

令和 4 年 5 月 23 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2020～2021

課題番号：20K21003

研究課題名(和文)フローティングゲート構造を用いた有機トランジスタの特性不均一補償回路の研究開発

研究課題名(英文) Research and development of non-uniform compensation circuits for organic transistors using floating gate structure

研究代表者

関谷 毅 (Sekitani, Tsuyoshi)

大阪大学・産業科学研究所・教授

研究者番号：80372407

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、「浮遊ゲート型有機不揮発性メモリトランジスタ技術」と、「柔軟性に優れたフレキシブルトランジスタ技術」を融合させることで、フレキシブル有機トランジスタ素子間の特性バラツキを動的に抑制する「特性補償技術を開発」し、安定動作するフレキシブルトランジスタ集積回路を実現する取り組みである。具体的には、浮遊ゲート型フレキシブル有機トランジスタのプロセス最適化と閾値ばらつき抑制の実現、更なる特性補償技術「光プロセスによる特性補償技術」の実現の開発した。一連の成果は、世界的な欧文学術論文誌Advanced MaterialsやNature Communicationsなどへ掲載され高い評価を受けた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

有機薄膜トランジスタは、低温、低エネルギー、低環境負荷で製造できる次世代エレクトロニクス用スイッチ素子として期待されている。一方で、有機材料の本質的な分子結合に頼り、構造を形成している界面が多く、トランジスタとしての特性不均一性が大きな課題となっている。これは有機材料の多様性と表裏一体の関係にあり、本質的な課題であった。そこで本研究は、有機薄膜トランジスタ作成後に、特性の不均一を抑制するための特性補償技術を提案し、取り組んできた。その結果、生体計測センサなどの実用性に耐えうる特性均一性を確保できることを示した。さらに従来知られていた技術とは異なる新たな特性補償技術を実現することに成功した。

研究成果の概要(英文)：This research is an effort to develop a "characteristic compensation technology" that dynamically suppresses characteristic variations among flexible organic transistor elements by integrating "floating gate type organic nonvolatile memory transistor technology" and "flexible transistor technology" to realize flexible transistor integrated circuits with stable operation. This is an effort to realize flexible transistor integrated circuits that operate stably. Specifically, we have optimized the process of floating gate type flexible organic transistors, realized suppression of threshold variation, and developed a further property compensation technology, "property compensation technology by optical process". These results were published in the world-renowned journals Advanced Materials and Nature Communications, and received high acclaim.

研究分野：フレキシブルエレクトロニクス

キーワード：フレキシブルエレクトロニクス 特性補償技術 生体センサ

## 1. 研究開始当初の背景

### 【社会的背景：課題の整理】

デジタル化が急速に進む中で、多種多様な電子デバイスが求められている。特に、演算素子、スイッチ素子としての役割を果たすトランジスタの役割が広範な領域に及んでいる。ここでは高速演算のみならず、比較的速度の遅い生体情報の計測など、求められている電気的性能は多種多様です。さらに、世界的な環境への配慮が進む中では、低エネルギー、低環境負荷でのエレクトロニクス製造が重要視されている。ここで注目されているのが、有機材料でエレクトロニクスを作製する技術（有機エレクトロニクス）である。

有機エレクトロニクスは、大面積・低エネルギーで作製でき、面積あたりのコストが安い。すなわち、大面積を覆うことが可能で、かつ複雑な表面形状を有する場所へも展開することが出来る。例えば、大規模有機エレクトロニクスが信頼性高く動作すれば、構造物ヘルスケアで活用できる新しい環境センサが実現できたり、次世代の医療・ヘルスケアを担うヒューマンインターフェースを構築できたりするため、「実世界の情報収集」をより精度高く実現することが出来る。

しかし、本質的な課題はファンデルワールス力による低エネルギーで分子などが結合していることであり、結果的に大気不安定であり、かつ時間経過により特性が揺動する。申請者は回路の冗長性設計技術により作製プロセスの段階で特性バラツキを抑え込む手法開発に成功した (M. Sugiyama, et al., Nature Electronics 2, 351 (2019).) が、時間経過とともに特性バラツキは顕在化することが分かった。

そこで本研究は、有機材料が見せる特有の量子トンネル現象を利用して、有機材料の本質的な弱点である特性バラツキを動的に抑制することで、時間経過に伴う特性変化にも対応できる技術開発であり、過去に例がない「材料、量子物性制御、回路技術」の技術融合研究である。

### 【学術的背景：課題の整理】

有機材料は基本的にファンデルワールス力、分子間力などの弱い分子間結合で形成され、機械的柔軟性に富む。さらに、有機エレクトロニクスは室温、低エネルギープロセスにより作製可能であり、多種多様な基材の上に作製すること特徴である。

一方で、弱い分子間結合のため、熱、光、大気成分など環境により特性が変化しやすく、これが素子間の特性バラツキを生み出す。単一トランジスタでは動作するものの、多体協調動作が必要不可欠な大規模集積デバイスでは、特性バラツキがあると正常に動作しない。

本研究では、この本質的な課題を「動的な特性補償技術を開発する」ことで克服し、有機大規模集積回路の信頼性を向上させる点に、申請者独自の新しい視点がある。関谷らは、物性制御技術を専門にしながらも、材料合成、デバイスプロセスから回路設計、システムデザインまで、広範な知識と実績を有している。この広範な専門性に支えられた統合化技術に、本提案の独創性がある。

## 2. 研究の目的

本研究では、関谷らが世界に先駆けて開発した「フローティング(浮遊)ゲート型有機不揮発性メモリトランジスタ技術」(T. Sekitani, et al., Science 326, 1516 (2009).) と、「柔軟性に優れたフレキシブルトランジスタ技術」(T. Sekitani, et al., Nature Materials 9, 1015 (2010).) を融合させることで、フレキシブル有機トランジスタ素子間の特性バラツキを動的に抑制する「特性補償技術を開発」し、数日間に及ぶ連続駆動に対して安定動作するフレキシブルトランジスタ集積回路を実現することを目的とした。

有機半導体を用いた有機薄膜トランジスタ(TFT)は、フレキシブルかつ軽量であるため、シリコンエレクトロニクスとの相補的融合により、ウェアラブルセンサなど新しいエレクトロニクスの応用が期待されている。その一方で、有機TFTを大規模に集積化したときの素子間の特性バラツキにより動作が不安定になり、論理回路が長時間正しく動作しないという本質的な課題がある。本研究では、「浮遊ゲート型構造により動的補償回路を構築」することでこの課題を解決する。期間内に、一週間の連続駆動に対して特性変化5%以内の発振回路や生体電位計測センサを構築することで、その有用性を実証することを目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究目的(トランジスタの特性均一性の向上)を実現するため、関谷らが考案してきた有機薄膜フローティング(浮遊)ゲート型トランジスタを活用した。このとき、特性バラツキの起源となり得る有機半導体材料には、なるべくパイ共役系(分子間の結合性)が強固なものを選定することにした。その代表例が、ジタフトチエノチオフェン(DNTT)系有機半導体である。さらに特性補償の根幹となる浮遊ゲートの厚みや絶縁膜の厚みを高精度に成業できる自己組織化単分子膜や、薄膜形成に実績のある高分子膜を選定することに主眼を置いた。

次に、このように作製したトランジスタを用いて、インバータ、リングオシレータ(発振器)などの簡易的集積回路から、大規模なシフトレジスタなど高度な集積回路を作製し、その有用性を検証する取り組みを進めた。

なお、トランジスタの作製と評価には、高純度のクリーンルームや高性能微細構造評価装置が欠かせない。これについては、関谷らの所属する大阪大学産業科学研究所が共通基盤設備として整えている優れたクリーンルーム、分析センター、大型計算機、自由電子レーザー、微細加工プロセス施設が利用した。さらに、総合解析センターの高圧電子顕微鏡や、軌道放射光 SPring-8(兵庫県播磨)を活用し、数 nm 厚みの極薄ゲート絶縁膜の品質を評価してきた。

### 4. 研究成果

本研究は、フレキシブル有機トランジスタ素子間の特性バラツキを動的に抑制する「特性補償技術を開発」し、安定動作するフレキシブルトランジスタ集積回路を実現する取り組みである。研究開発期間中に、以下に示す3つの目標を中心に取り組みデバイス作製と電気的特性評価を実施してきた。

#### [初年度]

デバイス作製と電気的特性評価を実施した。

- 1) 浮遊ゲート型フレキシブル有機トランジスタのプロセス最適化を目的に、浮遊ゲート型フレキシブル有機トランジスタのトランジスタサイズ(チャンネル長、チャンネル幅、絶縁膜厚み)、各種有機半導体材料(低分子、高分子、P型、N型)をパラメータとしてトランジスタを作製し、その電気的特性、閾値バラツキの定量的評価を行った。その結果、移動度  $2\text{cm}^2/\text{Vs}$  という極めて良好な移動度を実現した。
- 2) さらに、高移動度、高速応答性、特性安定性と均一性をすべて同時に実現する取り組みとして、絶縁膜表面にトリプチセン系自己組織化膜を塗布する手法を開発した。これをキャリアが輸送するチャンネル界面に塗布することで、トランジスタ移動度が約2倍近く向上することを見出した(図1)。この現象が、本プロジェクトで用いる様々な有機半導体で同じように起こるかどうかが検証し、それを実証することに成功した。

一連の取り組みにおいて得た特性バラツキの少ないトランジスタ製作技術の成果は、世界的な欧文学術論文誌 *Organic Electronics* や *Flexible Printed Electronics* へ掲載された。

#### [2年目]

1年目の成果をもとに、インバータ(NOT回路)、リング発振回路などの比較的集積度の小さい回路から、生体信号を処理したり、交流信号を整流化する高度な集積回路を作製したりした。このようにして、回路使用時の特性バラツキを評価するとともに、その安定性を時間経過で詳細に検討した。

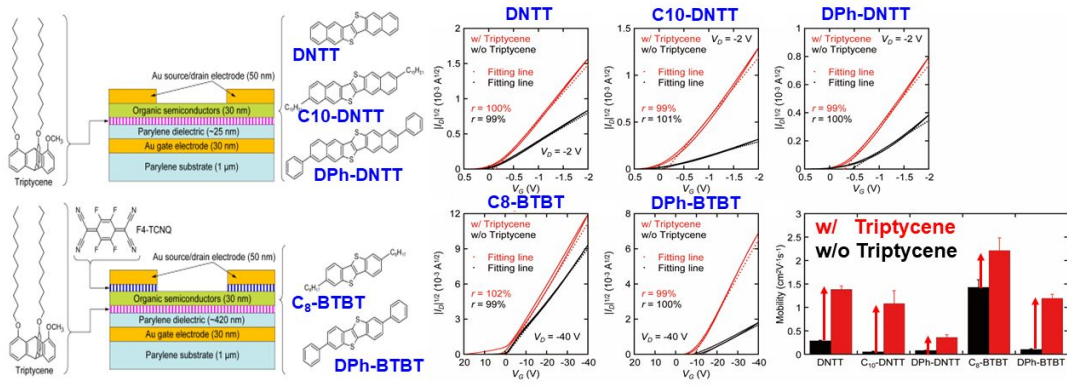
- 3) 閾値ばらつき(= <100 mV)の実現を目指し、浮遊ゲート型有機トランジスタによる閾値変動効果の確認と動的制御の有用性検証に取り組んだ。その結果、駆動電圧 2 V と低電圧での駆動においても、駆動周波数 10kHz 以上の回路ブロックを実現することができた。
- 4) 周期的な交流信号を整流する回路や、生体信号を増幅する回路などを作製し、その特性安定性を回路レベルで評価することに成功した。いずれも従来の有機薄膜トランジスタと比べて、20%以上の時間、安定して動作していることを確認した。浮遊ゲート型トランジスタによる特性補償技術の欠点は、その特性均一状態が一週間程度しか持続しないが、その期間内では生体計測や発振回路に用いても十分機能することを確認した。
- 5) 浮遊ゲート型トランジスタの欠点(短期間の特性補償)を補う新たな特性補償技術のニーズが高まったことから、新たに光による特性補償技術を開発し、長時間の特性均一性を得ることに成功した。

使い捨てのような短時間での使用用途に限定した時には浮遊ゲート型特性補償技術がプロセスコストの側面から優位であり、長時間の特性補償が求められる場合には光補償技術が有効であ

るなど、相補的な特性補償技術を開拓することに成功した（図2）。

一連のトランジスタ製作技術の成果は、世界的な欧文学術論文誌 Nature Communications へ掲載された。さらに長期的な特性補償実現できる技術の成果は、世界的な学術論文誌 Advanced Materials に掲載された。

本研究で実現した特性補償技術により、大規模なシート型センサシステムを低エネルギー・低環境負荷で出来る端緒を創出することができた。今後は、産業界と連携して、さらに大規模かつ低コストの製造を目指して、印刷技術などとの連携を進めていく予定である。



### Triptycene SAM is effective in other organic semiconductors

図1：特性補償技術を用いたトランジスタ特性の均一化と高性能化の例

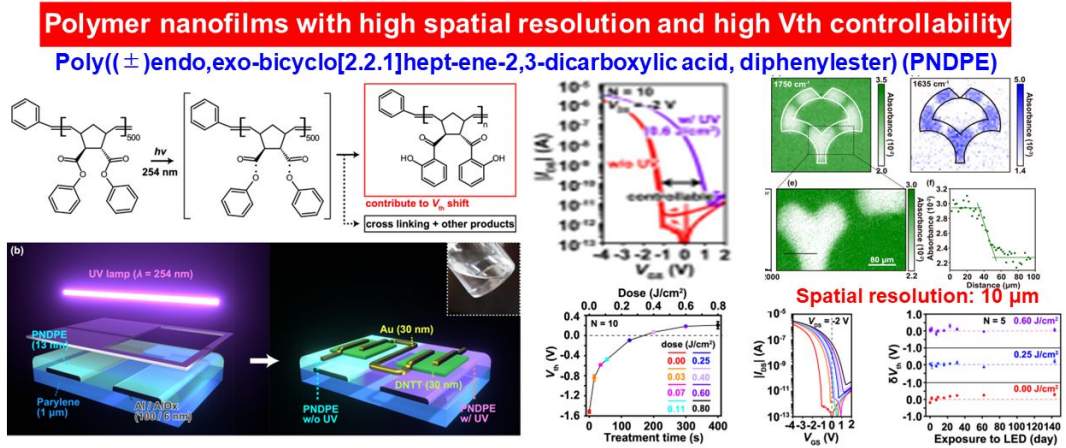


図2：材料および光技術による特性補償技術

特殊な感光性材料をトランジスタの各層へ展開することで、光照射時間により特性を自在に変調できる。これにより極めて高い特性均一性を持つトランジスタを実現することに成功した。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Koki Taguchi, Takafumi Uemura, Naoko Namba, Andreas Petritz, Teppei Araki, Masahiro Sugiyama, Barbara Stadlober, Tsuyoshi Sekitani	4. 巻 33
2. 論文標題 Heterogeneous Functional Dielectric Patterns for Charge-Carrier Modulation in Ultraflexible Organic Integrated Circuits	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2104446
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202104446	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Masahiro Sugiyama, Sophie Jancke, Takafumi Uemura, Masaya Kondo, Yumi Inoue, Naoko Namba, Teppei Araki, Takanori Fukushima, Tsuyoshi Sekitani,	4. 巻 96
2. 論文標題 Mobility enhancement of DNTT and BTBT derivative organic thin-film transistors by triptycene molecule modification	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Organic Electronics	6. 最初と最後の頁 106219
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.orgel.2021.106219	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Andreas Petritz, Esther Karner-Petritz, Takafumi Uemura, Philipp Schaffner, Teppei Araki, Barbara Stadlober & Tsuyoshi Sekitani	4. 巻 12
2. 論文標題 Imperceptible energy harvesting device and biomedical sensor based on ultraflexible ferroelectric transducers and organic diodes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communication Sekitans	6. 最初と最後の頁 2399
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-021-22663-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Takemoto Ashuya, Araki Teppei, Uemura Takafumi, Noda Yuki, Yoshimoto Shusuke, Izumi Shintaro, Tsuruta Shuichi, Sekitani Tsuyoshi	4. 巻 2
2. 論文標題 Printable Transparent Microelectrodes toward Mechanically and Visually Imperceptible Electronics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Intelligent Systems	6. 最初と最後の頁 2070105 ~ 2070105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/aisy.202070105	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 -

1. 著者名 Araki Teppei, Bongartz Lukas M, Kaiju Taro, Takemoto Ashuya, Tsuruta Shuichi, Uemura Takafumi, Sekitani Tsuyoshi	4. 巻 5
2. 論文標題 Flexible neural interfaces for brain implants-the pursuit of thinness and high density	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Flexible and Printed Electronics	6. 最初と最後の頁 043002 - 043002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2058-8585/abc3ca	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17件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 植村隆文、関谷毅
2. 発表標題 フレキシブル有機トランジスタの生体センサへの応用
3. 学会等名 電子情報通信学会 ソサエティ大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 荒木 徹平, 吉本 秀輔, 植村 隆文, 栗平 直子, 笠井 夕子, 宮崎 愛子, 根津 俊一, 飯田 博一, 関谷 毅
2. 発表標題 医療応用可能な高透明・高伸長な生体適合性電極の開発
3. 学会等名 第30回マイクロエレクトロニクスシンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高根慧至、野田祐樹、豊嶋尚美、根津俊一、荒木徹平、植村隆文、関谷毅
2. 発表標題 自己組織化単分子膜に覆われた単一金ナノワイヤのノイズ特性評価
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高根慧至, 野田祐樹, 豊嶋尚美, 根津俊一, 荒木徹平, 植村隆文, 関谷毅
2. 発表標題 自己組織化単分子膜に覆われた単一金ナノワイヤのノイズ特性評価
3. 学会等名 第76回産研学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Teppei Araki, Takafumi Uemura, Tsuyoshi Sekitani
2. 発表標題 Flexible Sheet Sensors to Monitor Biosignals
3. 学会等名 9th imec Handai International Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Teppei Araki, Shusuke Yoshimoto, Hiroki Hamanaka, Yuki Noda, Takafumi Uemura, Toshikazu Nezu, Shuichi Tsuruta, Masayuki Hirata, Tsuyoshi Sekitani
2. 発表標題 Flexible and Transparent Sensor Materials Toward a Fully Implantable Brain-Measurement System
3. 学会等名 2020 Materials Research Society (MRS) fall meeting & exhibit (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 関谷毅
2. 発表標題 フレキシブルデバイスで創るデジタル社会基盤
3. 学会等名 地域企業イノベーション支援事業・フレキシブル3D実装コンソーシアム 公開シンポジウム (第2回PE研究会 (招待講演))
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 荒木徹平, 吉本秀輔, 濱中裕喜, 野田祐樹, 植村隆文, 根津俊一, 鶴田修一, 平田雅之, 関谷毅
2. 発表標題 フレキシブルセンサ素材を利用する完全埋込可能な脳計測システムの開発
3. 学会等名 第57回日本臨床神経生理学会技術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takafumi Uemura, Tsuyoshi Sekitani
2. 発表標題 Low-Noise Biosignal Monitoring with Ultra Flexible Transistors
3. 学会等名 The 27th International Display Workshops (IDW 20) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takafumi Uemura, Tomoharu Kimura, Yayoi Shibafuji, Takeshi Suyama, Hiroyuki Ueno, Tsuyoshi Sekitani
2. 発表標題 Ultra-Low-Noise Organic Biosignal Amplifier with Flat Stamp Parallel Printed Electrodes
3. 学会等名 2020 Virtual MRS Spring/Fall Meeting & Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高根慧至, 野田祐樹, 豊嶋尚美, 根津俊一, 荒木徹平, 植村隆文, 関谷毅
2. 発表標題 表面分子修飾された単一金ナノワイヤのノイズ特性変化
3. 学会等名 応用物理学会 KOSEN SC 第2回 VR学術講演会
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 田口剛輝, 植村隆文, 難波直子, Andreas Petritz, 杉山真弘, 荒木徹平, 野田裕樹, 関谷毅
2. 発表標題 光バナーニング可能な有機トランジスタの閾値電圧制御
3. 学会等名 応用物理学会 KOSEN SC 第2回 VR学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西村和也, 荒木徹平, 竹本明寿也, 桐山一輝, 秋山実邦子, 笠井夕子, 栗平直子, 植村隆文, 関谷毅
2. 発表標題 透明有機電気化学トランジスタの作製と評価
3. 学会等名 フレキシブル・ストレッチャブル・エレクトロニクス研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 荒木徹平, 竹本明寿也, 笠井夕子, 栗平直子, 根津俊一, 飯田博一, 植村隆文, 関谷毅
2. 発表標題 超柔軟な透明配線技術の開発と高耐久エレクトロニクスへの応用
3. 学会等名 第27回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西村和也, 荒木徹平, 竹本明寿也, 桐山一輝, 秋山実邦子, 笠井夕子, 栗平直子, 植村隆文, 関谷毅
2. 発表標題 透明フレキシブル電気化学トランジスタの印刷作製と周波数特性の評価
3. 学会等名 第27回「エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術」シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田口剛輝, 植村隆文, 難波直子, Andreas Petritz, 荒木徹平, 杉山真弘, 関谷毅
2. 発表標題 光バタニングによるフレキシブル有機トランジスタの閾値電圧制御
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 野村昌弘, 森時彦, 田中稔彦, 桑原章史, 瀬下雄一, 関谷毅, 桜井貴康
2. 発表標題 炭素配線シートを使った長寿命電源システムの間欠動作における電源電圧特性
3. 学会等名 2021年 電子情報通信学会 総合大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計3件

産業財産権の名称 計測装置	発明者 関谷毅他2名	権利者 国立大学法人大阪大学
産業財産権の種類、番号 特許、2020-095710	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 振動センサおよび圧電素子	発明者 関谷毅他6名	権利者 国立大学法人大阪大学他
産業財産権の種類、番号 特許、2020-186773	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 生体信号計測装置	発明者 関谷毅他3名	権利者 国立大学法人大阪大学
産業財産権の種類、番号 特許、2021-022697	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

<https://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/aed/japanese/>

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
--	---------------------------	-----------------------	----

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		
オーストリア	JOANNEUM RESEARCH		