

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 5 月 20 日現在

機関番号：17701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04093

研究課題名(和文) 変形下での有機半導体デバイスの電気的性能劣化を引き起こす機械的要因の解明

研究課題名(英文) Elucidation of mechanical factors in degradation of electrical performance of organic semiconductor devices under mechanical deformation

研究代表者

小金丸 正明 (Koganemaru, Masaaki)

鹿児島大学・理工学域工学系・准教授

研究者番号：20416506

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：p型の有機薄膜トランジスタ(OTFT)を対象とし、機械的負荷に起因する電気特性変動および電気的破壊を実験的に評価した。

機械的負荷が比較的小さな領域での電気特性変動評価では、曲げ負荷・面内引張り負荷・面外圧縮負荷による相互コンタクト率の変化率がいずれも機械的応力に対して減少し、定量的には面外圧縮負荷、曲げ負荷、面内引張り負荷の順で大きくなることを明らかにした。機械的負荷が大きな領域での電気的破壊の評価では、機械的負荷がOTFT用ゲート絶縁層の絶縁性能へ及ぼす影響を実験的に評価した。その結果、ゲート絶縁層の絶縁性能変化(リーク特性)に基板材料の応力-ひずみ特性と相関があることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

有機半導体デバイスは、フレキシブルな基板上に作製することで、薄くて軽く、形状変化に優れた電子機器・デバイスを実現可能にする。換言すれば、フレキシブルデバイスとして変形下(機械的負荷下)での利用が想定されており、そのような環境下でのデバイスの機械的・電気的信頼性の担保が必須となる。

本研究では、有機薄膜トランジスタ(OTFT)を対象とし、機械的負荷に起因する電気特性変動および電気的破壊を実験的に評価した。本研究成果は、有機半導体デバイス・製品の信頼性を担保する上での基礎的知見となる。

研究成果の概要(英文)：We experimentally evaluated electrical characteristic fluctuations and electrical failure of p-type organic thin film transistors (OTFTs) under mechanical load.

In the region under low mechanical load, the rate of change in G_m (amplification rate) all decreased under bending load, in-plane tensile load, and out-of-plane compressive load. In addition, it was demonstrated that the rate of change under out-of-plane compressive load is the biggest. In the region under high mechanical load, the effects of the mechanical load on the insulation performance of the gate insulating layer of OTFTs were experimentally evaluated. As a result, it was shown that the change in insulation performance (leak characteristics) of the gate insulating layer correlated with the stress-strain characteristics of the substrate material of the OTFT.

研究分野：電子実装における信頼性評価

キーワード：有機薄膜トランジスタ 機械的負荷 電気特性変動 ゲート絶縁膜

1. 研究開始当初の背景

有機半導体デバイスからなるフレキシブルデバイスの市場は、ウェアラブル/ヘルスケア機器や自動車用のセンサ、流通管理用の電子タグ等への実用化が見込まれ、2030年には8兆円規模に成長すると試算されている。これまでの有機半導体デバイスの研究開発は、電気特性の発現・向上を目的とした材料開発およびプロセス技術の開発に重きが置かれてきた。しかしながら、製品としての実用化を念頭に置けば、機械的問題に関わる信頼性の確保が必須である。

Si 半導体デバイスにおいては、実装残留応力が電気特性（デバイス特性）の変動を引き起こして、最終電子製品に不具合を生じさせることが知られており、半導体メーカ・実装メーカでしばしば問題となっている。有機半導体デバイスにおいても、変形（機械的負荷）下での使用が想定されるため、機械的負荷が引き起こす電気特性変動・電気的破壊の問題が実用化・製品化過程で顕在化することは間違いない。したがって、この様な信頼性の問題を引き起こす物理現象の解明と、その知見に基づいた評価手法・設計指針の確立が望まれている。

2. 研究の目的

機械的負荷により、有機半導体デバイスの電気特性が変動すること、場合によっては不可逆な電気的破壊が生じることが明らかとなっている^{①~③}。この様な現象を電圧-電流特性を例に取り模式的に示すと、図1のように表される。本研究では、(1)機械的負荷が比較的小さな領域では、機械的負荷の量（例えばひずみの大きさ）に対する電気特性（図1では電流値）の変動を定性的・定量的に評価することを目的とした。また、(2)機械的負荷が大きな領域では、ゲート絶縁層に着目し、機械的負荷と絶縁性能劣化の関係を明らかにすることを目的とした。

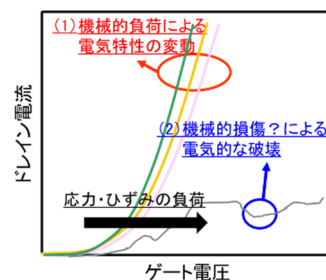


図1 機械的負荷に起因する電気特性変動・電気的破壊の模式図

3. 研究の方法

p型有機薄膜トランジスタ（Organic Thin-film Transistor：OTFT）を対象とし、機械的負荷に起因する電気特性変動（(1)機械的負荷が比較的小さな領域）および電気的破壊（(2)機械的負荷が大きな領域）を実験的に評価した。

(1)機械的負荷が比較的小さな領域

機械的負荷が比較的小さな領域での電気特性変動評価では、p型 OTFT（diF-TES-ADT および Pentacene）に対し、曲げ負荷（引張り応力）、面内引張り負荷および面外圧縮負荷を加え、ドレイン電流の変化および相互コンダクタンスの変化を評価した。これにより、異なる負荷様式間での電気特性変動の相関について評価した。

(2)機械的負荷が大きな領域

機械的負荷が大きな領域での電気的破壊の評価では、機械的負荷が OTFT 用ゲート絶縁層の絶縁性能へ及ぼす影響を実験的に評価した。その際、ゲート絶縁層の絶縁性能にフォーカスするため、ボトムゲート型 OTFT 構造から半導体層を取り除いた試験体構造（図2に示す“半導体レス”試験片）を新たに考案した。考案した試験体に1軸引張り荷重を負荷した状態で電気的境界条件を与え、試験体の応力-ひずみ特性とゲート絶縁層の絶縁性能（リーク電流）の関係を評価した。

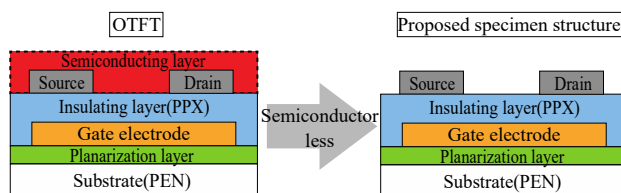


図2 通常の OTFT 構造（左）から半導体層を除いた“半導体レス”試験片構造（右）

4. 研究成果

(1)機械的負荷が比較的小さな領域

評価対象の OTFT は、半導体層が diF-TES-ADT または Pentacene の2種類である。diF-TES-ADT を用いた OTFT はボトムゲート・ボトムコンタクト構造を有し、基板材料としてポリエチレンテレフタレート（PEN）フィルム（厚さ：125 μ m）を用いた。チャンネル長は30 μ m、チャンネル幅は850 μ mである。Pentacene を用いた OTFT はボトムゲート・トップコンタクト構造を有し、基板材料としてポリイミドフィルム（厚さ：125 μ m）を用いた。チャンネル長は150 μ m、チャンネル幅は1000 μ mである。

OTFT 試験片に対し、曲げ負荷（引張り応力）、面内引張り負荷および面外圧縮負荷を加え、ドレイン電流の変化および相互コンダクタンスの変化を評価した。曲げ負荷は、所定の直径を持った木製の丸棒に試験片を巻き付けることによって負荷した。面内引張り負荷は、引張り試験機により1軸引張り試験により負荷した。引張り試験（面内引張り負荷）の様子を図3に示す。面外

圧縮負荷は、OTFT をジグで挟んで圧縮荷重を負荷した。diF-TES-ADT に対する電氣的境界条件は、ソース・ドレイン間電圧を-18V に固定し、ゲート電圧を-18~10V で掃引した。Pentacene に対する電氣的境界条件は、ソース・ドレイン間電圧を-5V に固定し、ゲート電圧を-10~5V で掃引した。電氣的境界条件を与え、ソース・ドレイン間電流を計測した。

実験結果として、diF-TES-ADT に対する面外圧縮負荷を例に取り、負荷応力に対するゲート電圧・ドレイン電流曲線の変化を図 4 (a) に示す。図 4 (b) には、図 4 (a) の結果から得られる相互コンダクタンス (Gm) の負荷応力に対する変化を示す。この結果、面外圧縮負荷によりドレイン電流値が減少することが分かった。なお、面外圧縮応力 6MPa では、漏れ電流が発生した。これらは、ソース・ドレイン電極と半導体層の界面にき裂が生じ接触抵抗が増加したことや、半導体層を分断するようなき裂が生じ、キャリアの移動が妨げられたことなどが考えられる。また、Pentacene においても面外圧縮負荷によりドレイン電流値が減少することが分かった。

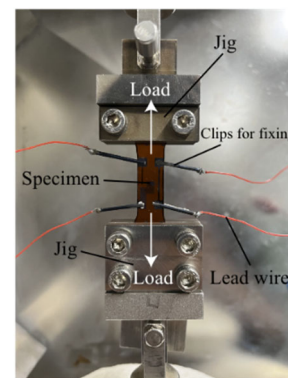


図 3 引張り試験 (面内引張り負荷) の様子

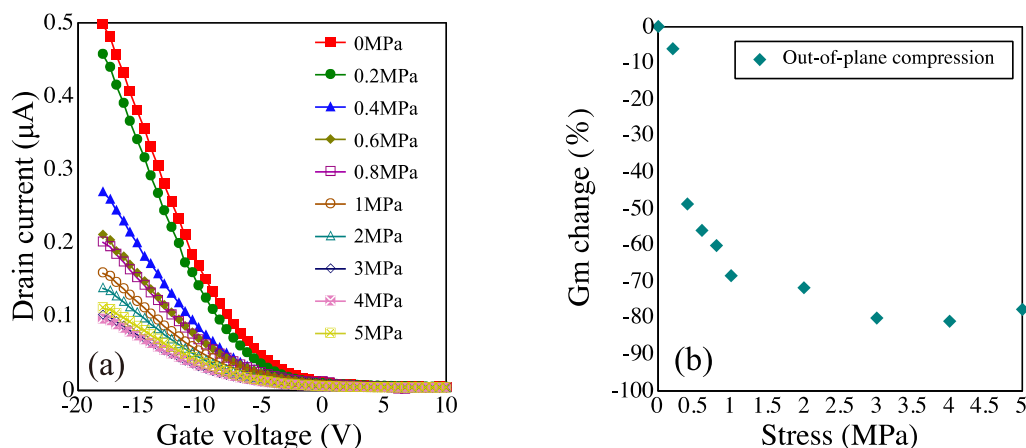


図 4 面外圧縮負荷による diF-TES-ADT の電気特性変動 (a)ゲート電圧・ドレイン電流曲線の変化、(b)相互コンダクタンス (Gm) の変化

曲げ負荷 (引張り応力) の場合も diF-TES-ADT および Pentacene とともに同様の傾向を示し、曲げ応力の増加に伴いドレイン電流値が減少することが分かった。また、今回実施した負荷範囲では、diF-TES-ADT (< 64MPa) および Pentacene (< 47MPa) の伝達特性が、いずれも除荷することではほぼ初期状態 (曲げ負荷試験前) に戻ることが分かった。

面内引張り負荷の場合も同様で、diF-TES-ADT および Pentacene とともに同様の傾向を示し、面内引張り負荷によりドレイン電流値が減少することが分かった。また、今回の負荷領域である基板材料の弾性域となる負荷では、除荷することで伝達特性がほぼ初期状態 (面内引張り負荷試験前) に戻ることが分かった。基板材料の弾性域内での負荷では、半導体層やソース・ドレイン電極、絶縁膜等において、不可逆な変形や破壊は生じないと考えられる。

表 1 OTFT (diF-TES-ADT および Pentacene) の異なる負荷様式間での電気特性変動の評価結果

	曲げ負荷 (引張り)	面内引張り負荷	面外圧縮負荷
ドレイン電流の増減 (↑/↓)	diF-TES-ADT : ↓ Pentacene : ↓	diF-TES-ADT : ↓ Pentacene : ↓	diF-TES-ADT : ↓ Pentacene : ↓
除荷後のドレイン電流 (0 MPa)	diF-TES-ADT : 回復 (64 MPa 除荷後) Pentacene : 回復 (47 MPa 除荷後)	diF-TES-ADT : 回復 (36 MPa 除荷後) Pentacene : 回復 (70 MPa 除荷後)	diF-TES-ADT : 回復しない (0.2 MPa 除荷後) Pentacene : 回復しない (0.6 MPa 除荷後)
Gm 変化率の 応力感度	diF-TES-ADT (32 MPa) : -15 % Pentacene (31 MPa) : -14 %	diF-TES-ADT (24 MPa) : -3.0 % Pentacene (20 MPa) : -3.7 %	diF-TES-ADT (0.6 MPa) : -56 % Pentacene (0.6 MPa) : -99 %
Gm 変化率の 比較	Gm 変化率 diF-TES-ADT ≧ Pentacene	Gm 変化率 diF-TES-ADT ≧ Pentacene	Gm 変化率 diF-TES-ADT < Pentacene (破壊モードの違いによる可能性)

本研究で得られた結果を表1にまとめて示す。本研究では、曲げ負荷・面内引張り負荷・面外圧縮負荷による相互コンダクタンス（増幅率）変化率が、いずれも機械的応力に対して減少することが分かった。また、定量的には面外圧縮負荷、曲げ負荷、面内引張り負荷の順で大きくなることを明らかにした。面外圧縮負荷においては、曲げ負荷および面内引張り負荷に比較して、小さな負荷においても不可逆的な電気特性変動が生じることが分かった。これら本研究で得られた知見は、有機半導体デバイスを実用化する上での評価手法・設計指針の確立に有用である。

(2) 機械的負荷が大きな領域

本研究では、機械的負荷による OTFT の電氣的破壊の一因がゲート絶縁層の損傷や破壊によるものと推察し、機械的負荷とゲート絶縁層の絶縁性能変化に着目した。具体的には、ゲート絶縁層の絶縁性能にフォーカスするため、図2に示した“半導体レス”試験片を用いた評価を行った。図2の試験体構造では、上部電極と下部電極がゲート絶縁層により絶縁されているが、機械的負荷によって絶縁層の絶縁性能が劣化するとリーク電流が検出されることとなる。この試験体を用いることにより、機械的負荷と絶縁性能の相関を実験的に評価した。具体的には、試験体の応力-ひずみ特性とそれに対応するゲートリーク電流の変化の関係について評価した。また、試験体に幾つかの異なる電氣的境界条件を与え、OTFT の実駆動条件で生じる電流リークパスの推定を行った。さらに、レーザー顕微鏡を用いて絶縁層表面の損傷を観察し、リーク電流との相関を評価した。

図5には、実験によって得られた機械的負荷下での試験体 (Specimen #1~#4) のひずみと検出されるリーク電流の関係を示す。電氣的境界条件は、図5中に示す通りである。いずれの試験体においても、ひずみの増加にともないリーク電流の増加が確認された。また、10%程度以上のひずみ印加によって、電流値が最大で $10^4 \sim 10^5$ 倍の増加を示した。OTFT の ON/OFF 比は、一般的に $10^3 \sim 10^6$ であるため、これらのひずみに対する絶縁性能変化は OTFT の動作機能を損なう可能性がある。図6には、図5の結果からゲート電圧が $-18V$ 時のリーク電流値をひずみに対してプロットしている。この結果、ひずみに対するリーク電流の変動が、3つの領域に分類されることが分かった。すなわち、0~1.5%程度のひずみ範囲で絶縁性が保持されている領域、1.5~4.0%程度のひずみでリーク電流の増加が見られる領域、4%のひずみ以上で電流増加が飽和する領域である。ここで図6の結果において、リーク電流の増加開始：“リークしきい値ひずみ”を電流値のオーダーが1桁以上増加する始点のひずみとして定義した。また、電流増加の飽和開始：“リーク飽和しきい値ひずみ”を各電流値間の差分の電流変化率が10%未満となる始点のひずみと定義した。図7には、リークしきい値ひずみ (図7中の△印)、およびリーク飽和しきい値ひずみ (図7中の▽印) を各試験片の応力-ひずみ曲線上にそれぞれプロットしている。その結果、リークしきい値ひずみは1.0~1.3%程度のひずみであることが分かった。すなわち、試験片の降伏点の4~7割程度に相当するひずみでリーク電流の増加が発現することが分かった。一

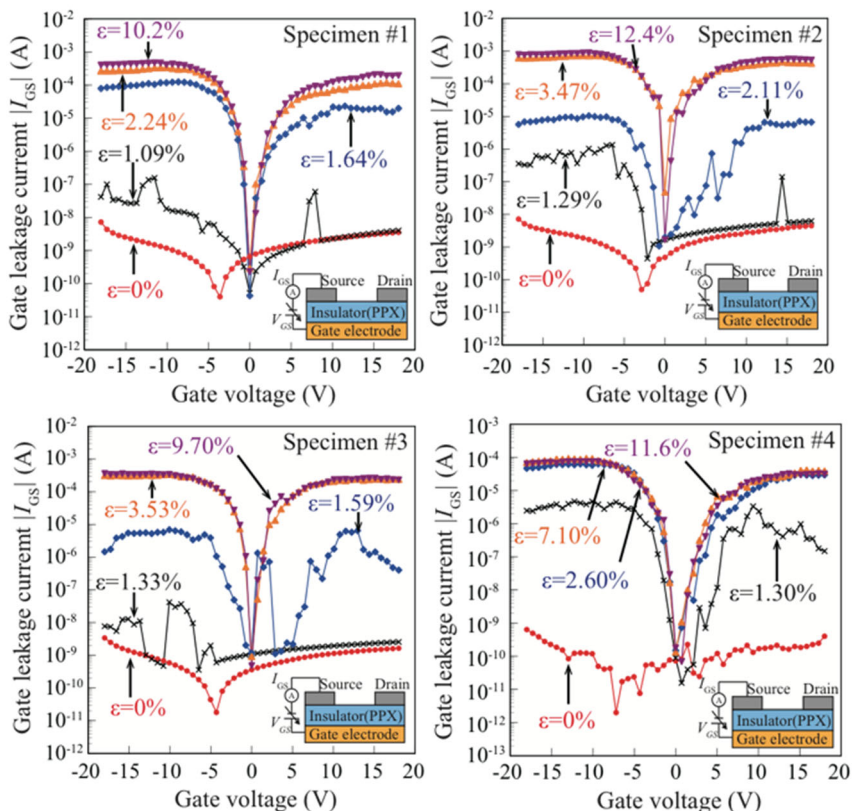


図5 機械的負荷下でのリーク電流の変化 (Specimen #1~#4)

方、リーク飽和しきい値ひずみは 3~4%程度のひずみであり、すなわち試験片の降伏点近傍に相当するひずみ領域において電流増加の飽和が発現することが分かった。本研究で用いた試験片や一般的な OTFT の断面構造では、基板材料の厚みは試験体の厚みの大半を占める。したがって、試験片の応力-ひずみ特性は基板材料の特性と見なせる。すなわち、ゲート絶縁層のリーク特性の変化は、基板材料の応力ひずみ特性と相関があることが示唆された。この定量的な相関は、絶縁層の機械的特性と基板材料の機械的特性との兼ね合いで決まると考えられる。例えば、基板と絶縁層のそれぞれのヤング率や破断伸びの差によって決まると推測される。また本研究では、試験体に幾つかの異なる電氣的境界条件を与え、OTFT の実駆動条件で生じる電流リークパスの推定を行った。その結果、ゲート電極を経由したリークパスが形成されることにより、リーク電流が生じることが推察された。

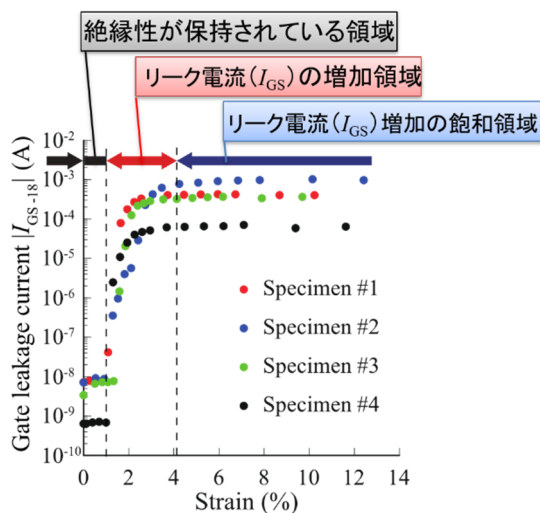


図6 試験体のひずみとリーク電流の関係 (ゲート電圧-18V)

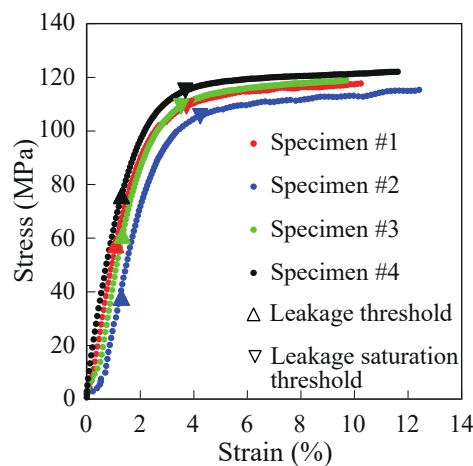


図7 試験体の応力-ひずみ特性と絶縁性能劣化の相関

図8には、引張り試験前、および1.90%と4.05%のそれぞれのひずみ印加後の絶縁層のレーザー顕微鏡画像を示す。負荷試験前の観察では、絶縁性能劣化を引き起こすような欠陥は存在しないことが確認された。1.90%ひずみ印加後の観察では、帯状の塑性変形が生じていることが確認された。図7の応力-ひずみ特性とリーク特性の変化との関係から、このひずみはリーク電流が増加するひずみに相当する。4.05%のひずみ印加後の観察では、多数の塑性変形が確認された。以上より、機械的負荷による絶縁層の絶縁性能劣化は、試験体中のひずみの増加にともなって絶縁層に生じる塑性変形と相関があると考えられる。

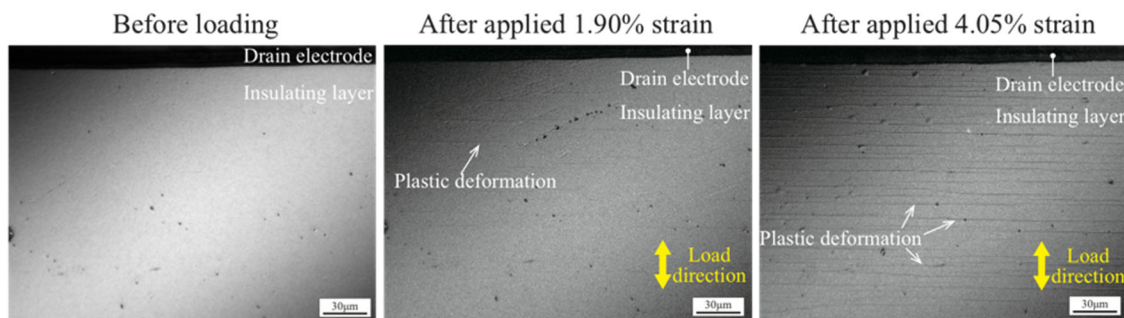


図8 レーザー顕微鏡による絶縁層の観察結果

以上、機械的負荷が大きな領域で得られた本研究の結果は、有機半導体デバイスを実用化する上での評価手法・設計指針の確立に有用である。

<引用文献>

- ① 末松他, フレキシブルデバイスの曲げ試験及び信頼性評価法に関する研究, 日本機械学会 東海支部講演会講演論文集, 65, 119, 2016.
- ② Sekine et al, Highly stable flexible printed organic thin-film transistor devices under high strain conditions using semiconducting polymers, Japanese journal of Applied Physics, 54, 04DK10, 2015.
- ③ F. C. Chen et al, Influence of mechanical strain on the electrical properties of flexible organic thin-film transistors, Semiconductor Science and Technology, 26, 034005, 2011.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Hidaka Koji, Koganemaru Masaaki, Sekine Tomohito, Shishido Nobuyuki, Kamiya Shoji, Minari Takeo, Ikeda Toru, Tokito Shizuo	4. 巻 24
2. 論文標題 Evaluation of Leakage Current and Leakage Path of Gate-Insulating Layer Used in Organic Thin-Film Transistors under Mechanical Loading	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of The Japan Institute of Electronics Packaging	6. 最初と最後の頁 586 ~ 594
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.5104/jiep.JIEP-D-21-00015	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 日高功二, 小金丸正明, 関根智仁, 宍戸信之, 神谷庄司, 三成剛生, 池田徹, 時任静士
2. 発表標題 薄膜有機トランジスタ用ゲート絶縁層の機械的負荷下での絶縁性能評価
3. 学会等名 マイクロエレクトロニクスシンポジウム2020 (MES2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中島太聖, 中城朋也, 小金丸正明, 関根智仁, 宍戸信之, 神谷庄司, 三成剛生, 池田徹, 時任静士
2. 発表標題 有機薄膜トランジスタの曲げおよび面外圧縮負荷による電気特性変動
3. 学会等名 27th Symposium on "Microjoining and Assembly Technology in Electronics" (Mate 2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中島太聖, 小金丸正明, 関根智仁, 宍戸信之, 神谷庄司, 三成剛生, 池田徹, 時任静士
2. 発表標題 有機薄膜トランジスタ用Ag配線の1軸引張り負荷による抵抗値変動
3. 学会等名 マイクロエレクトロニクスシンポジウム2021 (MES2021)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	関根 智仁 (Sekine Tomohito)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------