情報協会, ウェアラブルデバイスの小型, 薄型化と伸縮, 柔軟性の向上技術(分担執筆), 2015, 510(455-463).
- ② K. Takei 他, Springer, Wearable and Flexible Sensor Sheets Toward Periodic Health Monitoring(分担執筆), 2015, 333(175-191).

[産業財産権]

○出願状況(計 1 件)

名称: 触覚センサ及び集積化センサ
 発明者: 竹井邦晴, 原田真吾
 権利者: 竹井邦晴, 原田真吾
 種類: 特許
 番号: 2014-182263
 出願年月日: 2014年9月8日
 国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

<https://sites.google.com/site/kuniharutakeijp/home>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹井 邦晴 (TAKEI, Kuniharu)
 大阪府立大学工学研究科・助教
 研究者番号: 20630833