

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月31日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23655179

研究課題名（和文） フレキシブルチューブを基板とする有機デバイス構造の構築

研究課題名（英文） Construction of the organic flexible tube devices

研究代表者

片平 賀子 (KATAHIRA YOSHIKO)

九州大学・総合理工学研究院・助教

研究者番号：90315143

研究成果の概要（和文）：

フレキシブルチューブを基板かつ封止保護膜として、有機半導体材料の溶液をチューブ内に通過させることにより製膜する簡易プロセスで有機フレキシブルチューブデバイスを作製、そのチューブデバイスを複数接続することでシート状に成形、さらに異なる機能を持つチューブを組み合わせた多機能チューブデバイスに展開し、ある程度のチューブ径までは発光素子、光電変換素子ともに発光効率、変換効率の向上を達成し、発光素子のみ、光電変換素子のみという具合に同種のデバイスチューブを並列に配置し、2次元フレキシブルデバイスを作製が可能であることを実験例を持って示した。

硬質基板の使用という制約を取り除き、自由度の高い、有機半導体の特徴を最大限に活用したフレキシブルチューブデバイスの電子デバイスとしての有効性を実証できたと考える。

研究成果の概要（英文）：

It made organic light emitting diodes by simple method flowing the solution of the organic semiconductor materials in flexible tubes as substrates and the sealing protectors, in connecting plural tube devices like sheets.

It showed highly efficient organic light emitting diodes and bulk heterojunction photovoltaic cells with an experiment example.

It was able to demonstrate the effectiveness that utilized an organic materials characteristic to the maximum and removed limitation of the use of the hard substrates.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：化学

科研費の分科・細目：材料化学・機能材料・デバイス

キーワード：有機半導体デバイス、フレキシブルチューブデバイス

1. 研究開始当初の背景

今日の情報化社会の基礎となるエレクトロニクスはトランジスタやダイオード、太陽電池といった半導体デバイスを組み合わせ

ることによって実現されている。特に、携帯電話等の情報端末機器には、小型・薄型・軽量化、耐衝撃性、低消費電力など利便性が求められている。それらを実現する技術としてフレキシブルデバイスの開発に期待が寄せ

られている。フレキシブルデバイスは、シート状のプラスチックフィルム上に電子デバイスを形成したもので、軽量かつ柔軟、透明であることが最大の特徴である。その作製方法として有望視されているのが印刷法であり、従来の半導体製造技術に比べ、製造プロセスを短縮し、生産エネルギーも使用材料も格段に抑えることができ、環境への負荷軽減のために有効な技術である。印刷法では、インク状にすることのできる有機半導体材料だけでなく、金属ナノ粒子やカーボン・ナノチューブ (CNT) などのナノスケール材料が用いられ、高速高精細な半導体塗布技術などの要素技術の開発に加え、単純積層工程だけで作製できる有機 EL ディスプレイ、有機トランジスタ、有機太陽電池、電子ペーパー、無線タグ、不揮発性メモリ、科学・物理センサーなどのデバイス開発が活発に行われている。

2. 研究の目的

シリコン半導体を駆使するエレクトロニクスはこの半世紀の研究開発でその真価を際限なく発揮してきた。一方、高効率で電気-光変換を行う有機半導体デバイスである有機薄膜発光ダイオード (有機 LED) の研究が実り、有機 EL と呼称される高性能フルカラーフラットパネルディスプレイが実用化されるに至った。また、有機材料を用いるエレクトロニクスは有機 LED だけでなく、有機薄膜レーザー、有機薄膜トランジスタ、有機薄膜太陽電池などの応用分野で大きな期待が持たれ、世界中で急速に研究展開されている。しかし、有機デバイスの研究開発が進展し、実用化に至り、動作原理や材料設計指針もある程度明確になってきた現在でさえ、既存のシリコンデバイスに取って代わる技術を提供するものではなく、あくまでもそれを補強、補完するものである。そこで、現在のエレクトロニクスが抱える硬質基板の使用という制約を取り除き、自由度の高い、有機半導体の特徴を最大限に生かしたフレキシブルデバイスで究極の性能を達成されれば、将来、今日の半導体技術では不可能な高度エレクトロニクス技術を構築するための基盤技術をも提供するものに成長すると考える。

本研究ではこの有機 LED の成功の上に立って、あらかじめフレキシブル性をもち、支持・保護膜として利用できるチューブに直接デバイスを作り込むこと、溶液を通過した後、乾燥またはアニールさせるといったシンプルな手法の繰り返しで作製する技術を開発すること、有機フレキシブルデバイスの潜在的な可能性を追求することである。

フレキシブルチューブを基板かつ封止保護膜として、有機半導体材料の溶液をチュー

ブ内に通過させることにより製膜する簡易プロセスで有機フレキシブルチューブデバイスを作製し、そのチューブデバイスを複数接続することでシート状に成形し、さらに、異なる機能を持つチューブを組み合わせた多機能チューブデバイスに展開し、広汎な応用範囲を持つ新しい有機デバイスの創製を目指す。

3. 研究の方法

一般に有機デバイスはITO ガラス基板などに有機薄膜を積層することで作製されている。これらの基板はデバイスの大面積化に対応する際に、たわみや破損に慎重にならなければならないため、デバイスとしての応用範囲が極めて限られている。チューブはフレキシブル性をもち、支持・保護膜として利用できる性質を有すると同時に電極材料、有機半導体材料との密着性を、また、電極材料、有機半導体材料は有機デバイスとして高性能を保持しつつ溶解性、流動性を備えなければならない。

フレキシブルデバイスを作製する上で、基板に要求される条件、①透明性、耐熱性、耐薬品性に優れている、②酸素や水蒸気に対するバリア性が高い③、線膨張係数が小さいなどを満たし、また、剛直な直線状高分子で、分子を配向させると配向方向に負の線膨張係数をもつ液晶ポリマーチューブも材料選択の一つと考え、硬質基板の代わりとなるフレキシブルチューブの材質、形状を検討する。

電極材料は金属溶液 (ITO 溶液など) や導電性高分子 (PEDOT : PSS など)、有機半導体材料は動作安定性、雰囲気安定性を備えることはもちろん、常温、常圧プロセスでの製膜を可能にするため、真空蒸着法を必要とする低分子系有機半導体や分子を配向させるために高温アニールを必要とするオリゴマー系材料よりも溶剤に可溶性な高分子系材料が望まれる。高効率有機デバイスに汎用されている高分子系材料を基に、フレキシブルチューブデバイスに必要な溶解性、流動性を備えた既存の材料に囚われない、新規半導体材料の開発を視野に入れて探索を行う。

次に、有機半導体材料の溶液をチューブ内に流し込むという簡単な製膜法によるデバイス作製法を確立する。チューブの材質、形状、チューブ口径、長さによるだけでなく、用いる半導体の物性によって製膜条件が異なる。溶液の調製時には溶媒の種類、溶液濃度、溶液温度などチューブ内に流しこむための流動性を重視し、製膜時には溶液の流速、流量、チューブ内温度など膜厚を制御する。また、チューブ内を流し込む溶液は、電極材料、有機半導体材料、電極材料の順であるが、チューブ内最中央の電極は薄膜にこだわら

ず、金線などの既存の導線も利用する。まず手始めに、チューブを2等分したハーフパイプ状の基板上に電極材料、有機半導体材料を流し込み、デバイス特性を評価する。電子デバイスとして駆動させるポイントとなるのは構成薄膜の緻密性、密着性、平坦性などの膜質であることから表面観察を行い、最適化を行う。

異なる半導体を同一基板上に集積化、高密度化するためにはパターニングにより基板に微細加工が必須となり、ハンドリング上の制約がある。また、せっかく基板上に製膜しても必要部分以外は除去するなど利用効率が悪い。チューブデバイスを用いて必要な部分のみ膜を形成する Full-Additive プロセスを実行し、大面積化に対応するためには複数のチューブデバイスを並べるが必要不可欠である。まずは、発光素子のみ、光電変換素子のみという具合に同種のデバイスチューブを並列に配置または格子状に接続して2次元、3次元フレキシブルデバイスを作製する。さらに、発光素子チューブ+光電変換素子チューブのような異種のデバイスチューブを組み合わせでデバイス特性を評価するとともに配線技術を確立する。さらに、異なる機能を持つチューブデバイスを作製し、それらの繊維を編み込んで布を作りだすように並列、格子状に接続して形状、サイズの制約がない2次元、3次元多機能デバイスの作製を試みる。

4. 研究成果

(1)フレキシブルチューブ基板の材質の検討、電極材料、有機半導体材料の探索

有機フレキシブルチューブデバイスに適用するために化学修飾などを施すことで従来から用いられている有機材料の電子物性を損なわず、新たな機能をも付与する可能性についてデータを蓄積する意味から、フレキシブルチューブ基板、電極材料、有機半導体材料の組み合わせにより、発光デバイスにおいては発光効率を、太陽電池においては変換効率の系統的な実験を実施し、評価、考察を行った。

(2)素子作製条件の確立

電子デバイスとして駆動させるためには、構成薄膜の緻密性、密着性、平坦性などの膜質が重要であり、チューブの材質、形状だけでなく、用いる半導体の物性によって製膜条件が異なるため、チューブ内に流しこむための流動性を重視して溶媒の種類、溶液濃度、溶液温度、溶液流速、流量、チューブ内温度などを設定し、ある程度の大きさのチューブ径を用いた場合の基本となる素子作製条件を確定することができた。

(3)複数本組み合わせたフレキシブルチューブデバイスの実証

フレキシブルチューブ内にデバイスを形成することが可能であること、発光素子のみ、光電変換素子のみという具合に複数の同種のデバイスチューブを並列に配置することにより容易にシート状に成形が可能であることを証明した。さらに、発光素子チューブ+光電変換素子チューブのような異種のデバイスチューブを組み合わせでデバイス特性を評価するとともに配線技術の確立を、格子状やらせん状に繊維のように編み込むことにより自由にデバイスサイズのアレンジを、チューブ1本1本を発光素子、光電変換素子などに機能分離し、基板の微細構造と同様の効果が得られるよう試みたが、フレキシブルチューブの口径サイズのさらなる最細化の必要があることがわかった。

(4)フレキシブルチューブデバイスの高性能化：

デバイス特性を示す従来の高分子系半導体は溶解性、キャリア輸送性を付加するため、化学修飾を施さなければならず、合成、精製が難しくなる傾向がある。そこで、任意の高分子系材料にその他の低分子材料、ナノ材料を混合、分散させた半導体溶液を調製することによりデバイス効率の向上を図った。また、チューブ自体に支持、保護以外の導電性、配向性などの機能をもたせたり、変形チューブ（凹凸構造（テクスチャー構造）など）を使用することで高効率デバイスの作製に着手した。

また、材料選択、デバイス構造の最適化による従来の性能向上へのアプローチに加え、そのフレキシブルチューブ自体の機能付加、つまりチューブに支持、保護以外の導電性、配向性などの機能をもたせたり、チューブを変形させることで高効率化の糸口になることも確認した。

フレキシブルチューブおよび新規作製技術によりディスプレイをはじめとする電子機器の形態と製造プロセスに革新的な変化をもたらし、「紙」や「布」の長所を備えた新しいデバイス構築の指針を提案することができたと考える。

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)

6. 研究組織

(1)研究代表者

片平 賀子 (KATAHIRA YOSHIKO)

九州大学・総合理工学研究院・助教

研究者番号：90315143

(2) 研究分担者 ()

研究者番号 :

(3) 連携研究者 ()

研究者番号 :