

フレキシブル大面積インターフェース

染谷 隆夫[†] 関谷 毅[†]

筆者らは、有機トランジスタの新しい応用として、大面積フレキシブルセンサやアクチュエーターを提案し、実際にプロトタイプを試作して原理の確認を進めてきた。本講演では、有機トランジスタの最近の進展について、大面積フレキシブルセンサやアクチュエーターに関する筆者らの研究を中心に紹介する。特に、伸縮自在なロボット用電子人工皮膚などシート型センサへの応用について解説する。この用途では、動画や無線応用ほどの動作速度が要求されない。また、有機トランジスタの特徴である、大面積性、可撓性、低コスト性を十分に活用できる。最近では、電子人工皮膚以外にも、シート型のスキャナーや曲がる点字ディスプレイなど、有機トランジスタの新応用を提案し、その原理実験に成功している。また、印刷による有機トランジスタの製造について述べる。さらに、有機トランジスタの信頼性と安定性の問題について、最後に、有機トランジスタを用いた新しいエレクトロニクスの将来展望、今後の課題について述べる。

Flexible, large-area man-machine interfaces

TAKAO SOMEYA[†] TSUYOSHI SEKITANI[†]

We have proposed large-area sensors and actuators as new applicators of organic field-effect transistors and demonstrated their feasibility with fabricating prototypes. In this paper, we will report recent progress of organic transistor-based flexible, large-area sensors and actuators such as stretchable electronic artificial skins (E-skins). For E-skin in particular, the integration of pressure sensors and organic peripheral electronics allows the manufacturer to avoid the drawbacks of organic transistors, while taking advantage of their many benefits, such as mechanical flexibility, large area, low cost and relative ease of fabrication. Besides E-skins, various kinds of new applications such as pocket image scanners and sheet-type Braille displays have been proposed and demonstrated. Moreover, the issues and the future prospect of organic transistors will be addressed from the view point of ambient electronics.

1. はじめに

有機トランジスタは、シリコンなど従来の無機材料素子とは違って、低温プロセスでプラスチック・フィルム上に形成できるため、軽くて、さらに曲げることができる。また、印刷や輪転機プロセスを利用すれば、面積の大きなものを作る場合の製造コストもシリコンに比べて格段に安いと考えられている。フレキシブルエレクトロニクス (1-8)、落としても壊れないエレクトロニクスを実現するための基盤となる技術のひとつである。

ペンタセンをチャネル層に用いた電界効果トランジスタ (Field-Effect Transistor : FET) の移動度が $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を上回り、オン状態とオフ状態の電流比も 10^7 を超えるなど、アモルファスシリコンの性能を凌駕する特性が複数の研究グループから相次いで報告された。

ペンタセンを含む低分子系有機半導体の多くは真空

プロセスで成膜されるが、一方で、高分子材料を印刷で塗布してプラスチック・トランジスタを作製しようという研究も活発である。塗布型有機半導体や高分子でも移動度 $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を上回る材料が報告されている。インクジェットやマイクロ・コンタクト・プリンティングなどの印刷技術で作製された有機トランジスタが報告されている。

性能の向上やプロセス技術の開発が進むにつれて、有機トランジスタの優れた特性を活用した応用が色々と考案され、一部は現実のものとなりつつある。特に、電子ペーパーを含む曲がるディスプレイや無線タグは、これまで有機トランジスタの応用として本命視され、活発に研究がなされてきた。

一方、我々は、有機トランジスタの新しい応用として、大面積エレクトロニクスを提案し、ユニークなデバイスを試作してきた。特に、ロボット用の電子人工皮膚として、有機トランジスタを利用した大面積圧力センサの作製に成功した。この用途では、動画や無線応用ほどの動作速度が要求されない。また、有機トランジスタの特徴である、大面積性、可撓性、低コスト性を十分に活用できる。最近では、電子人工皮膚以外

[†] 東京大学工学系研究科電気系工学専攻

Department of Electric and Electronic Engineering, School of Engineering, The University of Tokyo

にも、シート型のスキャナーや曲がる点字ディスプレイなど、有機トランジスタの新応用を提案し、その原理実験に成功している。

大面積センサやアクチュエーターでは、曲がるだけでなく、伸び縮みするという機械的特性が求められることがある。このような高度な機械的性能の実現を目指した伸縮性エレクトロニクスという新技術分野が大きな注目を集めている[6-9]。エレクトロニクスに伸縮性を実現する技術は、従来の微細化の技術トレンドとは異なる新しい方向であり、大面積エレクトロニクスにとって、重要な価値をもたらすものと考えられている。例えば、人々が生活する環境、とりわけ人が接する面には、曲面などの自由曲面が多く、これを覆うためには伸縮性は不可欠である。また、電子人工皮膚のような大面積センサをロボットの腕の接合部のような可動部品の表面や自由曲面に貼り付けるために伸縮性は重要である。伸縮性エレクトロニクスを実現する上での難しさは、優れた電気的特性と機械的特性をどのようにして両立するかである。金属や導電性高分子など電気を良く流す材料は通常硬くて伸びない。一方で、ゴムなどの伸縮性に富み柔らかい材料は電気特性が良くない。

本講演では、有機トランジスタの最近の進展について、筆者らの研究を中心に紹介する。特に、ロボット用電子人工皮膚を含むシート型センサへの応用について解説する。さらに、筆者らが最近開発に成功したゴムのような伸縮性導体と有機トランジスタを集積化することによって、伸縮性の集積回路シートを紹介する[9]。さらに、有機トランジスタの信頼性と安定性の課題と有機トランジスタを用いた新しいエレクトロニクスの将来展望について述べる。

2. 電子人工皮膚

今回試作された大面積圧力センサは、電極以外のすべての構成要素に柔らかい材料が用いられており、クニャクニャと自由に曲げることができる。ロボット用の人工皮膚では、可とう性が重要で、指先のように細い棒に巻き付けることもある。シリコンをベースにしたエレクトロニクスでは、ここまでの可とう性を実現するのは容易ではない。

もちろん高分子やゴムを利用した可とう性のあるセンサは古くから存在していた。しかし、大面積センサを作製した場合、配線の問題が顕著となり、数や密度をある程度以上に増やすことが困難である。

我々は、多数のセンサーセルから圧力データを読

み出すため、有機トランジスタで可とう性のあるアクティブ・マトリックス回路を構成して、この問題を解決した。その結果、1000個以上の圧力センサで構成されるフレキシブルなエリア型圧力センサの作製に成功した。具体的には、有機トランジスタと圧力センサを1個ずつ集積化して1セルを構成し、16×16もしくは32×32のマトリックスを作製した。セルの間隔は2.54 mmで、これは10ドット/インチ(dpi)に相当する。

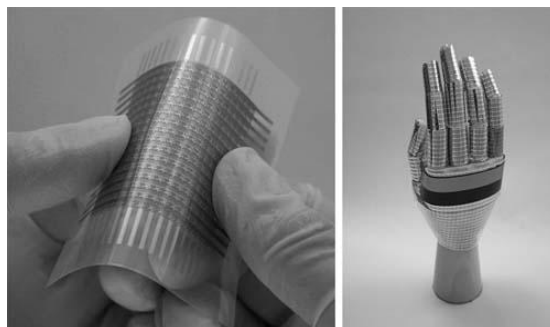


図1 曲げることのできる大面積圧力センサ

3. 伸縮性の有機トランジスタ集積回路

有機トランジスタと伸縮性導体を用いることにより、ゴムのように伸縮自在なトランジスタ集積回路の作成に成功したので本節で報告する。

伸縮性導体は、フッ素系ポリマーの中に導電体である単層カーボンナノチューブ[10]を添加剤として混ぜて作られる。単層カーボンナノチューブは、お互いに強い分子間力で引き寄せられているために、通常は沢山のナノチューブが集まって束を形成する。このため、ナノチューブをポリマーに均一に分散させることはこれまで困難であった。本研究では、束状のナノチューブをイオン液体によって解きほぐし、バッキーゲルと呼ばれる黒いペースト状の物質を作った[11]。次に、このバッキーゲルをフッ素系ポリマーと混ぜ合わせた後、キャスト法によってナノチューブシートを作製した。最後に、機械加工によってナノチューブシートをネット形状にしてからシリコンゴムでコーティングすることで伸縮性と導電性を兼ね備えた導体を作製した。

ナノチューブシートの導電率は最高で 57 S/cmであった(図 2C, D)。この導電率は、化学的に安定な弾性体としては世界最高である。このように高導電率の伸縮性導体が実現できたのは、既述の独自手法で添加剤としての単層カーボンナノチューブをポリマーの中に極めて均一に分散することができたことによる。ナノチューブの濃度を増やすと、ナノチューブ同士が束状になり均一に分散

させにくくなる上、材料も硬くなるという従来の問題をイオン液体(BMITFSI)を用いることで解決した。新材料は、ネット状の機械加工を施さない状態(すなわち単なる一様な薄膜フィルム)で、導電率を劣化させることなく38%も引き伸ばすことができる(図2Cの1)。

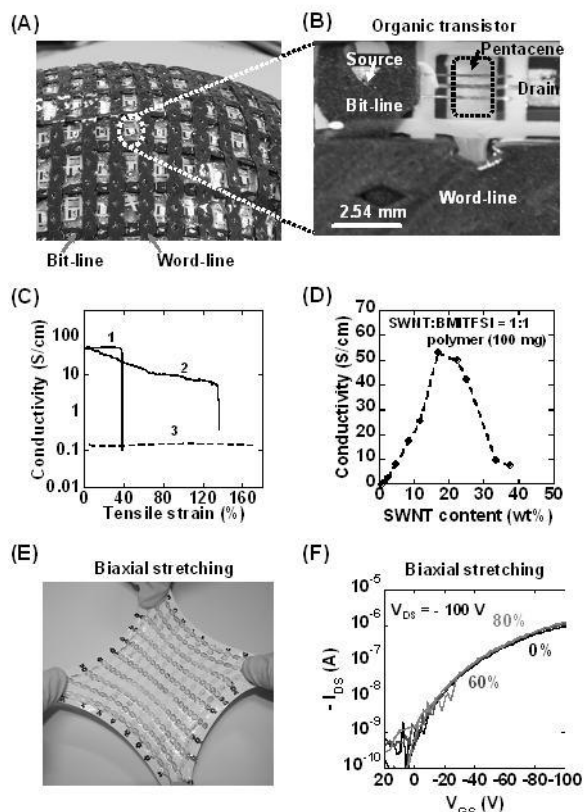


図2 (A) 伸縮性有機トランジスタマトリックスを球面上に実装した写真。黒い配線が伸縮性導体であり、ワード線、ビット線となる。(B) 有機トランジスタの拡大写真。有機半導体にはペンタセンを用いた。すべての電極とゲート絶縁膜はインクジェットで作製した[11,12]。(C) 導電率と伸縮率の関係。1：カーボンナノチューブ(SWNT)フィルム、2：伸縮性導体、3：市販されている導電性ゴム。(D) ナノチューブ量と導電率の関係。BMITFSIはイオン液体。SWNTとBMITFSIを1対1の重量比で配合した。ポリマーには、フッ素系高分子G801(ダイキン)を用いた。(E) 有機トランジスタマトリックスを2軸方向に70%伸縮させている写真。(F) 2軸方向に伸縮させているときの有機トランジスタの伝達曲線。数値は、伸縮率を示す。

さらに、機械加工を施したネット構造の伸縮性導体については、引き伸ばすと若干導電率が減少するものの、134%まで引き伸ばすことができる(図2Cの2)。

印刷技術で作製された有機トランジスタ集積回路[12, 13]の配線材料として伸縮性導体を用いることによって、「ゴムのように伸縮自在なアクティブマトリックスシートを実現した(図2A, B)。集積回路シートの実効面積は20×20 cm²であり、19×37の有機ト

ランジスタで構成される。伸縮性導体の開発の他に、伸縮性高導電接着剤やパンチング加工を用いたゴムシートへのビア配線の作製法など、本研究のため開発された独自の新技术によって、伸縮性集積回路の作製が初めて可能になった。この集積回路を1軸方向もしくは2軸方法に引き伸ばすと、いずれの場合にも電気的かつ機械的な劣化なく70%引き伸ばすことができた(図2E, F)。このように10%以上引き伸ばしても電気的な特性が変化しないゴムシートのように伸縮自在な集積回路が実現できた。

4. ワイヤレス電力伝送シート..

人々が意識しない階層(アンビエント:環境)にエレクトロニクスが溶け込み、人々の生活を安心・安全・快適にする次世代技術としてアンビエント・エレクトロニクスが期待されている。環境に散りばめられた無数のエレクトロニクスにどうやって電力を供給するかは、重要な課題である。暗い場所に設置されれば太陽電池は使えない。また、常に移動しながら使用されるかもしれない。一方で、定期的に電池を交換する方式も考えられるが、環境に溶け込んだエレクトロニクスは数が多いため、逐一すべての電池交換を行うことは現実的でない。

本節では、アンビエント・エレクトロニクス素子へ効率よく電力を伝送する新しい電力伝送技術について報告する[14]。筆者らの研究チームでは、有機トランジスタとプラスチックシートで出来た微小機械式マイクロスイッチ(プラスチックMEMSスイッチ)を集積化することに成功し、シート型のワイヤレス電力伝送システムを実現した。このシステムは、印刷技術を用いて作製されるため、大面積でも低コストに製造することができる。開発した電力伝送シートは、コネクタや電源ケーブルを必要とせず、いつでもどこでも置くだけでエレクトロニクス素子に数ワット以上の電力を無接点で伝送することができる。

これまでにも、ワイヤレスによる電力伝送は実用化されているが、2つの場合に限定されてきた。ICカードのように微弱な電力を移動しながら伝送できる場合と、電動歯ブラシのようにデバイスを決められた場所にセットして電力を伝送する場合である。それに対して、今回は、大面積シート上で細かく分割された領域ごとに独立して電力が伝送できるシートを実現することによって、広い領域の任意の場所で40Wという大電力を80%以上の効率で伝送できた。

今回の電力伝送シートでは、大面積エレクトロニ

クスの新たな展開として、印刷で製造された大面積のセンサシートとアクチュエータシートを集積化して、シート型のワイヤレス電力伝送システムの実現に成功した。電力伝送システムのプロトタイプは、実効面積が $21 \times 21 \text{ cm}^2$ の正方形シートで、厚みは 1mm で、重さは 50g である。

5. 不揮発性有機メモリと通信シートへの応用

次世代メモリとして、強誘電体メモリ (Ferroelectric random access memory ; FeRAM) が注目を集めている。FeRAM では強誘電体材料の自発分極の方向をバイナリ情報の“0”と“1”に対応させており、電源を切ってもその内容が失われない不揮発性メモリである。低電力での動作が可能で、また他のメモリに比べて高速動作も可能であるという特徴を有する。従来の Si などを用いた FeRAM では、強誘電体材料として $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (PZT) や $\text{SrBi}_2\text{Ta}_2\text{O}_9$ (SBT) などの酸化物が盛んに用いられてきた。これらの強誘電体材料は高い分極値や低い抗電界を示す一方、 $500 \text{ }^\circ\text{C}$ 以上の高温プロセスが必要であり、有機材料との相性は良くないというデメリットがある。我々は、大面積シートと整合性の良い塗布型プロセスでデバイスを製造するため、高分子系材料であるフッ化ビニリデン/三フッ化エチレン共重合体 [poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) ; P(VDF-TrFE)] を強誘電体材料として利用して FeRAM を試作し、シート型の通信シート [15] に応用したので報告する。

まず、基板は厚さ $75 \mu\text{m}$ のポリイミドフィルムを用い、クロムの接着層 5 nm とゲート電極として金を 50 nm 真空蒸着した。その後 N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) に溶解させた P(VDF-TrFE) 溶液をスピコート法により塗布した。この際の溶液の濃度や回転条件を調節することによって膜の厚みを制御することができる。塗布後はすぐにオープンに入れ $90 \text{ }^\circ\text{C}$ で 1 時間程乾燥させた後、大気雰囲気中で $140 \text{ }^\circ\text{C}$ で 2 時間焼成し結晶化させた。さらにその上に有機半導体であるペンタセンを 50 nm 、ソースドレイン電極として金を 50 nm 蒸着することでトランジスタ構造を完成させた。トランジスタのチャネル長は $50 \mu\text{m}$ 、チャネル幅は $500 \mu\text{m}$ とした。また P(VDF-TrFE) の特性を測定するため、トランジスタとは別に強誘電体層のみを電極で挟んだキャパシタも作製した。電極面積は $100 \mu\text{m} \times 700 \mu\text{m}$ とした。

有機メモリは従来より大気中での劣化が問題とな

ってきた。本研究では、パリレン絶縁膜および金属膜による積層封止を施すことで、大気中でのメモリ保持時間を大幅に改善することに成功した。作製したメモリトランジスタは大気中で 1000 以上の高い“1”/“0”比を示し、窒素雰囲気の場合には、電源を切ってから 25 日後でも 100 以上の高い“1”/“0”比を示した。大気中でメモリ保持測定を行った結果、15 日後でも“1”/“0”比は 500 以上であった。この結果を窒素雰囲気で行った結果と比べたとき、変化量は 7%以内であった。このことから、本研究で作製した有機デバイスは、大気中において、きわめて優れた不揮発性メモリであることを確認した。

6. 有機トランジスタの将来展望

ユビキタス・エレクトロニクス (時間や場所の制約を超えて情報を活用できる電子技術) の世界において、シリコンは小さく見えなくなってしまう一方で、ヒトと等身大のエレクトロニクスが重要性を増している。

はじめにで触れたように、有機トランジスタは、面積あたりのコストが重要となる大面積エレクトロニクスで、その魅力が最大限に引き出される。次世代センサ・ネットワークの実現には、環境情報を広い範囲で収集することが求められている。有機トランジスタは、この目的に最適なデバイスであり、シリコンと相補的に利用することにより、大きな相乗効果が見込まれる。

大面積圧力センサひとつを考えてみても、その応用は広範である。例えば、ロボットの手や体に貼り付けるだけでなく、大面積圧力センサを床に敷き詰めたり、家具などにも貼ってみる。すると、床の上に侵入した泥棒を足跡解析から識別できる防犯システムが実現できたり、心拍数や呼吸数をモニターして健康状態が即座にわかる椅子やベッドができるかもしれない。

7. まとめ

本講演では、有機トランジスタの最近の進展を中心に基礎から応用まで述べた。特に、これまで有機トランジスタの主な用途として検討が進んでいる曲がるディスプレイや、筆者らは取り組む大面積センサへの応用を中心に紹介した。有機トランジスタと圧力センサを集積化することによって、従来は作製が困難であった可とう性のある大面積圧力センサが実現できた。

有機トランジスタの性能は、ここ数年で飛躍的に向上されてきているが、その実用化に向けて課題も少なくない。特に、安定性と信頼性の向上と駆動電圧の低

減は重要である。この問題を解決には、封止技術の確立やデバイスの微細化が必要である[16-18]。今後、これらの問題を解決し、有機トランジスタがますます大きな分野へと成長していくことを期待したい。

8. 謝辞

本研究は、相田卓三教授（東大）、福島孝典博士（理研）、畠賢治博士（産総研）、桜井貴康教授（東大）、高宮真准教授（東大）との共同研究である。フッ素系ゴムはダイキンから提供を受けた。本研究の一部は、JST/CREST、科研費（若手 S）、振興調整費、NEDO の助成を受けて進められた。

参 考 文 献

- 1) J. A. Rogers, Z. Bao, K. Baldwin, A. Dodabalapur, B. Crone, V. R. Raju, V. Kuck, H. Katz, K. Amundson, J. Ewing, and P. Drzaic, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* Vol. 98, pp.4835-4840 (2001).
- 2) C. D. Sheraw, L. Zhou, J. R. Huang, D. J. Gundlach, T. N. Jackson, M. G. Kane, I. G. Hill, M. S. Hammond, J. Campi, B. K. Greening, J. Francl, and J. West, *Appl. Phys. Lett.* Vol. 80, pp.1088-1090 (2002).
- 3) T. Someya, T. Sekitani, S. Iba, Y. Kato, H. Kawaguchi, and T. Sakurai, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* vol. 101, pp.9966-9970 (2004).
- 4) Takao Someya, Yusaku Kato, Tsuyoshi Sekitani, Shingo Iba, Yoshiaki Noguchi, Yousuke Murase, Hiroshi Kawaguchi, and Takayasu Sakurai, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, Vol.102, Issue 35, pp.12321-12325 (2005).
- 5) H. Kawaguchi, T. Someya, T. Sekitani, and T. Sakurai, *IEEE J. Solid-State Circuits.* vol. 40, pp. 177-185 (2005).
- 6) S. P. Lacour, J. Jones, S. Wagner, T. Li, Z. G. Suo, *Proceedings of The IEEE*, vol. 93, 1459 (2005).
- 7) D. Y. Khang, H. Q. Jiang, Y. Huang, J. A. Rogers, *Science* vol. 311, 208 (2006).
- 8) Y. G. Sun, W. M. Choi, H. Q. Jiang, Y. G. Y. Huang, J. A. Rogers, *Nature Nanotechnology* vol. 1, 201 (2006).
- 9) Tsuyoshi Sekitani, Yoshiaki Noguchi, Kenji Hata, Takanori Fukushima, Takuzo Aida, Takao Someya, *Science* vol. 321, pp. 1468-1472 (2008).
- 10) K. Hata, D. N. Futaba, K. Mizuno, T. Namai, M. Yumura, and S. Iijima, *Science* vol. 306, 1362 (2004).
- 11) T. Fukushima, A. Kosaka, Y. Ishimura, T. Yamamoto, T. Takigawa, N. Ishii, T. Aida, *Science* vol. 300, 2072 (2003).
- 12) Yoshiaki Noguchi, Tsuyoshi Sekitani, and Takao Someya, *Appl. Phys. Lett.* vol. 89, 253507 (2006).
- 13) Y. Noguchi, T. Sekitani, and T. Someya, *Appl. Phys. Lett.* vol. 91, 133502 (2007).
- 14) T. Sekitani, M. Takamiya, Y. Noguchi, S. Nakano, Y. Kato, T. Sakurai, T. Someya, *Nature Materials*, Volume 6, Issue 6, pp. 413-417 (2007).
- 15) Tsuyoshi Sekitani, Koichiro Zaito, Yoshiaki Noguchi, Kiyoshiro Ishibe, Makoto Takamiya, Takayasu Sakurai, and Takao Someya, *IEEE Transactions on Electron devices*, Vol. 56, pp. 1027-1035 (2009).
- 16) Tsuyoshi Sekitani, Takao Someya, and Takayasu Sakurai, *Journal of Applied Physics*, Vol. 100, 024513 (2006).
- 17) Tsuyoshi Sekitani, Kazuki Hizu, and Takao Someya, *Japanese Journal of Applied Physics*, Volume 46, Issue 7A, pp. 4300-4306 (2007).
- 18) Tsuyoshi Sekitani, Shingo Iba, Tsuyoshi Sekitani, Yusaku Kato, Takao Someya, and Takayasu Sakurai, *Applied Physics Letters*, Vol. 87, 073505 (2005).