

平成22年 4 月 10 日現在

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2007～2010

課題番号：19206039

研究課題名（和文） フレキシブル有機強誘電体メモリにおける低電圧・高集積回路の研究

研究課題名（英文） Study on Low-Voltage High-Density Integrated Circuits in Flexible Organic Ferroelectric Memories

研究代表者

石原 宏 (HIROSHI ISHIWARA)

東京工業大学・大学院総合理工学研究科・教授

研究者番号：60016657

研究代表者の専門分野：半導体デバイス工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 ・ 電子デバイス・電子機器

キーワード：有機強誘電体、有機半導体、フレキシブルメモリ、強誘電体ゲートトランジスタ、PVDF/TrFE

## 1. 研究計画の概要

(1) 本研究では低電圧、低消費電力で動作する高集積不揮発メモリを、有機強誘電体膜を用いてフレキシブル基板上に作製することを目的としており、まず有機強誘電体材料である P(VDF-TrFE) のメモリ応用に向けた最適化を図る。

(2) P(VDF-TrFE) の基本メモリ動作を確認するために、Si 基板上にこの膜を堆積し、メモリトランジスタを作製する。

(3) P(VDF-TrFE) と有機半導体であるペンタセンとの組み合わせにより、全有機メモリトランジスタを作製する。また基板を PET などのフレキシブルなものに変えて、特性を評価する。

(4) フレキシブル基板上に有機メモリ集積回路を作製する。

## 2. 研究の進捗状況

(1) 電源を切ってもデータが消えない不揮発メモリの動作に必要な特性として、データの書き換え回数と保持時間がある。P(VDF-TrFE) を用いたメモリキャパシタにより、これらのデータを測定した場合、それぞれ $10^5$ 回と 10 分間程度であった。この特性を改善するために、各種の濃度の PMMA を添加した結果、4 重量%において、書き換え回数を $10^6$ 回以上に、データの保持時間を 6 時間以上に改善することができた。一方、添加量が多すぎる場合には、膜にクラックが入るなどの問題が発

生した。

(2) Si 基板上に PMMA 添加 P(VDF-TrFE) を堆積して強誘電体ゲートトランジスタを作製し、良好な動作を確認した。トレイン電流 - ゲート電圧特性におけるヒステリシス幅（メモリ幅）は、掃引電圧 11V において 5V、電流オンオフ比は $10^7$ 、ゲートリーク電流は $2 \times 10^{-10}$  A であった。また、書き込みパルス幅を狭くすると電流のオンオフ比が小さくなり、データを書き込める最小のパルス幅は 100 ms であった。

(3) 集積回路を作製する場合、個々のトランジスタは、トップゲート型が望ましい。しかし、トップゲート型を作製する場合には、ペンタセン膜の上に P(VDF-TrFE) 膜を堆積する必要があり、両者が混ざり合うことを避けるために P(VDF-TrFE) の溶媒を最適化する必要がある。種々の溶媒の中から、ペンタセントランジスタの特性が余り劣化しない有力な候補を見出した。

## 3. 現在までの達成度

③やや遅れている。

(理由)

P(VDF-TrFE) の性能向上、ならびに Si 基板を用いたメモリ特性の確認に関しては当初の予定通りの成果が得られたと考えている。ペンタセンと P(VDF-TrFE) を組み合わせたトランジスタの作製では、今までの報告にあるようなボトムゲート型では、集積回路としての性能が不十分と考え、トップゲート型を選択している。しかし、両者が混ざり合わない

溶媒の開発がやや遅れており、これまでにトップゲート型トランジスタの作製に至らなかった。

#### 4. 今後の研究の推進方策

(1) 溶媒の有力候補が明らかになったので、さらに条件を詰めてトランジスタの作製を行う。基板としては、ガラスなどの固い基板から始め、安定した特性が得られた後にフレキシブル基板に変える。

(2) トランジスタをマトリックス状に配置して、集積化メモリの実現を目指す。

#### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① J-W.Yoon, S-M.Yoon and H.Ishiwara, “Improvement of ferroelectric fatigue endurance in poly(methyl metacrylate)-blended poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene)”, Jpn. J. Appl. Phys. **49**, 030201 (3 pages) 2010 査読有
- ② J-W.Yoon, B-E.Park and H.Ishiwara, “Comparative study on metal-ferroelectric-Insulator-semiconductor diodes composed of poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) and poly(methyl metacrylate)-blended poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene)”, Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 09KA21 (4 pages) 2009 査読有
- ③ Md.Akhtaruzzaman, S.Ohmi, J.Nishida, Y. Yamashita and H.Ishiwara “Study on stability of pentacene-based metal-oxide-semiconductor diodes in air using capacitance-voltage characteristics”, Jpn. J. Appl. Phys. **48**, 04C178 (3 pages) 2009 査読有
- ④ J-W.Yoon, S.Ohmi, B-E.Park and H.Ishiwara, “Impact of Kr gas mixing in oxygen plasma etching of ferroelectric poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymer films”, Appl. Phys. Lett. **93**, 162904-162906, 2008 査読有
- ⑤ S.Fujisaki, H.Ishiwara, and Y.Fujisaki, “Organic ferroelectric diodes with long retention characteristics suitable for non-volatile memory applications, Appl. Phys. Express, **1**, 081801-081803, 2008 査読有

[学会発表] (計 9 件)

- ① H.Ishiwara, “Studies on organic ferroelectric memories”, WCU Intern. Conf. on Quantum Phases

and Devices, Oct. 29, 2009, Seoul

- ② Md.Akhtaruzzaman, S.Ohmi and H.Ishiwara, “Electrical characteristics and air-stability of pentacene based MOS diodes”, Fall Meeting of Mater. Res. Soc. Dec. 3, 2008, Boston
- ③ J.W.Yoon, S.Ohmi and H.Ishiwara, “Ferroelectric characteristics of p(VDF-TrFE) thin films patterned by plasma etching”, 20th Intern. Sympo. on Integrated Ferroelectrics, June 11, 2008, Singapore