

公益財団法人矢崎科学技術振興記念財団
理事長 殿

研究助成期間終了にあたり、下記の通り成果を報告します。

2026年 4月 27日

氏名 内山 晴貴

所属 東海国立大学機構名古屋大学

職位 助教

1. 申請研究の題目

フレキシブルセンサシステムの構築に向けたチップレット技術の開発

2. 研究の目的

ウェアラブルヘルスケアデバイス等の革新的なアプリケーションを実現するためには、柔軟な基板上にセンサ、トランジスタ、信号処理回路を集積したフレキシブルセンサシステムの構築が重要である。その構成材料として、ナノカーボン材料や有機半導体などのフレキシブル材料が期待されている。しかし、これらの材料は素子特性のばらつきが大きく、システム全体の性能や歩留まりを制限する要因となっている。また、材料ごとに耐熱性や薬品耐性が異なるため、異種材料を同一基板上で連続的にプロセスし、トランジスタやセンサを高密度に集積することは容易ではない。本研究では、これらの課題を解決するために、フレキシブル基板上に作製したトランジスタや回路素子を、転写プロセスによって別の基板上に集積する「フレキシブル材料のチップレット技術」の開発を目的とした。本技術では、個別に作製・評価した素子を選別し、パッチワーク状に再配置・接続することで、プロセス耐性の異なる異種材料素子の混載を可能にする。本研究では、異種フレキシブル材料を混載した高性能センサシステムの実現に向けて、フレキシブル素子の作製、転写・集積化に関する基盤技術を確立することを目的とした。

3. 研究の内容

本研究では、フレキシブル素子を任意の基板上へ再配置・集積するための基盤技術として、Parylene-C 薄膜上に作製した素子の剥離技術および微小薄膜片の転写技術の開発を行った。具体的には、カーボンナノチューブ(CNT)薄膜トランジスタをParylene-C 薄膜上に作製し、基板から剥離した後の電気特性を評価した。さらに、パッチワーク状の集積化に向けて、100 μm スケールのParylene-C 薄膜片を切り出し、PDMSスタンプを用いて別基板へ転写する技術を検討した。

3.1 CNT 薄膜トランジスタの剥離技術の確立

図 1(a)に示すように、Parylene-C 薄膜上に CNT 薄膜トランジスタを作製し、剥離・転写した。まず、Si 基板上にフッ素樹脂 CYTOP をスピコートにより成膜し、180 $^{\circ}\text{C}$ のホットプレート上で 30 分間ベークした。その後、CYTOP 上に Parylene-C を 1 μm 成膜し、フレキシブル支持膜として用いた。次に、ゲート電極を電子線蒸着により形成し、原子層堆積法によりゲート絶縁膜 Al_2O_3 を堆積した。その後、ゲルクロマトグラフィにより分離した半導体 CNT 分散液に基板を浸漬することで、CNT 薄膜を成膜した。続いて、ソース・ドレイン電極として Ti/Au 電極を電子線蒸着により形成し、酸素プラズマ処理によりチャネル領域をパターニングした。最後に保護膜としてレジストを塗布した。図 1(b)に、Si/CYTOP 基板から剥離した後の CNT 薄膜トランジスタアレイの写真を示す。Parylene-C 薄膜は破断することなく基板から剥離できており、デバイスを保持したままフレキシブル支持膜として取り出せることが確認された。

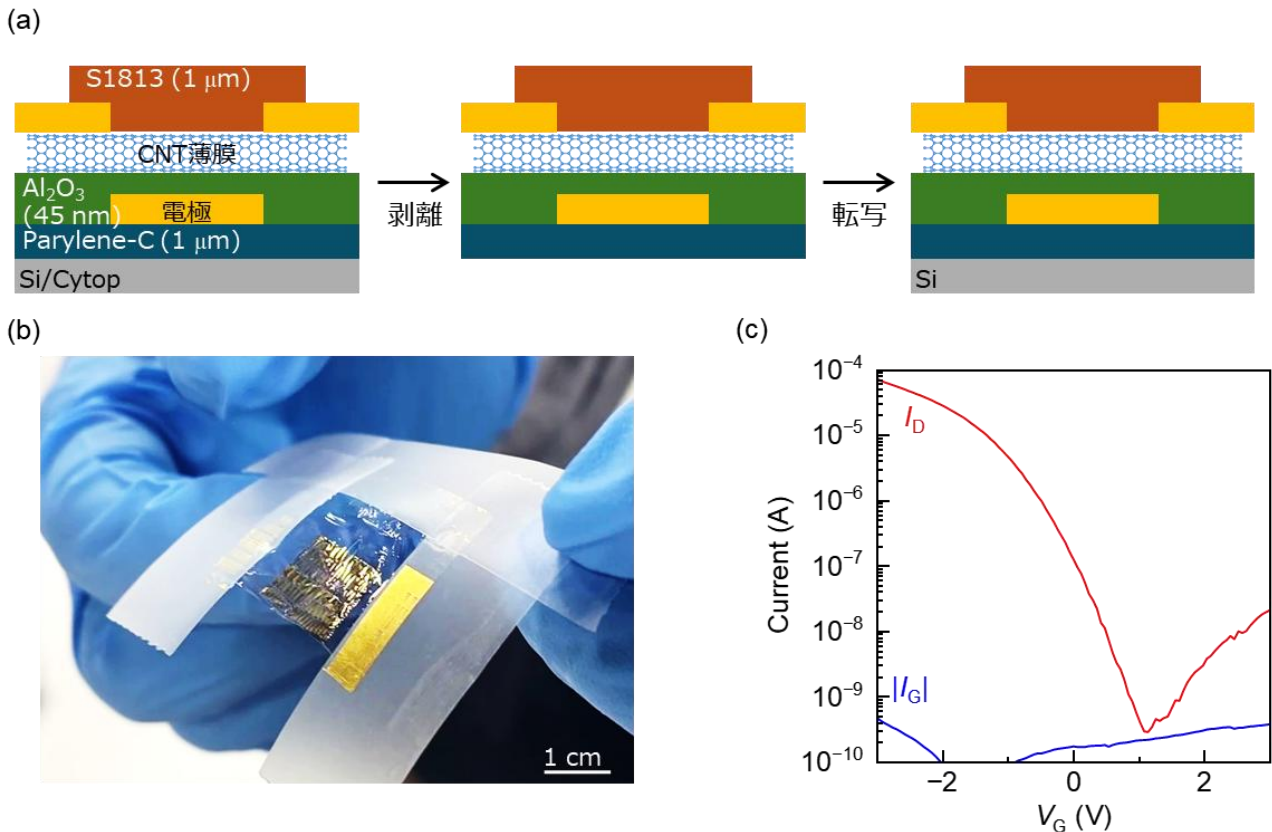


図 1 (a) Parylene-C 薄膜上に作製した CNT 薄膜トランジスタの剥離・転写プロセス。
 (b) Si/CYTOP 基板から剥離したデバイス写真。(c) 剥離・転写後の CNT 薄膜トランジスタの伝達特性。

作製したデバイスを Si/CYTOP 基板から剥離し、別の Si 基板上へ転写した後、半導体パラメータアナライザ(Keysight, B1500)を用いて電気特性を評価した。図 1(c)に、剥離・転写後の CNT 薄膜トランジスタ(チャンネル長 10 μm , チャンネル幅 500 μm)の伝達特性(ドレイン電圧 -0.5 V)を示す。剥離後のデバイスにおいても、典型的なトランジスタ動作が確認された。また、ゲートリーク電流は小さく抑えられており、剥離プロセスによるゲート絶縁膜の破壊や、電極構造への深刻な損傷は生じていないことが示された。

以上の結果から、Si 基板上に形成した CYTOP 層を剥離層として利用することで、Parylene-C 薄膜上に作製した CNT 薄膜トランジスタを、大きな電気的劣化なしに剥離・転写できることを確認した。従来検討していた酸化グラフェンを剥離層として用いる方法では、剥離層が薄膜側に残存し、転写先基板との接着性に影響を及ぼす可能性があった。一方、本研究で用いた CYTOP/Parylene-C 界面での剥離では、Parylene-C 薄膜のみを取り出すことが可能であり、転写先基板との良好な接着性が期待できる。

3. 2 Parylene-C 薄膜片の転写技術の確立

次に、フレキシブル素子をパッチワーク状に再配置する技術の確立に向けて、100 μm スケールの Parylene-C 薄膜片の転写技術を検討した。本実験では、マイクロマニピュレータ付きカッターを導入した光学顕微鏡を用いて任意の領域を切り出し、PDMS スタンプを用いた転写システムにより、パリレン薄膜片をガラス基板上へ転写した。

図 2 に、転写装置セットアップ、転写プロセスフロー、および転写前後の光学顕微鏡写真を示す。ここでは、Parylene-C 薄膜上に形成した金属電極パターンを転写対象とした。まず、ガラス基板上に形成した PDMS スタンプを、切り出した薄膜片に接触させた後、引き上げることで薄膜片を基材から剥離した。このとき、サンプルを設置したステージは 70 $^{\circ}\text{C}$ に加熱した。次に、PDMS スタンプ上に保持された薄膜片を、転写先であるガラス基板上に接触させた後、スタンプを引き上げることで転写を行った。この際、転写先基板を設置したステージは 80 $^{\circ}\text{C}$ に加熱した。その結果、100 μm スケールの薄膜片をガラス基板上へ転写することに成功した。

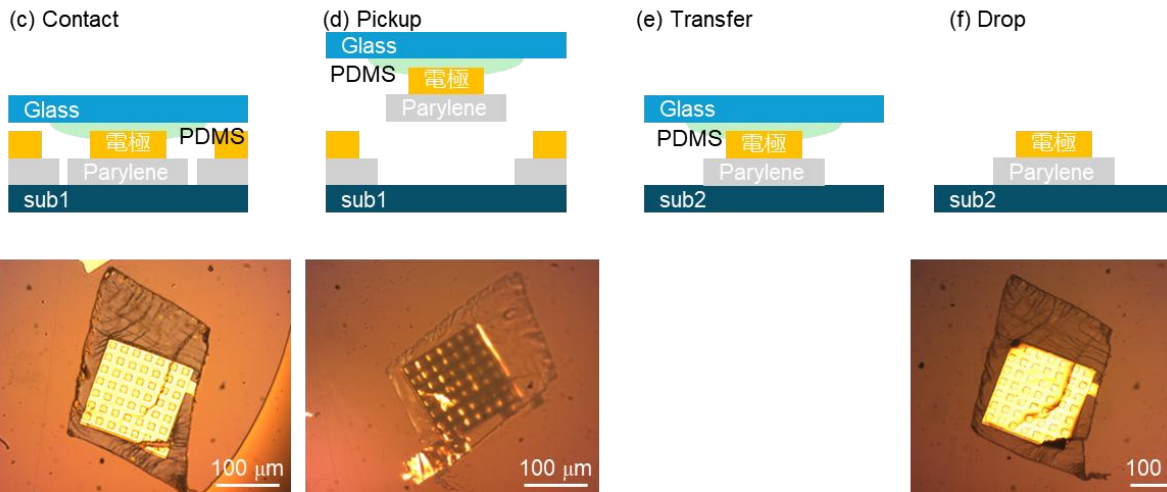
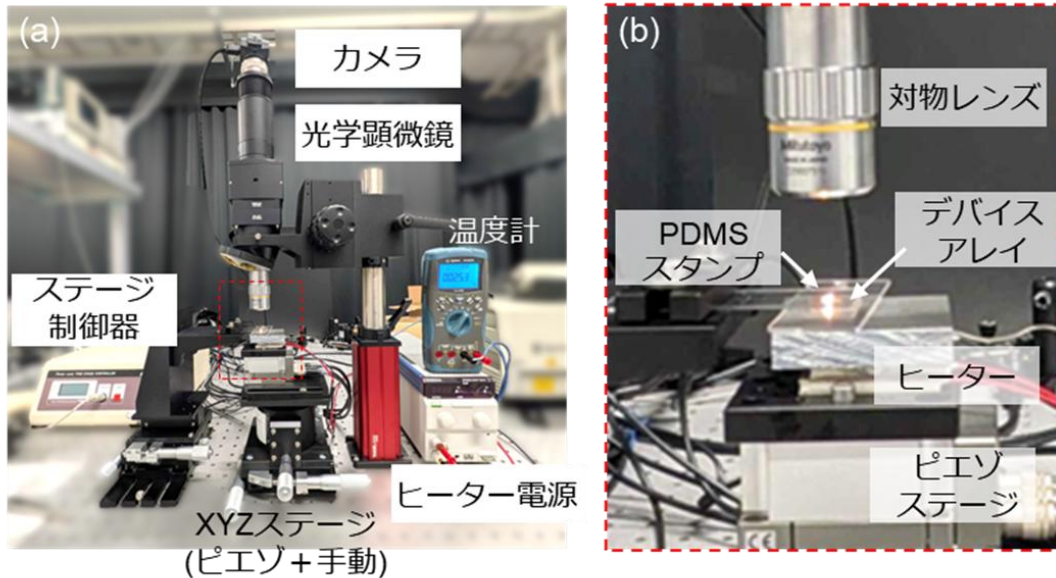


図 2 (a) PDMS スタンプを用いた Parylene-C 薄膜片の転写装置. (b) 転写部の拡大写真.
 (c-f) Parylene-C 薄膜片のピックアップおよび転写プロセスの模式図(上)および光学顕微鏡像(下).

転写後の光学顕微鏡観察から、切り出し時に薄膜にしわが生じる場合があるものの、転写前後で金属電極の破断などの顕著な損傷は確認されなかった。一方で、薄膜の切り出し時に発生するしわは、カッター刃と Parylene-C 薄膜との機械的接触に起因すると考えられ、今後の改善が必要である。また、マイクロマニピュレータ付きカッターによる切り出しは手動操作に依存するため、位置精度や薄膜片サイズの微細化に限界がある。今後は、フォトリソグラフィと酸素プラズマエッチングを組み合わせた Parylene-C 薄膜のパターニング技術を導入することで、切り出し時の機械的損傷を低減し、より高精度かつ再現性の高い加工プロセスの確立を目指す。これにより、フレキシブル素子を任意の位置へ選択的に配置するパッチワーク型集積技術の実現が期待される。

4. 研究の成果と結論、今後の課題

本研究では、フレキシブルセンサシステムの構築に向けて、フレキシブル素子を別基板上へ再配置・集積するための基盤技術を検討した。具体的には、Parylene-C 薄膜上に CNT 薄膜トランジスタを作製し、剥離後の電気特性を評価するとともに、PDMS スタンプを用いた 100 μm スケールの薄膜片の転写技術を検討した。その結果、CYTOP を剥離層として用いることで、Si 基板上に形成した薄膜片を剥離できることを確認した。剥離後の CNT 薄膜トランジスタにおいても、典型的な伝達特性が観測され、ゲートリーク電流も小さく抑えられていた。このことから、本剥離プロセスは、ゲート絶縁膜や電極構造に深刻な損傷を与えず、フレキシブル素子を基板から取り出す手法として有効であることが示された。さらに、PDMS スタンプを用いることで、100 μm スケールの Parylene-C 薄膜片をガラス基板上へ転写できることを実証した。転写前後で金属電極の破断などの顕著な損傷は確認されず、微小なフレキシブル薄膜片を別基板上へ再配置できる可能性が示された。一方で、現状の切り出し工程では、カッターとの機械的接触により薄膜にしわが生じる場合があり、位置精度やサイズの微細化にも制限がある。今後は、フォトリソグラフィと酸素プラズマエッチングを用いたパリレン薄膜のパターニング技術を導入し、高精度かつ再現性の高い加工プロセスを確立する。さらに、転写後の密着性、位置合わせ精度、配線接続の信頼性を向上させ、複数素子からなるフレキシブル回路やセンサシステムの実証へ展開することが課題である。

5. 成果の価値

5-1. 学術的価値

本研究の学術的価値は、Parylene-C 薄膜上に形成したデバイスを、電気特性を維持したまま剥離・転写できることを実験的に示した点にある。特に、CYTOP/Parylene-C 界面を利用することで、Parylene-C 薄膜のみを取り出す剥離プロセスが、CNT 薄膜トランジスタの動作と両立することを確認した。また、100 μm スケールの Parylene-C 薄膜片を PDMS スタンプにより転写できることを示し、フレキシブル素子を微小な薄膜片として取り扱うための基礎的な加工・転写指針を得た。これらの知見は、フレキシブル素子の作製プロセスと転写プロセスを分離して考える集積技術の基盤となるものであり、異種フレキシブル材料の集積化に向けた学術的発展に貢献する。

5-2. 社会的価値

本研究の社会的価値は、ウェアラブルヘルスケアデバイスや環境モニタリングデバイスに用いられる、柔軟で軽量のセンサシステムの実現に向けた基盤技術を提供する点にある。本研究で検討したチップレット技術により、材料やプロセス条件の異なるフレキシブル素子を個別に作製し、後から集積できる可能性が示された。これにより、耐熱性や薬品耐性の違いによって同一基板上への集積が難しかったセンサ、トランジスタ、信号処理回路を組み合わせるための技術的な選択肢が広がる。また、作製後に良好な特性を示す素子を選別して集積できれば、システム全体の歩留まりや信頼性の向上にもつながる。したがって、本研究成果は、次世代ウェアラブルデバイスやフレキシブル IoT デバイスの社会実装に向けた基礎技術として価値を有する。

6. 研究成果

・「研究論文(原著)」

該当なし

・「国際会議発表」

1. H. Uchiyama, Y. Yoshikawa, H. Kataura and Y. Ohno, "Detection of process-induced contaminants on carbon nanotubes using Raman spectroscopy", *The 25th Int. Conf. on the Science and Applications of Nanotubes and Low-Dimensional Materials*, 19psa-31 (2025)

- ② M. Ishihara, H. Uchiyama, H. Kataura and Y. Ohno, "Simple voltage reference circuits exploiting ambipolar conduction of CNT FETs", *The 69th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, 3P-48 (2025)
3. H. Uchiyama, D. Matsubara, E. Kuromiya, M. Matsunaga, H. Kataura and Y. Ohno, "Interface trap density of carbon nanotube thin-film transistors measured by conductance method", *15th A3 Symposium on Emerging Materials: Nanomaterials for Electronics, Energy, and Environment*, (2025)
4. H. Uchiyama, Y. Yoshikawa, H. Kataura and Y. Ohno, "Raman spectroscopic detection of surface contaminants on carbon nanotubes", *The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2025*, (2025)
5. N. Sugihara, H. Uchiyama, H. Kataura and Y. Ohno, "Low-temperature p-type doping using UV/ozone-oxidized Parylene-C for flexible top-gate carbon nanotube thin-film transistors", *The 70th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, 3P-19 (2026)
6. Y. Sekine, D. Matsubara, E. Kuromiya, H. Uchiyama, M. Matsunaga, H. Kataura and Y. Ohno, "Effect of Removing Surface Adsorbates on Interface state density in Carbon Nanotube Thin-Film Transistors", *The 70th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium*, 2P-20 (2026)

・「特許」

1. 内山晴貴, 石原槇人, 大野雄高, "定電圧回路およびフレキシブルデバイス", 特願 2025-131883, 2025.08.06

・「受賞」

該当なし

以上