

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：12701  
研究種目：挑戦的研究（萌芽）  
研究期間：2019～2020  
課題番号：19K21942  
研究課題名（和文）リキッドステート光エレクトロニクスの創出

研究課題名（英文）Liquid-state optoelectronics

## 研究代表者

太田 裕貴（Ota, Hiroki）

横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：30528435

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：ゴム材料により機能性液体をセンシングやアクチュエーターとして利用する液状エレクトロニクスは、柔らかい表面に電子システムを設置するために理想的なプラットフォームである。しかし、光検出器や光メモリに代表される光デバイスはこれまで提案されておらず、この進歩は現在の液体状態デバイスをシステムレベルにスケールアップする上で極めて重要である。そこで本研究では、液体金属と光スイッチング可能なイオン液体を用いた光デバイスを提案する。本研究で実現したセンシングおよびメモリーは、異なる液体材料のデバイスに対して適用でき汎用性が高い。その実証として本研究ではイオン液体を用いた光センサーと、光メモリーを実現した。

## 研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の光エレクトロニクスは、従来の半導体材料に代わり液体材料を用いて電気化学的手法で実現する。本研究は新次元の柔軟性をもつ液体エレクトロニクスをシステムレベルまで昇華させるために重要な要素技術である。ゆえに当該分野の研究発展に大きな貢献をすることは明白である。特に、ウェアラブルデバイス、ロボティクスなど他分野でも液体金属デバイスの特性・高柔軟性を利用できる。学術的には液体エレクトロニクスに“光”という新たな物理対象を加えることができる。例えば液体金属表面にある極薄の酸化膜は自己修復機能を有する。そのため光制御を行うことで自己修復材料分野への学術的波及効果を期待することができる

研究成果の概要（英文）：Liquid-state electronics utilizing functional liquids confined in soft templates as the sensing and actuating component present the ideal platform for enabling conformal coverage of electronic systems on curved and soft surfaces. However, to date, optoelectronic devices based on functional liquid materials as represented by photodetectors and optical memories still have not been proposed; this advancement is crucial to scaling up current liquid-state devices to a system level. Here, this study proposes optoelectronic devices based on liquid metal and photo-switchable ionic liquid with liquid-liquid heterojunction technology. The sensing and memory schemes we present are generic for different liquid-state devices, enabling different functionality to be added to the liquid-state electronics. As a proof of concept, we demonstrate a light sensor composed of the ionic liquid, and an optical memory using a composite of the ionic liquid and polypropylene glycol.

研究分野：機械工学

キーワード：液体金属 光エレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

研究代表者はフレキシブル材料を利用したスマートシステムの開発及び液体金属を利用した加工・ストレッチャブルセンサ開発, Liquid-state electronics の発展に携わってきた。液体金属を利用したセンサの研究は、100%を超える高い伸縮性と、電気化学反応を利用することによる固体センサの 10 倍以上の高い感度の実現できる(表 1)。本研究課題は伸縮可能センサの課題である伸縮性と感度の両立できる新たなコンセプトである。ただ当該分野の大きな進展を望む上で問題点は、最も基礎的な物理量である”光”に関わる電子素子及びシステム開発に必要なメモリの実現ができていないことである。本研究のターゲットとしている光エレクトロニクスは、従来の半導体材料に代わり液体材料を用いて電気化学的手法で実現する。同時に、本研究は新次元の柔軟性をもつ Liquid-state electronics をシステムレベルまで昇華させるために重要な要素技術である。

表 1 他の研究と比較したときの本研究の成し得る目標

	曲げ	20% 伸び	100% 程度大変形	感度
固体デバイス	×	×	×	◎
フレキシブルデバイス [1]	○	×	×	○
一般的な伸縮可能デバイス [2]	○	○	△	×
本研究の Liquid-state デバイス [3, 4]	○	○	☆	☆

[1] C. Wang et al. *Nat. Mater.*(2013), [2] J. C. Yeo et al. *Lab. Chip* (2016), [3] Y. Gao et al. *Adv. Mater.* (2017), [4] H. Ota et al. *Nat. Commun.* (2014)[1] \*数値目標に関しては[4][5]の物理センサから参考している。

2. 研究の目的

本挑戦的研究では、新たな研究分野として液体(Liquid-state)光エレクトロニクスを創出する。従来の固体半導体材料を基軸にした”Solid-state”electronics ではフォトダイオード、半導体メモリなど光エレクトロニクスが、センサからシステムに昇華させる上で重要な要素であった。本研究では Liquid-state electronics におけるデバイス設計で顕著な成果を挙げてきた研究代表者と、イオン液体で顕著な実績を有している分担者が協働することで新たな液体光エレクトロニクス分野を展開する(図 1)。本研究は従来のエレクトロニクスではなかったイオン液体の光



図 1 本研究で実現する Liquid-state 光エレクトロニクス

によるシス-トランス異性化という現象を光エレクトロニクスに適用することで(図 1 中央)、現在の先進センサの課題である高感度と大変形を両立させ、学術・技術的課題を突破する。最終的に”液体(Liquid-state)”光センサ、光メモリという世界で今まで報告に無いデバイスを実現する。

### 3. 研究の方法

材料：センサ・メモリ基材としてポリジメチルシロキサン(PDMS)を用いた。電極として液体金属 (ガリンスタン) を用い、光反応性を示す機能性液体としてイオン液体、1-butyl-3-phenylazobenzylimidazolium bis(trifluoromethane sulfonyl)amide ([Azo][NTf<sub>2</sub>]) を用いた。この [Azo][NTf<sub>2</sub>] は、紫外光と可視光の波長によって分子内の置換基の位置が変化する。その結果、可視光ではトランス体を形成し、紫外光ではシス体を形成するイオン液体である。センサでは、濃度 100 % の [Azo][NTf<sub>2</sub>] を用い、メモリでは、Polypropylene Glycol 3000 (PPG) を用いて濃度 10% に希釈した [Azo][NTf<sub>2</sub>] を用いた

加工：ガラス基板にフォトレジスト(SU-8)を塗布し、フォトリソグラフィ技術を用いてモールドを作製した。このモールドにフッ素加工を施し、液体状の PDMS を流して、熱硬化させた。また、別のガラス基板に AZ を薄く塗布し、その上に PDMS を薄く塗布し、薄膜 PDMS を作製した。硬化させた PDMS と薄膜 PDMS を化学結合させることで、デバイス基材を作製した。流路に液体金属、イオン液体の順に注入した。最後にガリンスタンの注入口に導線を挿し、注入口をシリコンでふさぐことでデバイスを作製した。デバイスの写真および加工方法を図 2 および図 3 に示す。センサは、デバイスの下部に紫外光(370 nm)と可視光(青)(470 nm)の LED を設置した。メモリに関しては、センサと同様にモールドを作製し、bit 間に壁を 3D プリンターで作製し、パリレンコートを行った。液体状の PDMS を流して、LED を搭載する部分にカバーを乗せ、熱硬化させた。以下の手順もセンサと同様に行った。

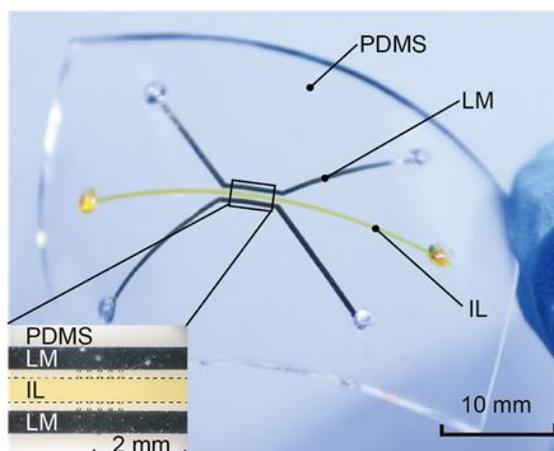


図 2 デバイスの写真

デバイスの下部に紫外光(370 nm)と可視光(青)(470 nm)の LED を設置した。メモリに関しては、センサと同様にモールドを作製し、bit 間に壁を 3D プリンターで作製し、パリレンコートを行った。液体状の PDMS を流して、LED を搭載する部分にカバーを乗せ、熱硬化させた。以下の手順もセンサと同様に行った。

実験：[センサ・メモリ]温度を 25 °C に保った恒温槽にデバイスを入れ、LED を用いて紫外光 (370 nm) と可視光(青)(470 nm)を照射した。デバイスに 1 MHz から 10 Hz の交流電圧を与え、インピーダンスアナライザを用いてナイキストプロットを求めた。このナイキストプロットから、適切な周波数を決め、その周波数の交流電圧を与え、デバイスのインピーダンスの時間変化を計測した。

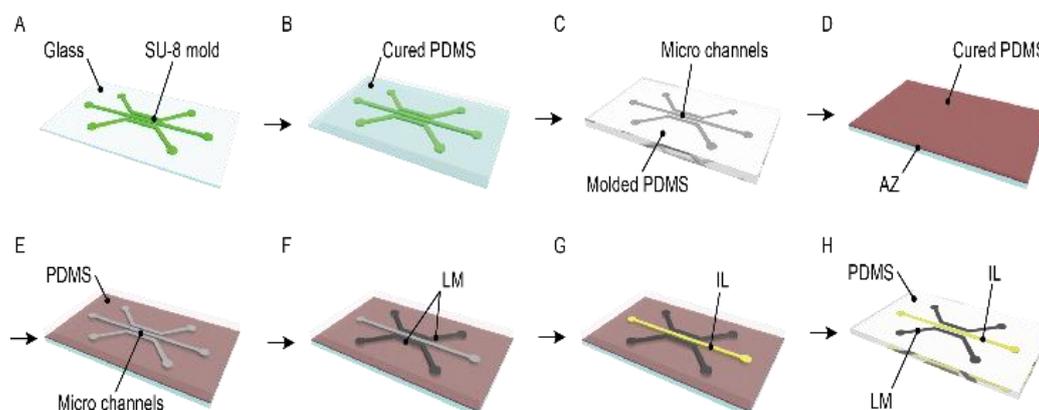


図 3 加工プロセス

#### 4. 研究成果

[センサ]センサの特性評価を図4に示す。UVを4V・6V・8V・10Vの強さで照射し、同様にBLUEでも検討した。その際のインピーダンスの変化を確認すると、与える光の強度によって一定値の変化を示し、UVはBLUEより大きく変化した。以上から、照射光の波長変化を検出できる光センサとして活用できることが示唆された。

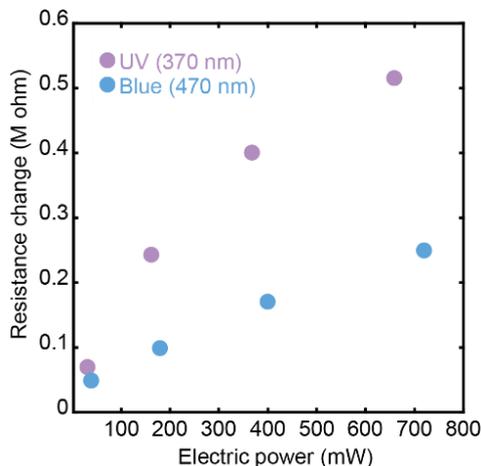


図4 光センサの光(青、紫外)照射に対する抵抗値変化

[メモリ]メモリの特性評価を図5に示す。UV光を10Vで60秒照射、BLUE光を8Vで60秒照射を10回繰り返し、ときのインピーダンス変化の再現性の確認をした。波長の変化によってインピーダンス値が最大11.5%変化した。波長によってインピーダンスの違いがあり、光が当たっていない状態でインピーダンスを保持しているため、青い光のときを0、紫外光のときを1とするメモリを作製することができる。UV光とBLUE光とともに照射する強度を変えることで、インピーダンスの変化量に変化があることが分かった。10回のUV光とBLUE光照射の繰り返しによってインピーダンス値が変わ

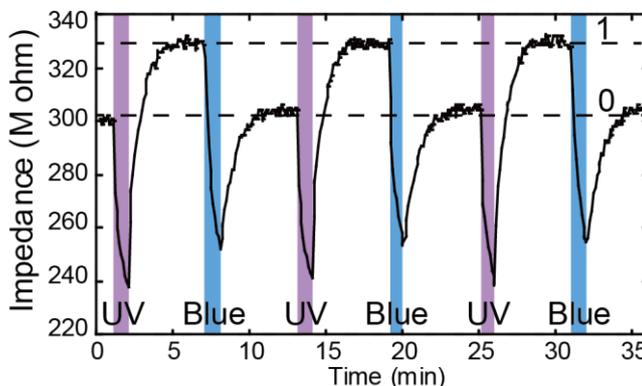


図5 光メモリの特性評価

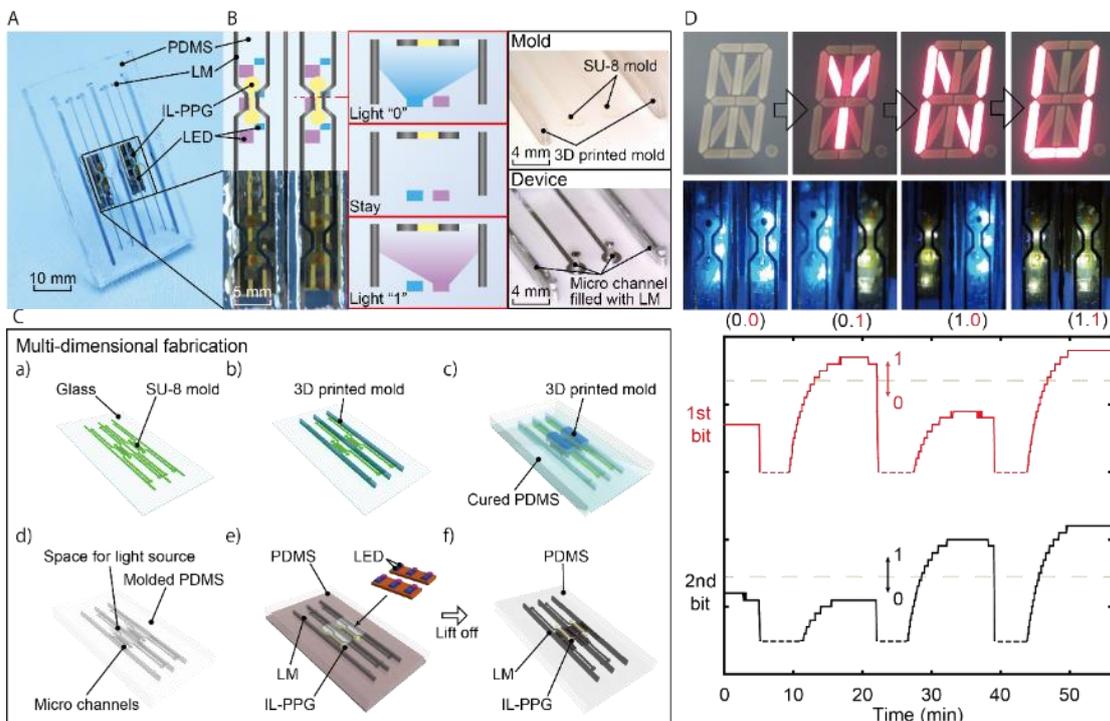


図6 2bitの光メモリ。A. デバイス外観、B. メモリの原理、C. 加工プロセス、D. ディスプレイ表示。

らなかったため、再現性があることが確認できた。さらに2bitのメモリの作製を行った(図6A)。実際には、BLUEとUVのLEDチップをデバイス内に埋め込み、2bitがお互いに干渉しないように、3次元プリンティングにより、“壁”を作製した(図6B,C)。そのうえで、2bitのメモリによるディスプレイ表示を行った。BLUEでは0、UVでは1として、“Y”、“N”、“U”の三文字を制御した。その結果、表示を制御することができ、液体材料によるメモリを実現した(図6D)。

以上の様に、液体金属とイオン液体を用いて光センサと光メモリを実現して光エレクトロニクスを提唱できた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ken Matsubara, Daiki Tachibana, Ryosuke Matsuda, Hiroaki Onoe, Ohmi Fuchiwaki, and Hiroki Ota	4. 巻 -
2. 論文標題 Hydrogel Actuator with a Built-In Stimulator Using Liquid Metal for Local Control	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Intelligent Systems	6. 最初と最後の頁 2000008
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/aisy.202000008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Takashi Kozaki, Satoshi Saito, Yota Otsuki, Ryosuke Matsuda, Yutaka Isoda, Takuma Endo, Fumika Nakamura, Takuto Araki, Taichi Furukawa, Shoji Maruo, Masayoshi Watanabe, Kazuhide Ueno, and Hiroki Ota	4. 巻 NA
2. 論文標題 Liquid-State Optoelectronics Using Liquid Metal	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 1901135
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/aelm.201901135	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 T. Kozaki, S. Saito, Y. Otsuki, R. Matsuda, Y. Isoda, T. Endo, F. Nakamura, T. Araki, T. Furukawa, S. Maruo, M. Watanabe, K. Ueno, H. Ota
2. 発表標題 Highly deformable optoelectronics using liquid metal.
3. 学会等名 2020 IEEE 33rd International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Matsubara, Y. Tanaka, O. Fuchiwaki, H. Ota
2. 発表標題 Electrically controlled gel actuator using liquid metal electrode.
3. 学会等名 2020 IEEE 33rd International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 H. Ota
2. 発表標題 Wearable Devices for Vital Sensing with Advanced Organic and Liquid Materials.”
3. 学会等名 2019 IEEE International Symposium on Micro-NanoMechatronics and Human Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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
研究分担者	上野 和英  (Ueno Kazuhide)  (30637377)	横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授    (12701)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------