

戦略的国際科学技術協力推進事業（日本－フィンランド研究交流）

1. 研究課題名：「プリントドエレクトロニクスのための強誘電／導電材料の開発」
2. 研究期間：平成23年 5月～平成26年 3月
3. 支援額： 総額14,999,450円
4. 主な参加研究者名：

日本側（研究代表者を含め6名までを記載）

|              | 氏名   | 所属                               | 役職      |
|--------------|------|----------------------------------|---------|
| 研究代表者        | 鎌田俊英 | (独)産業技術総合研究所フレキシブルエレクトロニクス研究センター | 研究センター長 |
| 研究者（前・研究代表者） | 村田和広 | 同上                               | 研究チーム長  |
| 研究者          | 白川直樹 | 同上                               | 上級主任研究員 |
| 研究者          | 植村聖  | 同上                               | 主任研究員   |
| 研究者          | 福田伸子 | 同上                               | 主任研究員   |
| 研究者          | 渡邊雄一 | 同上                               | 研究員     |
| 参加研究者        |      | のべ                               | 14名     |

相手側（研究代表者を含め6名までを記載）

|       | 氏名                | 所属   | 役職             |
|-------|-------------------|--|----------------|
| 研究代表者 | Ari Alastalo      | National Technical Research Center of Finland (VT T) | チームリーダー, 上席研究員 |
| 研究者   | Tomi Mattila      | 同上   | 主任研究員          |
| 研究者   | Jukka Hast        | 同上   | 主任研究員          |
| 研究者   | Jaakko Leppäniemi | 同上   | 研究員            |
| 研究者   | Kim Eiroma        | 同上   | 研究員            |
| 研究者   | Mark Allen        | 同上   | 研究員            |
| 参加研究者 |                   | のべ   | 7名             |

5. 研究・交流の目的

(独)産業技術総合研究所フレキシブルエレクトロニクス研究センター（以下、産総研）とフィンランド国立テクニカルリサーチセンター（以下、VTT）は、以下の項目を目的とした研究・交流を実施する。

- (1) 産総研およびVTTで開発中の各種センサ、メモリ用途として、フッ素系高分子材料、チタン酸バリウム微粒子、DNA等の印刷可能な強誘電材料の研究開発。
- (2) 産総研およびVTTで開発中の電気回路、素子電極、アンテナ等を用途として、従来の導電性インクに比べ材料コスト面で優れる印刷可能な銅などの導電材料の開発
- (3) フレキシブルメモリ（VTTが開発中）の製造工程への高精細印刷技術（産総研が開発中）の導入。
- (4) 産総研とVTTのプリントドエレクトロニクス（PE）開発における持続的かつ戦略的協力体制の確立。

## 6. 研究・交流の成果

### 6-1 研究の成果

- ・全印刷による大面積圧力分布センサ開発と見守りセンシングへの応用（新分野の開拓）
  - 強誘電性材料のポリアミノ酸の圧電性能を利用して圧電インクを作製し、それを用いて印刷プロセスで圧力分布を計測できるフレキシブル大面積シートを作製した、これにより圧力センサーシートの安価な供給が可能となり、介護、ヘルスケア等の見守りセンシングデバイスへの応用とその普及が期待できる。
- ・ポリアミノ酸や DNA を強誘電体層に用いたトランジスタメモリの開発（画期的な科学技術の進展）
  - ポリアミノ酸や DNA をトランジスタの誘電体層に用いることでフレキシブルなトランジスタ型メモリを実現した。それらの分子の1次、2次、3次構造を制御することで、溶解性、耐熱性の高いメモリインクを作製した。また溶液プロセスで作製したトランジスタメモリで20日以上メモリ保持特性が確認できた。
- ・酸素ポンプを用いた銅インク還元焼成技術の劇的な進化（画期的な科学技術の進展）
  - 研究開始当初は、銅インクを基板に印刷した試料を産総研開発の酸素ポンプで作成した極低酸素分圧下で熱処理するによって、ある程度低い電気抵抗値を得ていたが、長時間焼成が必要であり、得られた試料からは粒成長が見られなかった。VTTの高速通電焼結技術等を参考にしつつ、処理技術・処理条件に改良を重ねた結果、45分間でバルク銅の2倍以内の低抵抗率を持ち、数10倍に粒成長した試料を得ることができるようになった。
- ・グラフェン酸化物からグラフェンへの酸素ポンプを用いた還元（新しい知の創造）
  - グラフェンの大量製造法として、グラフェン酸化物の還元によるルートが検討されている。従来は水素を用いた還元法でかつ高温加熱が必要であった。産総研開発の酸素ポンプによれば、通常の水素雰囲気よりも強い還元力を持つ極低酸素分圧雰囲気が発生可能で、処理温度の低減が期待される。VTTより提供を受けたグラフェン酸化物試料に対し、実際に酸素ポンプによる還元を行なったところ、従来よりも低温で還元され導電性が発現することを見出した。
- ・WORM（一度書き込み）メモリへの、スーパーインクジェット印刷（SIJ）／微細有版印刷技術の適用による微細化（画期的な科学技術の進展）
  - 産総研保有技術のSIJや微細有版印刷技術を利用してWORMメモリの微細化に成功した。従来の導体印刷はスクリーン印刷や一般的なインクジェット法が主流であったが、本研究では数マイクロメートルの線幅の極微細ビット印刷が可能となった。

### 6-2 人的交流の成果

#### 「相手側との研究交流につながる人材育成」の観点から

#### ・産総研およびVTTへの研究者の相互訪問および研究討論

- 2011年10月6日に、Fercon キックオフミーティングとして産総研から4名の研究者がVTTを訪問。双方の技術シーズを紹介しあった後、今後の共同研究計画について議論。産総研のスーパーインクジェット技術（SIJ）をVTTのWORMメモリに導入する実験計画を策定。オウルにあるVTTのプリンタブルエレクトロニクス用のロール・トゥ・ロール（R2R）のライン技術を検討。速度と生産性の向上に関する計画を策定した。
- 2012年2月13日に、VTT研究者3名が産総研を訪問。第2回Ferconミーティングを行った。産総研側は、ポリアミノ酸ベースの印刷メモリ素子やフレキシブル熱電変換素子などの技術開発状況の報告及びWORMメモリ上へのSIJによる細線作製の進捗報告を行った。VTT側は、垂直型熱電発電素子やR2Rに取り込まれた急速通電焼成プ

プロセス技術の開発状況を報告した。

- 2013年1月10日に、産総研から7名の研究者が VTT を訪問し、第3回 Fercon ミーティングおよび施設見学を行った。産総研側は、印刷デバイス、印刷プロセスの他、材料や印刷デバイス評価法、プロセスシミュレーションなどの研究開発進捗状況を報告した。また、酸化物半導体材料への通電焼成技術の導入など、新たな課題策定を行った。VTT 側からは、メモリ技術、焼成技術、半導体薄膜作製技術等に関する研究開発の進捗報告がなされた。また、オウルの VTT 研究施設にて、評価技術に関する討論、ならびに国際標準化に関する意見交換を行い、共通化すべき技術の双方での相違点、互換性点などの抽出を行った。



- 2013年3月5日に、VTT 研究者2名が産総研を訪問。第4回 Fercon ミーティングを開催した。産総研保有の酸素ポンプ技術を利用した還元法によるグラフェンの低温生成に関する研究進捗報告を行った。また、産総研が開発中の有版型微細印刷技術を用いた WORM メモリの印刷など、次年度に向けた新規研究提案があり、産総研研究者が次年度に VTT に滞在し、有版型微細印刷での WORM メモリの作製と特性評価を VTT 側研究者と共同で速やかに遂行するに至った。



- 2014年2月25～26日に、産総研の若手研究者2名が VTT (オウル) を訪問し、PE 関連技術国際セミナーである Printocento Seminar および Fercon ミーティングに参加した。Printocento Seminar では VTT 研究者や欧州のプリンテッドエレクトロニクス関連企業の開発情報を広く収集することができた。第5回 Fercon ミーティングでは、産総研側が高精細印刷技術の開発進捗状況の報告、VTT 側が WORM メモリの開発進捗報告を行い、今後、産総研が開発する印刷技術と VTT が開発するデバイスとのマッチングについて交流計画の策定を得るに至った。



- 2014年3月5～6日に、VTT 研究者2名が産総研を訪問した。3月5日は Fercon ファイナルミーティングにてこれまでの成果報告、および今後の連携関係についての協議、3月6日には産総研が開発中の技術である微細印刷法の実習を行い、印刷法に適合する WORM メモリの高精細化およびアレイデザインについて産総研側と協議を行い、今後の持続的な開発検討課題とした。

#### ・産総研および VTT への研究者の相互短期／中期滞在による共同実験

- 2012年6月2日～22日に、VTT (エスポー) の研究者2名が産総研を訪問し、産総研研究者と SIJ 技術を利用して、各種基板、各種銀インクで書き込み型の印刷メモリである WORM メモリデバイス作製およびメモリ書き込み実験を行った。SIJ を用いた場合、通常のインクジェットとは異なる特性が得られ、フューズモード型 WORM メモリの実現可能性が確認された。この成果は VTT 側と産総研側の共著論文として *IEEE Electron Device Letters* に掲載された。
- 2013年1月14日～25日に、産総研より若手研究者1名が VTT (エスポー) に滞在し、産総研で開発中の塗布型電子材料を VTT 保有の高速通電焼成技術で焼成する実験を行った。当初は焼成が不可能であったが、両者で問題を抽出し、装置の一部を改良すれば焼成できると予測して装置改良と実証実験を行ったところ、基板表面で材料が焼成されることを見出した。

- 2013年10月30日～2014年1月30日に、産総研より研究者1名がVTT（エスポー）に滞在し、産総研保有の微細印刷技術で印刷されたWORMメモリの特性評価を行った。本研究は、産総研保有の微細印刷技術をVTTが開発するWORMメモリ作製に導入する試みとして実施した。産総研でのテスト印刷を経て印刷されたフレキシブルWORMシートをVTTに持ち込み、1000素子以上の印刷品質評価、電気的特性評価および電子顕微鏡観察をVTT側研究者と協力して行った。加えて本滞在中には、VTTの研究施設における安全管理や情報管理に関して講義を受け、VTTの合理的かつ例外のない徹底的な管理システムに関して認識することができた。

#### ・研究交流で得られた成果に関する産総研・VTTの研究者との共著論文の投稿

- 産総研が保有するSIJ法を用いてフォトペーパー上にWORMを印刷し駆動させることに成功した成果を産総研・VTT共著論文として *IEEE Electron Device Letters* に投稿し掲載された。 ”Printed Low-Voltage Fuse Memory on Paper”, Leppaniemi, J., Mattila, T.; Eiroma, K.; Miyakawa, T.; Murata, K.; Alastalo, A., *IEEE Electron Device Letters* 2014, **35**, 354 - 356.

#### ・国際シンポジウム開催およびそれに向けた相互協力的な準備作業

- 2012年2月26日に世界最大のナノテク展示会であるNanotech 2012のサテライトであるプリンタブルエレクトロニクス展で、産総研側主催の国際シンポジウム「日欧プリンタブルエレクトロニクス最前線シンポジウム」を開催し、177名の参加があった。VTT側研究者のほか、フィンランド、ドイツ、日本から第一線の研究者を招き、PEに関する最先端の現状の発表と討論を繰り広げることができた。また、講師招聘プロセスでは、VTTを通じ欧州の一流研究者とのネットワークを構築することができた。
- 
- 2013年3月5日に産総研つくば中央事業所で産総研側主催の国際シンポジウム「日欧プリントドエレクトロニクスの最新動向とビジネス展望」を開催し、67名の参加があった。VTT側研究者の紹介で招聘したスウェーデンのThin Film社のCTOが同社の技術紹介と欧州におけるPEビジネス戦略に関する講演、日本の企業・大学の講師が日本最先端の印刷技術や材料について講演を行った。産総研側の研究者は、VTT研究者およびその他の招待講演者やシンポジウム参加者と活発に議論を交わし、関連分野の情報収集・情報発信に努めた。
  - 2014年3月4日に産総研臨海副都心センターで産総研側主催の国際シンポジウム「プリントドエレクトロニクスへの期待」を開催し、72名の参加があった。VTTからフィンランドや欧州でのプリントドエレクトロニクス関連の技術情報について講演、産総研からプリントドエレクトロニクス開発における知財戦略や標準化に関する情報を提供し、両者が公的研究機関ならではの情報発信を行った。本シンポジウムは、VTT側との共同準備段階で産総研側が発した「プリントドエレクトロニクスへのニーズはどの分野にあるのか？」という疑問に基づいて企画され、健康モニタリング、情報技術、社会インフラ構築の分野で活躍する奈良女子大学・梅田智広准教授や元エストニア共和国経済通信省局次長のRaul Allikivi氏の招聘につながった。また、スイスのETHやSONYのウエアラブルエレクトロニクスに関する技術情報・開発戦略など、PEデバイス開発の域を超えた講演による情報発信を提供でき、未来のPEについてVTT側研究者と活発な議論を行うことができた。
- 

「当該事業を端緒とした相手側との研究交流の増加/持続的発展の可能性」の観点から

- ・ HORIZON2020（欧州の研究助成事業）のカウンターパートとして共同研究を持続。
- ・ 国際標準化策定に関する共同作業の実施。
- ・ 当該事業において得られた成果の共著論文投稿・国際会議・展示会等での共同成果発信。
- ・ 情報収集および研究進捗報告・実験・技術研修のための定期的な研究者の派遣。

「その他」の観点から

- ・ 本交流プログラムの技術開発の推進ならびに交流成果の拡大普及に向けた取り組みとして、参加研究機関外の他国他機関との交流をも発展的に展開するに至った。相互の機関からお互いに推奨しあい、本交流課題推進により効果が得られる他機関（英、独、韓など）の訪問、技術開発討論を通して、研究開発成果の早期実現に努めた。
- ・ 本交流プログラムの成果普及拡大のための公開国際シンポジウム開催において、当該分野の第一線で活躍する他機関、産業界の第一線研究者を招聘し、交流及び成果の普及拡大に努めた。本交流プログラム中、アールト大（フィンランド）、ケムニッツ工科大（独）、ブラウンフオーファー研究所（独）、スイス連邦工科大（スイス）、Thin Film Electronics 社（スウェーデン）、ESTASIA 社（エストニア）などと、シンポジウムを通して交流を深めた。

7. 主な論文発表・特許等（5件以内）

相手側との共著論文については、その旨を備考欄にご記載ください。

| 論文<br>or<br>特許 | ・論文の場合： 著者名、タイトル、掲載誌名、巻、号、ページ、発行年<br>・特許の場合： 知的財産権の種類、発明等の名称、出願国、出願日、出願番号、出願人、発明者等   | 備考 |
|----------------|--|----|
| 論文             | J. Leppäniemi, T. Mattila, K. Eiro, T. Miyakawa, K. Murata, and A. Alastalo, "Printed Low-Voltage Fuse Memory on Paper", <i>IEEE Electr. Device Lett.</i> , <b>35</b> , 3, 354 (2014).   | 共著 |
| 論文             | N. Fukuda, Y. Watanabe, S. Uemura, Y. Yoshida, T. Nakamura, and H. Ushijima, "In-Ga-Zn oxide nanoparticles acting as oxide semiconductor material synthesized via coprecipitation-based method", <i>J. Mater. Chem. C</i> , <b>2</b> , 2448 (2014).                      |    |
| 論文             | Y. Kusaka, K. Sugihara, M. Kotake, and H. Ushijima, "Overlay of semi-dried functional layers in offset printing for rapid and high-precision fabrication of flexible TFTs", <i>J. Micromech. Microeng.</i> , <b>24</b> , 035020 (2014).                                  |    |
| 論文             | N. Shirakawa, K. Murata, Y. Kajihara, K. Nakamura, Y. Kashiwagi, M. Nakamoto, H. Sato, T. Kojima, D. Komiya, K. Shimizu, and K. Masuda, "Fine-Pitch Copper Wiring Formed with Super-Inkjet and Oxygen Pump", <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i> <b>52</b> , 号番号無し、05DB19 (2013). |    |
| 論文             | Manabu Yoshida, Sei Uemura, Hideo Tokuhisa, Noriyuki Takada, Toshihide Kamata, "Work Function Controlled Zn:Cu Electrode for All-Printed Polymer Diode", <i>Jpn. J. Appl. Phys.</i> , <b>51</b> , 02BK05 (2012).   |    |