

# 論文内容要旨 (和文)

平成 25 年度入学 大学院博士後期課程

有機材料工学 専攻 有機デバイス 分野

氏 名 関根 智仁



論文題目 Strain Effects on Flexible Printed Organic Thin-Film Transistors  
(フレキシブル印刷型有機薄膜トランジスタにおけるひずみ効果)

印刷法で作製する有機トランジスタ (以下、印刷型OTFT) は、無機トランジスタと比較して低コストかつ大面積な電子デバイスを創出できる。また、印刷型OTFTをフレキシブルなプラスチック基板上に作製することで軽く、曲げても壊れにくいフレキシブルデバイスが実現可能になる。その応用例としてフレキシブルディスプレイやウェアラブルセンサなどがあげられる。一方、フレキシブル印刷型OTFTにひずみを加えたとき、そのデバイス特性は変化することが報告されているものの、そのメカニズムは未だ明らかになっていない。このためOTFTをプラットフォームとしたフレキシブルデバイスの実現のためには、ひずみ印加時特性が変化しないデバイスを実現する必要がある。そこで、本論文はフレキシブル印刷型OTFTにひずみを加えたときの、特性変化のメカニズムを明らかにすることを目的とした。

本論文は下記の7章より構成されており、その内容は以下の通りである。

## 第一章 序論

研究背景と本論文の目的・構成を記載する。OTFTの学術的背景や、印刷法により作製するデバイスの概要と研究コンセプトについて述べた。

## 第二章 フレキシブル印刷型OTFTにひずみを加えたときの特性変化

本章ではフレキシブル基板上に作製した印刷型OTFTのうち、特に印刷電極の界面剥離に注目することで、ひずみを加えたときの特性変化の要因を抽出した。印刷電極の材料には銀ナノ粒子インクを用い、絶縁膜材料にはフッ素系材料を用いた。これらのOTFTに引張ひずみを加えたとき、印刷電極の焼成温度に依存したデバイス特性変化が生じた。また、特性が変化したあとのデバイスを光学顕微鏡で観察すると、電極の焼成温度が比較的低いときに印刷電極が絶縁膜から剥離・断線していた。これにより印刷電極がひずんだことで電極自体が絶縁膜から剥離し、OTFTのデバイス特性を変化させたと推論した。

## 第三章 下地層を用いた印刷電極の密着性の改善

本章では、印刷電極の下地層 (絶縁膜) に対する密着性の改善を行った。下地層として、Poly(4-vinyl-phenol)、Poly(methyl methacrylate)、Teflon<sup>®</sup> をそれぞれ用いたときの印刷電極の密着性を評価した。印刷電極の焼成温度を 120°C から 180°C まで変化させたとき、印刷電極の密着性は下地層のガラス転移温度以上で改善することが明らかになった。また、密着性が向上した後の印刷電極と下地層の界面を電子顕微鏡で観察すると融着層が発現していた。このことより、印刷電極と下地層の界面に融着層が発現したことが密着性改善の理由と考察した。

#### 第四章 高分子半導体を用いたフレキシブル印刷型OTFTのひずみ印加時における安定性

本章では、高密度着性印刷電極を有するフレキシブル印刷型OTFTにおいて、低分子、および高分子半導体をそれぞれ用いたときのひずみ効果を明らかにした。有機半導体材料には低分子半導体であるペンタセンと高分子半導体であるpoly(2,5-bis(3-hexadecylthiophene-2-yl)thieno[3,2-b]thiophene) (PBTTT-C16) を用い、それぞれのOTFTにひずみを加えた。ひずみは0%から2.5%まで引張方向に、かつ電流がソース・ドレイン電極を流れる向きと直行、または水平に加えた。このとき低分子半導体であるペンタセンと比較して、高分子半導体であるPBTTT-C16を有するOTFTの特性変化量は非常に小さいことが明らかになった。また1.5%の引張ひずみを1000回まで繰り返し加えたとき、PBTTT-C16を有するOTFTはひずみを加えても特性がほとんど変化しなかった。これを考察するため、各半導体層の表面AFM像を取得した。ペンタセン薄膜は、比較的高い結晶性由来した粒界が多く存在したのに対し、PBTTT-C16薄膜はより平坦であった。これらの結果から、有機半導体層のモルフォロジーがひずみを加えたときの特性変化の要因であると推察した。

#### 第五章 フレキシブル印刷型OTFTのコンタクト抵抗がおよぼすひずみ効果

本章では、有機半導体の違いによる特性変化の理由を明らかにするため、印刷型OTFTのコンタクト抵抗（ソース・ドレイン電極と有機半導体層間の抵抗）に着目した。樹脂フィルム基板上に印刷法にてOTFTを作製し、引張ひずみ(1.5%)を加えた。有機半導体には、低分子半導体として2,8-Difluoro-5,11-bis (triethylsilylethynyl) anthradithiophene (diF-TESADT)を、高分子半導体としてPBTTT-C16を用いた。引張ひずみ1.5%を、電流がソース・ドレイン電極を流れる向きに直行、または水平に加えた。ひずみを加えている状態で、各OTFTのコンタクト抵抗を測定すると、PBTTT-C16を有するOTFTのコンタクト抵抗は直行、水平どちらのひずみに対してもほとんど変化しなかった。一方、diF-TESADTを有するOTFTのコンタクト抵抗は直行ひずみに対して約1.5倍、水平ひずみに対して約2倍にそれぞれ上昇した。また、各OTFTのチャネル抵抗（有機半導体中を電流が流れるときの抵抗）を測定したところ、どちらのOTFTもチャネル抵抗はほとんど上昇しなかった。これらのことから、ひずみを加えたときの低分子半導体を有するOTFTの特性変化は、コンタクト抵抗の上昇が支配的であると考えた。さらにソース・ドレイン電極と有機半導体の境界付近を表面AFMで観察すると、ひずみを加えているとき低分子半導体が電極から物理的に剥離することが明らかになった。以上のことが、コンタクト抵抗上昇の主たる要因と結論付けた。

#### 第六章 フレキシブル有機圧力センサを用いたヒトの脈拍測定

本章ではフレキシブル印刷型OTFTの応用例として、強誘電体であるpoly(vinylidene fluoridetrifluoroethylene) (P(VDF-TrFE)) を圧力感知部とした印刷型有機圧力センサの実証を行った。P(VDF-TrFE) は任意の溶媒に溶解可能であるため印刷法に適応可能であり、外部から印加された圧力に対して高感度な材料である。このため、脈拍などの微小圧力も感知できる。また、高分子半導体をOTFTに用いることで、ひずみ印加時も特性変化の少ない圧力センサを作製することに成功した。実際に作製した印刷型有機圧力センサでヒトの脈拍測定を試みた。実験協力者の首に生体適合性パッチを用いて印刷型有機圧力センサを固定し、脈拍を測定したところ良好な信号を得た。以上より、印刷型OTFTがフレキシブルデバイスに優れた適応性を示すことが明らかになった。

#### 第七章 総括

本研究により得られた成果についてまとめた。

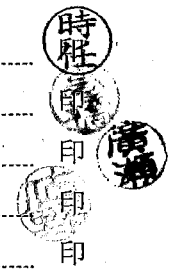
学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成 28 年 8 月 8 日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 ..... 時任 静士 .....  
 副査 ..... 高橋 辰宏 .....  
 副査 ..... 廣瀬 文彦 .....  
 副査 ..... 佐野 健志 .....  
 副査 .....



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論文申請者	有機材料工学 専攻 有機デバイス 分野		氏名 関根 智仁
論文題目	Strain Effects on Flexible Printed Organic Thin-Film Transistors (フレキシブル印刷型有機薄膜トランジスタにおけるひずみ効果)		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	平成 28 年 7 月 27 日～ 平成 28 年 8 月 5 日
論文公聴会	平成 28 年 8 月 5 日	場 所	工学部 11 号館未来ホール (11-201)
最終試験結果	合格	最終試験年月日	平成 28 年 8 月 5 日
学位論文の審査結果の要旨 (1,000 字程度)			
<p>本論文はフレキシブル印刷型有機薄膜トランジスタ (OTFT) のひずみ効果を明らかにしたものであり、全編で計 7 章から構成されている。その内訳と審査結果について下記に示す。</p> <p>第 1 章では、研究背景と本論文の目的・構成を記載している。OTFT の学術的背景や、印刷法により作製する電子デバイスの概要について述べている。また、当該デバイスのひずみ印加時の研究課題の探索を行っている。</p> <p>第 2 章では、フレキシブル基板上に作製した印刷型 OTFT のうち、特に印刷電極の界面剥離に注目して、ひずみを加えたときの特性変化の要因を抽出している。</p> <p>第 3 章では、印刷電極の下地層に対する密着性の評価を行っている。印刷電極の焼成温度を最適化することで密着性の向上に成功している。</p> <p>第 4 章では、高密着性印刷電極を有するフレキシブル印刷型 OTFT において、低分子、および高分子半導体をそれぞれ用いたときのひずみ効果を明らかにしている。</p> <p>第 5 章では、有機半導体の違いによる特性変化の理由を明らかにするため、印刷型 OTFT のコンタクト抵抗 (ソース・ドレイン電極と有機半導体層間の抵抗) に着目し、ひずみを加えたときの抵抗変化を評価している。</p> <p>第 6 章では、フレキシブル印刷型 OTFT の応用例として、強誘電体である poly(vinylidene fluoridetrifluoroethylene) (P(VDF-TrFE)) を圧力感知部とした印刷型有機圧力センサの実証を行っている。</p> <p>第 7 章では、第 2 章から第 6 章までの研究内容を総括し、本研究がフレキシブルデバイスにおける新たな学術領域を切り開く可能性について言及することで、本論文をまとめている。なお、本研究におけるヒトから得られる物理量の測定に関する研究は、本学倫理委員会の許可 (承認番号: 28-2) のもとに行われた。</p> <p>以上のことから、本論文は工学における学術的探究と実用への貢献という観点から、博士 (工学) の学位を授与するに十分であると判断された。また、本研究成果は学術論文 (3 報掲載、1 報採録) と国際会議発表 (1 件) によってまとめられており、当該専攻の審査基準も満たしている。以上を総合的に判定し、研究成果および研究内容ともに工学的貢献が十分に認められたため合格と判定した。なお本論文は、利益相反等に係る学内規則に基づく手続きは必要ありません。</p>			
最終試験の結果の要旨			
<p>最終試験は、45 分の学位論文内容の口頭発表および 15 分の質疑応答により実施した。発表では、研究の背景・目的について述べ、その後具体的なデバイス構造やひずみ効果を明らかにするためのアプローチについて説明し、印刷型 OTFT がひずみから受ける影響とその改善方法、および今後のデバイス応用についての的確に説明がなされた。実際の質疑応答では、OTFT のコンタクト抵抗とひずみの詳細な関係性や圧力センサの感度の改善方法、自立した研究者としての今後の研究展望について質問があった。これに対し申請者は適切かつ具体的に回答できた。その結果、博士 (工学) として必要とされる専門知識および研究遂行能力を十分に備えているものと判断し、最終試験を合格とした。</p>			