

透明で伸縮可能なウェアラブル熱測定デバイスの創製

Fabrication of transparent and stretchable thermal sensing device

2181024



研究代表者

名古屋大学

助教

廣谷

潤

【研究の目的】

フレキシブルで伸縮可能なエレクトロニクスは電子皮膚や健康・医療デバイスなどのウェアラブルデバイスへの幅広い応用が期待される。材料の候補は様々なものが挙げられるが、有機半導体や導電性ポリマー、非晶質シリコンなどの様々な導電性材料と比較して、カーボンナノチューブ (CNT) 薄膜はキャリア移動度、透明性、伸縮性や柔軟性など多くの点で優れている。

本研究では CNT 薄膜を用いることで透明で存在を感じさせずに生体の熱的情報をセンシングできるデバイスの創製を目的とする。透明で伸縮可能なウェアラブル熱測定デバイスの実現により、複雑局面形状を有する対象物の熱物性測定、スポーツ時の局所体温変化、肌から浸透する熱拡散の違い、赤ちゃんなどの動きの激しい人の体温リアルタイム測定などが可能になり、センサと人間が密接かつ自然に調和した社会を実現できる。

CNT 薄膜は透明で柔軟、機械的特性に優れており、密度や半導体・金属の割合を精密に制御することで、トランジスタのチャンネル材料や配線として用いることができるため、フレキシブルデバイスにおける材料候補として有望視されている。CNT 薄膜の半導体の性質を生かしたデバイスとして、これまでに Q. Cao [1], D.-M. Sun ら [2] により CNT 薄膜トランジ

スタを 100 個程度用いた中規模集積回路は実現されており、現在も CNT の半導体性質を生かした研究が盛んである。

金属的性質を生かした応用としてレアメタルを含む ITO (Indium Tin Oxide) を代替する透明導電膜として CNT 薄膜 [3] が注目されている。

CNT を用いたガスセンサ、温度センサ、圧力センサ、ひずみセンサなど様々なセンサが開発されているが、CNT 薄膜を用いて透明で伸縮可能なデバイスでそのデバイスに接した材料の熱物性計測を行う研究は、研究代表者が知る限り存在しない。今回浮遊触媒気相成長法により成長させた CNT 薄膜を用いてその物性計測を最終研究目的とする。

【研究の内容、成果】

本研究ではまず 2 種類の熱計測手法の立ち上げを実施した。1 つ目の熱伝導率測定方法は D. G. Cahill によって開発された 3ω 法である。試料に ω 周期の交流電流を流して加熱すると、 2ω 周期のジュール熱が発生し、温度変化が生じる。抵抗は温度を変数とする 1 次関数で表されるため、温度変化によって抵抗も 2ω 周期で変化する。そして、その抵抗と電流の積によって 3ω 周期の電圧が試料にかかる。 3ω 法はこの 3ω 周期の電圧を測定することで、試料に温度変化が生じる際に関係している熱伝導率と比熱

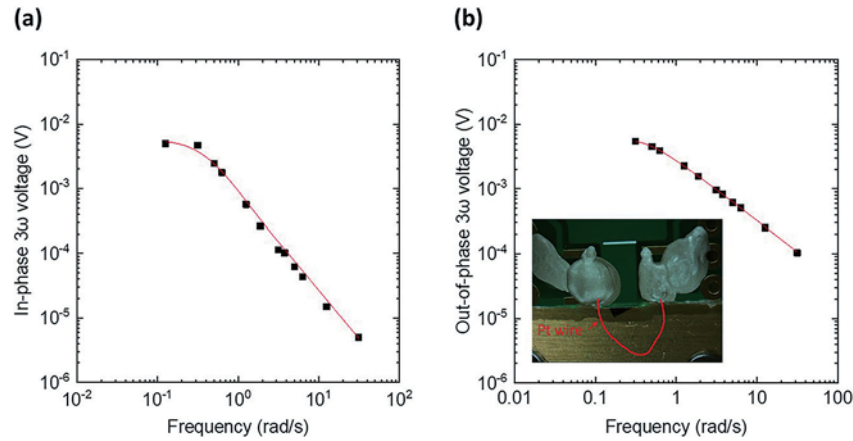


図1 ロックインアンプによる (a) In-phase (b) Out-of-phase 3ω 電圧測定結果

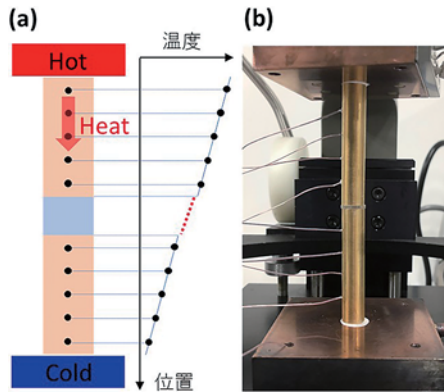


図2 定常比較法による PDMS 熱伝導率測定 (a) 測定模式図 (b) PDMS 測定中の様子

を測定する技術である。

まずは、立ち上げた実験装置の有効性を検証するために直径 $10\ \mu\text{m}$ の白金ワイヤを対象として計測を行った。

図1の実験結果を理論式でフィッティングしたところ良好な結果を得ており、得られた熱伝導率も文献値と比較して誤差 20% 以内であることを確認した。

もう一つの熱伝導率計測手法として伸縮基板の面外方向熱伝導率計測を目的として定常比較法による計測系を構築した(図2)。測定対象のサンプルを熱伝導率が既知なもので挟み込み、その温度分布を熱電対で計測することで、熱伝導率が未知の物質を測定できる。今回は直径 10 mm、長さ 50 mm の真鍮で PDMS を挟み込むことで PDMS の熱伝導率を測定した。得られた熱伝導率は $0.27\ \text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ で文献値より

30% 程度大きな値となったが、これは PDMS と真鍮間の接触熱抵抗の影響であると考えられる。

熱伝導計測手法の構築が完了したので、次に浮遊触媒気相成長法における CNT の基板上直接体積技術の確立を試みた。実験装置の概略を図3に示す。成長させた CNT を含むガスが密閉容器内に導入される構造となっており、堆積させたい Si 基板側を冷却、対向面を加熱することで温度勾配を作り出し、この熱勾配により CNT が Si 基板上に引き寄せられることで堆積率を向上させることができる。本手法は Si 基板に限らず任意の基板に対して適応可能な技術で、本実験装置の有無による CNT の堆積率の違いを比較した結果、熱勾配による CNT 捕集効率の向上を確認した。さらにガス供給源の CO_2 と CO の割合を変化させて実験を行い最も長尺な CNT が得られる成長条件を見いだした。

さらに有限要素解析によるデバイス応力分布を予測しつつ、PDMS 上に CNT 薄膜トランジスタを作製した。有限要素解析にはゴム系の超弾性体の力学特性で定評のある汎用有限要素解析シミュレーターである Abaqus を利用した。30 μm の厚さの PDMS 上に配置した 300 nm 厚のパリレン膜上の計算結果を図4に示す。

ひずみが大きくなるにつれて、X-Z 平面では湾曲するように変形しているのに対し、Y-Z 平面ではしわが入るように変形しているのが計

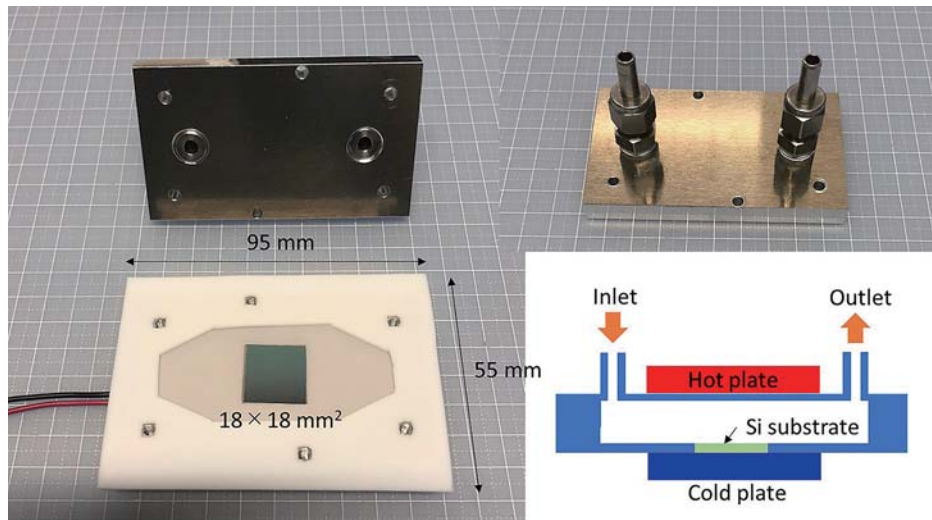


図3 浮遊触媒気相成長法における熱勾配 CNT 直接堆積手法概略図

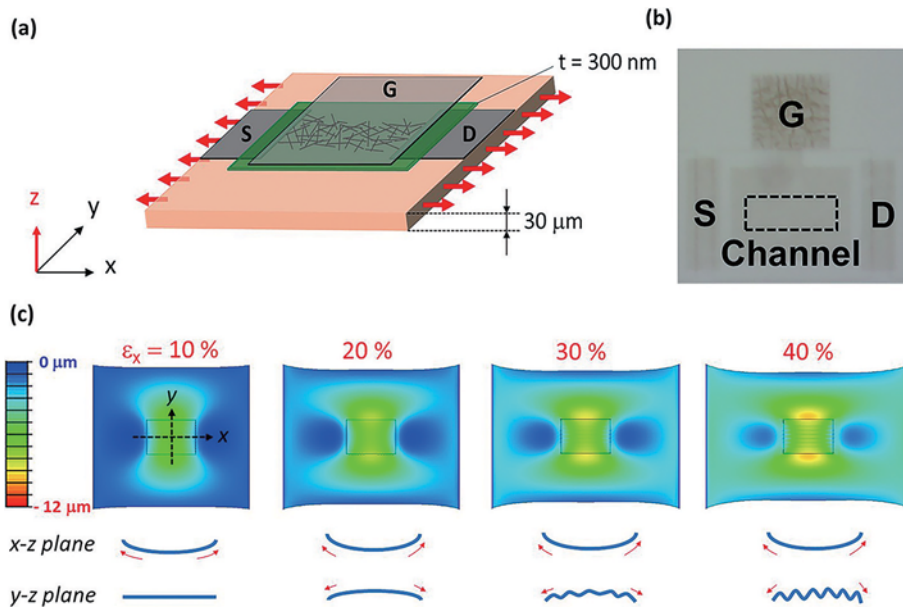


図4 有限要素解析による (a) 実デバイス模式図 (b) 光学顕微鏡像 (c) ひずみ解析結果

算結果より明らかとなった。詳細は本年後半に論文投稿予定のため割愛するが、実際にデバイスを作製したところ、パリレン上の CNT 薄膜トランジスタは引張り応力を加えても特性がほとんど変化しないことがわかった。作製したデバイスの画像とデバイス構造を図5に示す。ほとんど透明で人の手に貼り付けた場合、存在を感じさせないデバイスを作製できている。

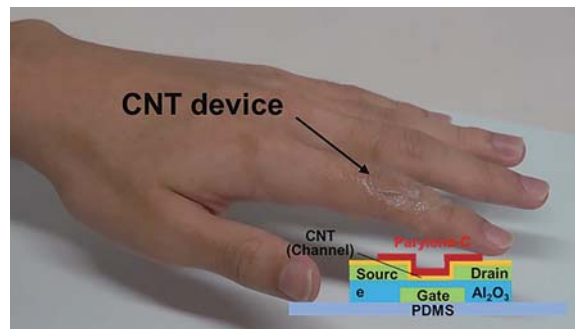


図5 透明で伸縮可能なウェアラブルデバイス

[今後の研究の方向, 課題]

今後は作製したデバイスの温度依存性, 応力依存性を立ち上げた実験系などを用いて測定を行い, 熱計測デバイスの感度などを定量的に計測することが求められる。加えてトランジスタや配線単体の応力計算にとどまらず, 実際のデバイス形状を考慮した有限要素解析によるデバイス構造の最適化も必要である。現状の課題として, 配線用のCNT薄膜を繰り返し引張り試験を行うことでその電気的特性に非線形な特性が表れることがわかっており, まずはこの問題の解決が肝要であるといえる。そのうえで, 3ω 電圧法による熱計測手法にCNT薄膜を適応させて人間の体温の測定につなげていく。

[参考文献]

1. Q. Cao, H. Kim, N. Pimparkar, J. P. Kulkarni, C. Wang, M. Shim, K. Roy, M. A. Alam and J. A. Rogers, Medium-scale carbon nanotube thin-film integrated

circuits on flexible plastic substrates. *Nature*, 2008, **454**, 495-500.

2. D. M. Sun, M. Y. Timmermans, Y. Tian, A. G. Nasibulin, E. I. Kauppinen, S. Kishimoto, T. Mizutani and Y. Ohno, Flexible high-performance carbon nanotube integrated circuits. *Nat. Nanotech.*, 2011, **6**, 156-161.
3. D. M. Sun, M. Y. Timmermans, A. Kaskela, A. G. Nasibulin, S. Kishimoto, T. Mizutani, E. I. Pauppinen and Y. Ohno, Mouldable all-carbon integrated circuits. *Nat. Commun.*, 2013, **4**, 2302.

[成果の発表, 論文等]

1. 西尾祐哉, 西村圭太, 廣谷潤, 岸本茂, 大野雄高, [口頭発表] “局所歪み制御層を有する低電圧駆動かつ大伸縮可能なカーボンナノチューブ薄膜トランジスタ”, 第79回応用物理学会秋季学術講演会, 2018.09.19, 名古屋国際会議場, 19p-224B-1
2. 西尾祐哉, 鹿嶋大雅, 廣谷潤, 岸本茂, 大野雄高, [口頭発表] “低電圧駆動かつ伸縮可能なカーボンナノチューブ集積回路”, 第66回応用物理学会春季学術講演会, 2019.03.11, 東京工業大学, 11a-M136-9