

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 21 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K21140

研究課題名(和文)伸縮性導体と有機半導体を用いた高性能フレキシブル電子デバイスの印刷形成

研究課題名(英文)Printing fabrication of high-performance flexible devices integrated with stretchable conductors and organic transistors

研究代表者

荒木 徹平 (Araki, Teppei)

大阪大学・産業科学研究所・助教

研究者番号：10749518

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：最近、ウェアラブルデバイスの実現に向けて、衣服や肌に貼り付けても違和感のない柔らかさ有する電子デバイス技術の開発が進められている。また、大量製造可能なロール・トゥ・ロールプロセスにおいて、電子材料を印刷により短時間形成することが期待されている。そこで、本研究では、ストレッチャブル印刷微細配線技術を用いて、印刷配線と有機トランジスタの接続技術の確立を行い、フレキシブル電子デバイスの印刷形成という課題に取り組んだ。その結果、高伸縮性や耐大気安定性を有する柔軟材料の開発、硬い素子と柔らかい素子を接続可能なパタニング技術、生体信号取得に必要な回路設計技術などの開発に至った。

研究成果の概要(英文)：Recently, developments of flexible devices which can be placed on cloths and skins have been studied to reduce discomfort during wearing these wearable devices. Meanwhile, the printing technology have been an important technology for a fabrication of electronic devices to realize large area and cost efficiency. In our study, integration technologies between stretchable conductors and organic transistors and it's peripheral technologies were developed with printing technologies. For example, conductors with high-stretchability and atmospheric stability, substrates integrated with rigid and soft materials, circuit designs for bio-signal sensing, etc.

研究分野：Material science

キーワード：Stretchable conductor Organic transistor Printing process Wearable device

1. 研究開始当初の背景

従来のエレクトロニクスでは、回路を構成するため、電極や信号伝送線としての導電性材料や、トランジスタのように信号のスイッチングや増幅を行うための半導体材料が欠かせない。しかし、ウェアラブルエレクトロニクスにおける電子材料開発においては、シリコンやセラミックスなどの硬くて脆い材料ではなく、フレキシブル配線や有機半導体の材料研究が盛んになってきている。さらに、それらの材料を、新聞印刷のように連続的なロール・トゥ・ロール印刷によりポリマー基板上へ形成できれば、フレキシブル電子デバイスの大面積化・低価格化・省資源生産を得ることが可能である(図1)。これらの電子デバイス技術は、ウェアラブルまたはインプラント可能なヘルスケアデバイスを代表とするメディカル分野のみならず、フレキシブルセンサなどのロボティクス分野、柔らかいディスプレイや太陽電池などの家電分野においても重要である。

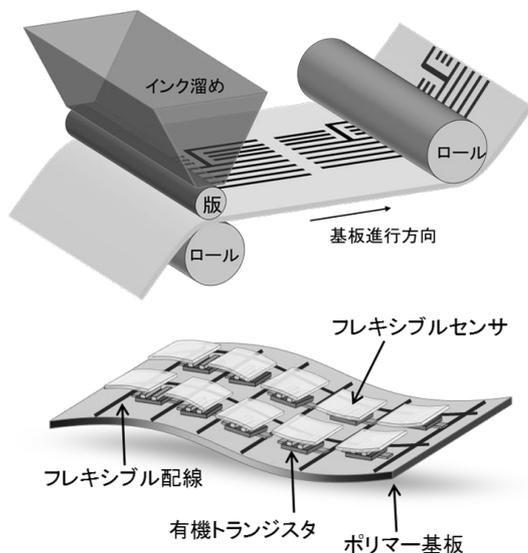


図1. ロール・トゥ・ロール印刷技術が実現するフレキシブルデバイス。模式図(上段図は印刷形成プロセス、下段図は柔軟な大面積センサ)

2. 研究の目的

現在まで、柔軟なトランジスタやそのアレイが開発されつつある。しかし、柔軟なトランジスタアレイは、素子のひずみを抑えるために、たいへん煩雑な形成手順や構造をしている。例えば、予め伸長させたフィルム上にトランジスタを転写し、伸長緩和後にトランジスタを波型へ成形する報告[1]や、穴をあけた網目状フィルムへトランジスタ作製した例[2]がある。また、OLED やセンサなどの柔軟な電子デバイスは、くしゃくしゃに折れ曲がるものの、電子材料の伸長性に欠ける[1, 3]。そのため、湾曲させると電子デバイスが曲面へ完全にフィットせず、素子自体が曲面外へ

飛び出していた。また、柔軟な電子デバイスへ使用された伸縮性導体は、サブミリ程度 [4, 5] の集積にとどまっている。そこで本研究では、簡便な印刷技術に基づき、伸縮可能な微細配線および有機トランジスタを形成し、超柔軟な有機トランジスタアレイの作製を行う。

3. 研究の方法

研究課題遂行に向けて次の3つのフェーズを設定した。

- フェーズ 「超柔軟構造の開発」: 伸縮性導体と有機トランジスタを簡便に印刷形成するために、素子構造や作製手法を検討する。
- フェーズ 「有機トランジスタの高性能化」: 界面現象(伸縮性導体 - 有機トランジスタ、有機半導体 - 電極など)を明らかにして、有機トランジスタの高性能化を図る。
- フェーズ 「回路設計、作製プロセスの信頼性向上」: 有機トランジスタアレイの回路設計を行い、有機半導体素子の特性ばらつきを抑える。

各フェーズにおいて、伸縮・曲げなどの変形をデバイスへ与えて、素子の特性評価および顕微鏡観察による解析を行いながら、変形時における導電性材料や有機半導体の特性維持を図る。また、必要に応じて、材料や作製手法の開発を行う。

4. 研究成果

本研究では、ストレッチャブル印刷微細配線技術を用いて、印刷配線と有機トランジスタの接続技術の確立を行い、フレキシブル電子デバイスの印刷形成という課題に挑戦する。アプリケーションとして、人体などの曲面にしっかりフィットする伸縮可能な超柔軟トランジスタの開発を目標としており、「超柔軟構造の開発」、「有機トランジスタの高性能化」、および「回路設計、印刷プロセスの信頼性向上」を行った。その結果、伸縮性や透明性に優れた銀ナノワイヤ電極を20 μm幅まで微細化可能な塗布形成技術を構築し、透明トランジスタの開発に成功した。また、有機半導体を用いた柔軟なトランジスタ回路の設計技術を構築した。

フェーズ 「超柔軟構造の開発」に関して、ヤング率の硬/柔パターンニング制御を行った基板を塗布技術により作製し、伸縮中でも硬部に形成したマトリクス状素子が全て動作することを確認した。また、フェーズ では、導電性材料の高特性化も行っており、銀塩インクや銀ナノワイヤインクを用いた微細配線の塗布形成にも成功した(図2)。銀塩インクに関しては、鏡面を得られる素材であるため、表面平滑性が求められる有機トランジス

タ素子内の電極(ソース・ドライン・ゲート)として大変期待が高い。一方、銀ナノワイヤ材料に関しては、レーザー技術により伸縮性のある電極を開発した。さらに、高強度光照射処理などの表面処理技術を用いることにより、大気安定性や変形への耐久性、耐電流・耐電圧を向上させた高特性なストレッチャブル透明配線の作製にも成功した(図 3)。これらの配線は、有機トランジスタ素子内だけでなく素子外の接続配線としても使用可能であり、柔軟性を有する透明デバイスの開発に重要である。

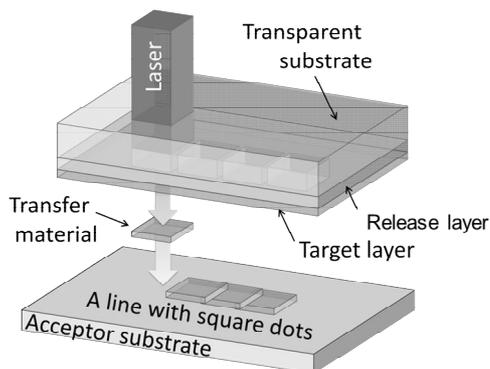


図 2. Laser Induced Forward Transfer による微細配線形成

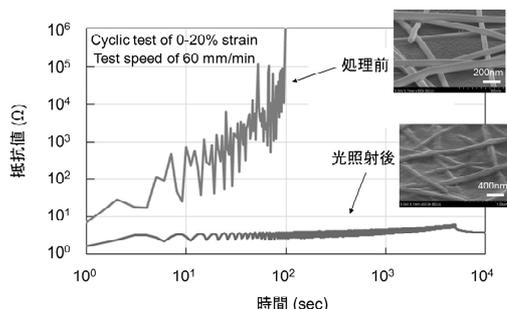


図 3. 高強度光照射による銀ナノワイヤ透明導電膜の伸縮性向上

フェーズ 「有機トランジスタの高性能化」に関して、パリレン絶縁膜形成と電極表面処理技術を構築することによって、3V 以下の駆動と同時に大面積製造での歩留まりを改善した。有機素子内の界面現象を原子間力顕微鏡で観察した結果、表面平滑性が向上していた。表面平滑性がトランジスタ特性やプロセス性の向上に起因している。さらに、ソースとドレイン電極へも表面処理を行うことにより、注入障壁を低減させて ON 電流の改善を行った。

フェーズ 「回路設計、印刷プロセスの信頼性向上」に関しては、フェーズ の表面処理技術や自己組織化膜などの技術も導入しながら疑似 CMOS 回路や差動増幅回路の作製を試み、設計技術の構築および動作確認を行った。また、デバイスの高特性化を行うために、チャンネル長やソース・ドレイン幅を

20 μ m まで微細化できる塗布技術を、基板の表面エネルギー制御を組み合わせることによって実現した。この微細配線技術の特徴は、アスペクト比の高い銀ナノワイヤを用いて透明性や伸縮性を有する印刷微細電極を 100 μ m 以下で形成可能な点である。光透過性を有する有機トランジスタ回路を用いた新規ウェアラブルデバイス開発に期待がかかる。

本研究では、人体などの曲面にしっかりフィットするフレキシブルデバイスの印刷形成に直結する多くの知見や技術を各フェーズで得た。特に、伸縮可能な微細配線が素子を電気的に接続しながらデバイスにかかるひずみを負担するために必要な超柔軟構造を印刷技術により実現した。

引用文献

- [1] M. Kaltenbrunner et al., Nature, 499, 458-465, 2013.
- [2] T. Sekitani et al., MRS Bulletin, 37, 236-245, 2012.
- [3] V. J. Lumelsky et al., IEEE Sensors J. 1, 41-51, 2001.
- [4] T. Sekitani et al., Nature, 8, 494-499, 2009.
- [5] D. Kim et al., Adv. Mater., 21, 3703-3707, 2009.

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 6 件)

1. Laser-induced forward transfer of high-viscosity silver precursor inks for non-contact printed electronics Tetsuji Inui, Rajesh Mandamparambil, Tepei Araki*, Robert Abbel, Hirota Koga, Masaya Nogi, and Katsuaki Sugauna RSC Advances, 5 (95), pp.77942-77947, 2015.9.9
2. Facile Fabrication of Stretchable Ag Nanowires/Polyurethane Electrode based on High Intensity Pulsed Light Technique Yang Yang, Su Ding, Tepei Araki*, Jinting Jiu, Tohru Sugahara, Jun Wang, Jan Vanfleteren, Tsuyoshi Sekitani, and Katsuaki Sugauna Nano Research, 9 (2), pp.401-414, 2016.2.1
3. One-Step Fabrication of Stretchable Copper Nanowire Conductors by a Fast Photonic Sintering Technique and Its Application in Wearable Devices Su Ding, Jinting Jiu, Yue Gao, Yanhong Tian, Tepei Araki, Tohru

- Sugahara, Shijo Nagao, Masaya Nogi, Hirotaka Koga, Katsuaki Sugauma, and Hiroshi Uchida
ACS Applied Materials and Interfaces, 8 (9), pp. 6190-6199, 2016.3.9
4. Rapid self-assembly of ultrathin graphene oxide film and application to silver nanowire flexible transparent electrodes
Chunhui Wu, Jinting Jiu, **Teppe Araki**, Hirotaka Koga, Tsuyoshi Sekitani, Hao Wang, and Katsuaki Sugauma
RSC Advances, 6 (19), pp. 15838-15845, 2016.1.26
 5. Ultraflexible and ultrathin polymeric gate insulator for 2 V organic transistor circuits
Masaya Kondo, Takafumi Uemura, Takafumi Matsumoto, **Teppe Araki**, Shusuke Yoshimoto, and Tsuyoshi Sekitani
Applied Physics Express, 9 (6), 061602, 2016.5.26
 6. Stretchable and transparent electrodes based on patterned silver nanowire by laser-induced forward transfer for non-contacted printing technique
Teppe Araki*, Rajesh Mandamparambil, Dirk van Bragt, Jinting Jiu, Hirotaka Koga, Jeroen van den Brand, Tsuyoshi Sekitani, Jaap den Toonder, and Katsuaki Sugauma
Nanotechnology, 27 (45), 45LT02 (8 pages), 2016.10.7

[学会発表](計 13 件)

1. Wearable Resistance Type Strain Sensor Based on Long Silver Nanowires Synthesized by One Step Polyol Method
Teppe Araki, Katsunari Sato, Tooru Sugahara, Jinting Jiu, Tsuyoshi Sekitani, Katsuaki Sugauma
2015 Materials Research Society (MRS) Spring meeting & exhibit, LL6.16, Sun Francisco, the United States of America, 2015.4.8 (Poster)
2. Synthesis of long silver nanowires for flexible applications fabricated at low temperature
Teppe Araki, Jinting Jiu, Tsuyoshi Sekitani, and Katsuaki Sugauma
BIT's 4th Annual World Congress of Advanced Materials (WCAM) -2015, Sector 5-4: Nano Thin Films and Coatings, Chongqing, China, 2015.5.29 (Oral)
3. 有機トランジスタを用いた超軽量・超薄膜生体センサ
荒木徹平

- The Chem-Bio Informatics Society (CBI)学会 2015 年大会, FS-11. 5, 東京船堀, 2015.10.29 (口頭, 招待)
4. Organic transistors and stretchable conductors for ultra-flexible bio-sensors
Teppe Araki, Tsuyoshi Sekitani
The 3rd international conference on advanced electromaterials (ICAE) 2015, FE IN-1, Jeju, Korea, 2015.11.17 (Oral, invited)
 5. Silver Nanowires Based Stretchable and Transparent Electrodes
Teppe Araki, Tsuyoshi Sekitani
BIT's 2nd Annual World Congress of Smart Materials-2016 (WCSM-2016), Focus 303: Nanofilm, Central Singapore, Singapore, 2016.3.5 (Oral)
 6. 生体信号センシングにむけた銀ナノワイヤ柔軟電極の開発
荒木徹平, 吉本秀輔, 植村隆文, 関谷毅
第 30 回エレクトロニクス実装学会春季講演大会, プリントブルデバイス実装 22C3-1, 東京・目黒, 2016.3.22 (口頭, 招待)
 7. High Electrical Stability of Silver Nanowires-Based Multi-Channel Electrodes for Implantable Neural Interface Monitoring with Wireless Recording System
Teppe Araki, Fumiaki Yoshida, Shusuke Yoshimoto, Takafumi Uemura, Masaya Kondo, Takafumi Suzuki, Masayuki Hirata, Tsuyoshi Sekitani
2016 Materials Research Society (MRS) Spring meeting & exhibit, Symposium SM2: Bioinspired Dynamic Materials-Synthesis, Engineering and Applications, Phoenix, the United State, 2016.3.30 (Poster)
 8. Ultra-Thin Parylene Gate Insulator for Low-Voltage-Operating Organic Transistor Circuits
Masaya Kondo, Takafumi Uemura, Takafumi Matsumoto, **Teppe Araki**, Shusuke Yoshimoto, Tsuyoshi Sekitani
2016 Materials Research Society (MRS) Spring meeting & exhibit, Symposium SM2: Bioinspired Dynamic Materials-Synthesis, Engineering and Applications, Phoenix, the United State, 2016.4.1 (Oral)
 9. Ultra-Flexible Organic Amplifier System using Pseudo-CMOS Circuits for a Wireless Biosignal Detection
Takafumi Uemura, Takafumi Matsumoto, Masaya Kondo, **Teppe Araki**, Shusuke Yoshimoto, Tsuyoshi Sekitani
2016 Materials Research Society (MRS) Spring meeting & exhibit, Symposium

- SM2: Bioinspired Dynamic Materials-Synthesis, Engineering and Applications, Phoenix, the United State, 2016.4.1 (Oral)
10. Printable stretchable electrodes based on silver nanowires
Teppe Araki, Tsuyoshi Sekitani International Nanotechnology Conference & Expo, Session 4 Materials Science and Engineering, Nanomedicine, and Nanoelectronics and Bio medical Devices, Baltimore, USA, 2016.4.6 (Oral)
 11. High stability of silver nanowire based electrodes for bio-sensors
Teppe Araki, Shusuke Yoshimoto, Takafumi Uemura, Masaya Kondo, Tsuyoshi Sekitani International Conference on Electronics Packaging (ICEP) 2016, TB2 Printed Electronics-2, TB2-2, Sapporo, Hokkaido, 2016.4.21(Oral, invited)
 12. Facile fabrication of stretchable Ag nanowire/polyurethane electrodes using high intensity pulsed light
Yang Yang, **Teppe Araki**, Jinting Jiu, Tohru Sugahara, Jan Vanfleteren, Tsuyoshi Sekitani, Katsuaki Sugauma The world's premier nanotechnology conference for industry, Leuven, Belgium, 2016.5.10 (Poster)
 13. Development of low-temperature curable, flexible electrical isotropic conductive adhesive
Y. Okabe, **T. Araki**, H. Koga, T. Go, K. Sugauma, M. Akimoto IEEE NANO 2016, Sendai, Japan, 2016.8.23 (Oral)

〔図書〕(計8件)

1. 銀フレーク・ポリウレタンペーストを用いた伸縮性導体の開発とその応用
荒木徹平、能木雅也、菅沼克昭 導電性フィラー・導電助剤に関する技術資料集, 技術情報協会, 1820, 469-473, 2015.6
2. ストレッチャブル配線の材料とプロセス技術
荒木徹平、関谷毅、菅沼克昭 Materials stage, 技術情報協会, 15 (9), pp.9-15, 2015.12
3. ロング銀ナノワイヤを用いた透明導電膜と伸縮性導体
荒木徹平、関谷毅、菅沼克昭 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, 技術情報協会, 1844, 117-122, 2015.12
4. フレキシブルエレクトロニクスに向けた印刷形成可能なストレッチャブル導

電性材料の開発

- 荒木徹平**、関谷毅、菅沼克昭 月刊ファインケミカル, シーエムシー出版, 45 (6), pp.6-12, 2016.6
5. 銀ナノワイヤを用いたストレッチャブル透明導電膜
荒木徹平、菅沼克昭、関谷毅 エレクトロニクス実装学会誌, エレクトロニクス実装学会, 19 (4), pp.228-233, 2016.7
 6. 柔軟なウェアラブルデバイスに向けた銀ナノワイヤ配線の開発
荒木徹平、菅沼克昭、関谷毅 IoTを指向するバイオセンシング・デバイス技術, CMC出版, pp.136-144, 2016.11
 7. Applications of Printed Silver Nanowires Based on Laser Induced Forward Transfer (LIFT)
Teppe Araki, Rajesh Mandamparambil, Jinting Jiu, Tsuyoshi Sekitani, Katsuaki Sugauma Wiley-VCH, Nano materials for 2D and 3D printing, 265-273, 2017.2
 8. ウェアラブルデバイスのための印刷可能なストレッチャブル配線
荒木徹平、吉本秀輔、植村隆文、菅沼克昭、関谷毅 ヘルスケア・ウェアラブルデバイスの開発, CMC出版, pp.45-51, 2017.3

〔産業財産権〕

出願状況(計2件)公開前

〔その他〕

ホームページ:

www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/aed/

6. 研究組織

(1)研究代表者

荒木徹平 (ARAKI, Tepei)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号: 10749518

(2)研究協力者

関谷毅 (SEKITANI, Tsuyoshi)
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号: 80372407
植村隆文 (UEMURA, Takafumi)
大阪大学・産業科学研究所・特任准教授
研究者番号: 30448097
吉本秀輔 (YOSHIMOTO, Shusuke)
大阪大学・産業科学研究所・助教
研究者番号: 80755463