

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009～2013

課題番号：21360011

研究課題名(和文)有機FETの短チャネル化による超高速応答有機FETの開発

研究課題名(英文)Development of a short channel organic FET having high switching speed

研究代表者

赤井 恵 (Akai, Megumi)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50437373

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円、(間接経費) 4,230,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は有機FETをサブマイクロメートル領域まで短チャネル化し、また素子構造を改善することにより、有機FETとしては未踏のMHz-GHz領域の高スイッチング周波数特性をもつ超高速応答有機デバイスの作製を目指した。

独自の技術である平坦電極を用い、ボトムコンタクト型ルブレネFETを、高速応答が得られるように素子構造を改善し、接触抵抗の減少を進めたところ、研究開始当初3MHzであった限界スイッチング周波数は6MHzまで向上した。しかしながら技術力の限界から当初目指した100MHzには及ばなかった為、研究後半では有機デバイスと同様のメリットが得られるカーボンナノチューブFETの作製に取り組んだ。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to fabricate a short channel organic field effect transistor (FET), which will have high switching speed from MHz to GHz by improving the device structure. We fabricated bottom contact type rubrene FET using our original flattened metal electrodes. Maximum switching speed up to 6MHz has attained owing to decreased parasitic capacitance realized by an individual gate structure and effort to decrease the contact resistance. However, the attainment was still lower than initial desired value, 100MHz, because of our insufficient device fabrication technique. We have tried to find a wet process fabricate technique of carbon nanotube FET device, which will have similar advantage of organic devices. We successfully fabricated a bottom contact carbon nanotube FET on our flat electrodes showing ambipolar characteristics by a conventional wet process.

研究分野：応用物理学・工学基礎

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：有機・分子エレクトロニクス マイクロ・ナノデバイス ナノ材料 有機半導体 デバイス設計・プロセス

1. 研究開始当初の背景

研究開始当初、急速に展開してきた有機エレクトロニクスによって、高性能なEL素子や有機電界効果トランジスタ (FET) の実用化が進もうとしていたが、スイッチング性能では従来の無機結晶素子性能にははるかに及んでいないのが現状であった。一般に有機分子のキャリア移動度がシリコン結晶と比べて小さいことが原因であるとされていたが、ペンタセンFETやルブレ単結晶FETではキャリア移動度がアモルファスシリコンを凌ぐものもあり、原理的には有機素子の高速スイッチングは可能であった。有機素子では比較的大きな接触抵抗の為に素子サイズを小さくすると移動度が大きく低下する傾向が無機素子よりも顕著である。移動度の向上が優先されてきた為、有機デバイスの微細化及び高速化は未踏の領域であった。

素子のスイッチング周波数 f は移動度 μ に比例し、チャンネル長 L の 2 乗に反比例する。我々は当時有機 FET としては最も高い移動度を示していたルブレ単結晶に注目し、平坦電極を用いたチャンネル長 $0.5 \mu\text{m}$ のルブレ FET 素子を作製し、短チャンネル長の有機素子としては非常に高い移動度 ($0.1\text{--}3.5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) を示すという結果を得ていた。チャンネル長と移動度のみから算出するとカットオフ周波数は約 100MHz に達しているはずである。しかしながら当時の素子構造ではゲートと電極の間に非常に大きな寄生容量成分があり、高い周波数では電極-ゲート間での透過電流によって素子の出力が消されて高速動作は実現しないことは明らかであった。

2. 研究の目的

上のような背景の元、本研究の目的は有機 FET をサブマイクロメートル領域まで短チャンネル化し、素子構造を改善することにより、有機 FET としては未踏の MHz — GHz 領域の高スイッチング周波数特性をもつ超高速応答有機デバイスを作成することにある。素子の構造、材料を改善すると共に、有機 FET のような寄生容量が大きい素子においても高速応答を得ることの出来る計測方法を模索する。

3. 研究の方法

まず素子の高速応答の発現を根本的に阻止している電極間の寄生容量を極力小さくすることが必要となる。このためには微少な独立ゲートを作り込む等の根本的な素子構造の改善を必要とする。

また、我々がそれまでに作製した短チャンネルルブレ単結晶 FET が非常に高い移動度を示した原因として、我々独自の構造である平坦電極を用いて電極-ルブレ結晶間の接触抵抗を飛躍的に低減したことが考えられた。よって接触抵抗の更なる改善を目指すことで移動度の向上が図られ、応答速度の改善に繋がる。

4. 研究成果

①素子構造

本研究の短チャンネル有機 FET 構造としてボトムコンタクト構造を採用した。ボトムコンタクトではソース (S)-ドレイン (D) 電極からチャンネルまでの距離が極力短くなり、有機膜内でのチャンネル外抵抗が排除出来る。さらに電極を誘電体内に埋め込み、表面を誘電体表面との段差がないように平坦化したナノギャップ平坦電極を用いる。また肝心の余分な電気容量が発生しない新たな素子構造として、図 1 に示す独立ゲート構造を作製した。絶縁基板上に最初に独立ゲートを作製し、その上に誘電体膜を被覆させた後、その独立ゲートを挟むように S, D 電極を数十 nm 以内の制度で位置を合わせて作製する。

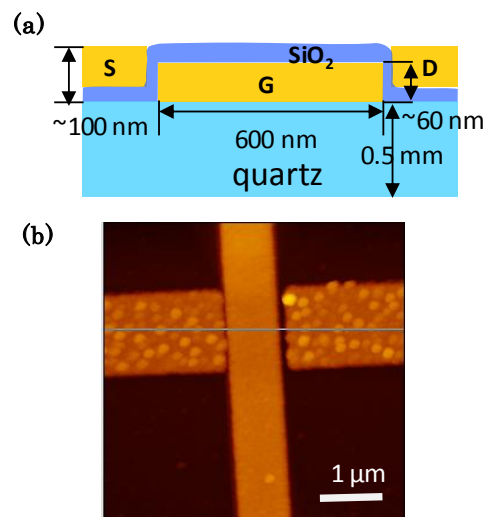


図 1 (a) 独立ゲートを要するボトムコンタクト型単チャンネル FET 電極の設計図. (b) 二回の電子線描画で作製したゲート及びソースドレイン電極の AFM 像.

研究開始当初シリコン基板上的の 500nm 厚さの熱酸化膜上に素子構造を作製していた。しかしチャンネルから遠く離れたパッド部分の大きな面積の金属がシリコン基板と干渉し、それさえもが寄生容量として働くことが判った。基板をクォーツに変えたところ描画中の帯電が問題となり、実験の停滞を余儀なくされた。結果的にエスぺイサーと描画部分近く迄金属蒸着膜をあらかじめ作っておくことで解決したが、描画装置によって帯電防止効果も様々な対応が必要であることが判った。

また研究の後半ではどれほど寄生容量を小さくしても透過電流とチャンネル間の信号電流の比として信号が認識されてしまう為、素子電流が小さければ小さい程得られるスイッチング周波数が遅くなってしまふことが判明した。即ち、図 1 (b) で示しているよ

うな短チャンネルではあるが、チャンネル幅も狭いような素子では非常に効率が悪い。よってチャンネル幅 W の出来るだけ広い素子作りに取り組んだ。

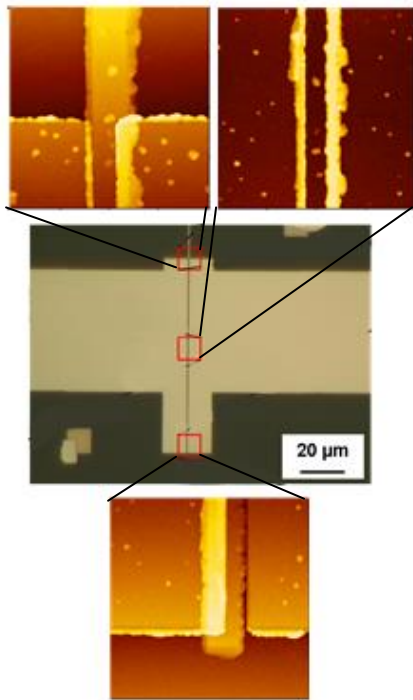


図2 幅広チャンネル独立ゲート素子の光学顕微鏡像とそれぞれの部分のAFM像。

図2のAFM像から $200\mu\text{m}$ 幅チャンネルの上部と下部で 200nm 程度のずれが生じてしまっているのが分かる。このように電子線描画を二回行くと最終的に軸の回転ずれが残ってしまう。本研究期間を通して利用可能な装置スペックの限界として、図2程度のずれを含んだ素子構造が本研究の最終到達点であった。

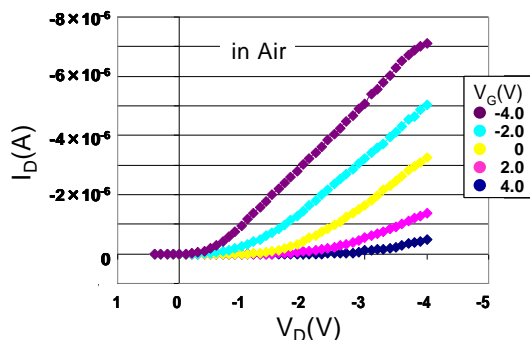


図3 幅広チャンネル独立ゲート素子の出力特性。

図3に幅広型素子の典型的なFET特性を示す。ドレイン電流において低電圧領域に非線形増加がみられ、高電圧領域には飽和特性が見られなくなってしまった。原因として、電

極幅が増えたために接触の悪い部分が増えて全体としての接触障壁が大きくなったか、スパッタ法で作製した誘電体膜の膜質が悪いといった要因が考えられたが、本素子作製手法を用いる限り結果的に改善には至らなかった。

② 接触抵抗の削減

埋め込み型平坦電極を用いることによって接触抵抗は既に大きく低減されている。本研究では電極金属の材料を変更することで更なる接触抵抗の低下に取り組んだ。図4にPt, Au, Ni 3種類の電極を用いて作製したルブレ単結晶FETの移動度のまとめを示す。今回複数のNi素子を作製したが、Ni素子は結局Au素子の移動度よりも低いという結果であった。これは2006年のApplied Physics Letter誌報告されていた結果とまったく異なるものであり、その原因は明らかには判らない。我々の研究ではNi電極を用いた移動度の向上が一切見られなかった。電極作製過程のどこかでNiの表面が酸化もしくは何らかの原因によって汚染され、その結果素子性能の向上が得られなかったか、先行報告が間違いであったかのどちらかだと考えられる。一方でPtでは明らかな移動度の上昇がみられた。これはPtの仕事関数がルブレの価電子帯と近いことから電荷注入障壁が低くなった為だと考えられる。

金属材料の依存性以外にも金属表面への分子修飾を試みたが、移動度向上等の効果は得られなかった。

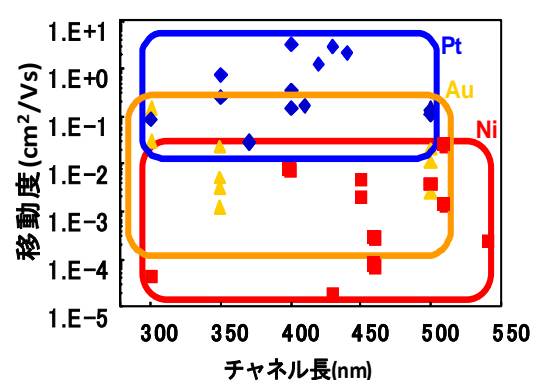


図4 ルブレFET移動度のチャンネル長及び電極金属依存性。

③ 周波数特性計測結果

最後に素子の周波数特性を計測した。本研究では無機素子で行われている手法とは異なり、SD電極とゲート電極間の寄生容量によって高周波数で生じる透過電流の影響を出来るだけ排除する為に、図5(a)に示すような有機FETにおいて良く用いられている方法を用

いた。ソース電極とドレイン電極両方の電流を計測し、その差からゲートに流れる電流を算出し、結果的にゲートに流れる電流を I_{in} ドレイン電極に流れる電流を I_{out} としてこの比が1になる、つまり両者の電流量が同じとなる周波数が素子としてのカットオフ周波数となる。図5(b)にシリコン基板をゲートとして用いた場合の結果を示す。この素子のカットオフ周波数特性は約3 KHzと見積もることが出来る。

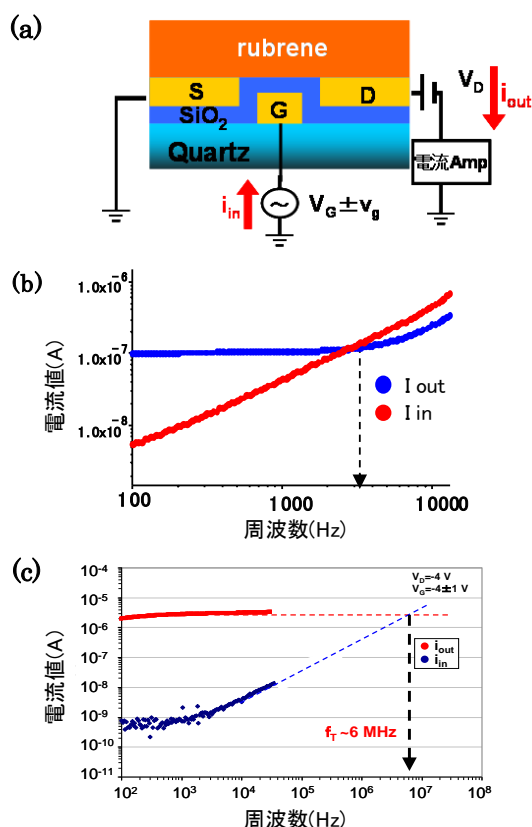


図5 (a) 差分周波数特性計測方法, (b) シリコン基板ゲートを用いたルブレン FET 素子の周波数特性 (c) 独立ゲートを用いた幅広ルブレン FET 素子の周波数特性

同様の方法で図2及び図3で示したような幅広素子の周波数特性測定結果を図5(c)に示す。素子に流れる電流は大幅に増加し、カットオフ周波数は約6 MHzであった。以前の素子よりも約3桁以上もの速度向上に成功したと言える。これが本研究で得られた最高のカットオフ周波数となった。計測した素子のチャンネル長は500 nm、チャンネル幅は71 μm 、移動度は $0.04 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の素子を使用しており、移動度とチャンネル長の関係から求められる周波数は約7 MHzと、計測されたものとほぼ一致した。また、入力電流の傾きより素子全体の容量が算出でき、その値は約 $4.0 \times 10^{-14} \text{ F}$ と過去に作製したバックゲートタイプの素子に対して大きな削減となった。さらに今回測定に用いた素子の構造より計算された素子全体の容量は $3.98 \times 10^{-14} \text{ F}$ であり、こちらも測定結果とよく一致した。もともと目

指した100 MHzに遠く及ばなかった理由として複雑な作製工程を経ることで素子自体の移動度が低下してしまったことが原因である。

以上の研究を踏まえ、研究後半は研究開始当初に計画した有機物FETではなく、有機素子と同様の作製メリット、即ちウエットプロセスによる作製法やフレキシビリティを併せ持つ可能性があるカーボンナノチューブ(CNT)素子の作製に取り組んだ。CNT素子は既に高い移動度や高速応答が実現されているが、作製方法はCVD法やトップコンタクト法が用いられている。これらの方法に頼らず、ウエットプロセスで高性能なCNT-FET素子を得ることは実用的な新規デバイス模索としては非常に意義深い。結果として平坦電極にスピコート法及び溶液内の電気泳動法による作製方法を用いることで、ボトムコンタクト法でも高い移動度を示すCNT-FET素子を得られることを示し得た。また平坦電極を用いることでp-n両極性が得られた。簡便な方法において様々なセンシング素子に利用可能なCNT素子の作製方法として今後広めていきたいと考えている。

[雑誌論文] (計4件)

1. K Takami, S Tsuruta, Y Miyake, M Akai-Kasaya, A Saito, M Aono and Y Kuwahara, "Electrical conduction of organic ultrathin films evaluated by an independently driven double-tip scanning tunneling microscope", J. Phys.: Condens. Matter, **23**, 43 (2011) 434002 (6pp).
2. Takuya Tanaka, Yuji Totoki, Aya Fujiki, Nobuyuki Zettsu, Yusuke Miyake, Megumi Akai-Kasaya, Akira Saito, Takuji Ogawa, and Yuji Kuwahara, "Enhanced Red-Light Emission by Local Plasmon Coupling of Au Nanorods in an Organic Light-Emitting Diode", Applied Physics Express, **4** (2011) 032105.
3. Megumi Akai-Kasaya, Noriko Shimada, Akira Saito and Yuji Kuwahara, "Charge-carrier injection into pentacene thin film formed on Si(111) probed by STM spectroscopy", J. Nanosc. Nanotechnol, **11**, 4 (2011) 2867
4. M Akai-Kasaya, Y Okuakil, S Nagano, A Saito, M Aono and Y Kuwahara, "Isotropic charge transport in highly ordered regioregular poly(3-hexylthiophene) monolayer" Journal of Physics D: Applied Physics, **46**, (2013), 425303

[学会発表] (計12件)

1. 藤原孝彰、川西隆史、赤井恵、齋藤彰、竹谷純一、桑原裕司, "高移動度短チャンネル有機FETの開発" 精密工学会関西

- 地方定期学術講演会, 2010年5月28日、京都大学
2. 赤井恵、“分子ナノシステムの物性探索と素子応用”, 第65回物理学会年次大会, 2010年9月26日、大阪府立大学
 3. 奥秋裕介, 赤井恵, 富川晴貴, 永野修作, 齋藤彰, 桑原裕司、“高配向ポリチオフェン単分子膜の電気伝導特性評価” 秋季第72回応用物理学会学術講演会、2011年9月2日、山形大学
 4. 奥秋 裕介, 赤井 恵, 富川 晴貴, 永野修作, 齋藤 彰, 桑原 裕司、“高配向ポリチオフェン単分子膜の電気伝導特性評価” 精密工学会秋季大会学術講演会、2011年9月20日、金沢大学
 5. M. Akai-Kasaya, S. Nagano, A. Saito and Y. Kuwahara, “Nonlinear charge transport in two-dimensional polymer monolayer”, AsiaNANO 2012 (6th in the series of Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology), Sep. 7th-10th, 2012, Crowne Plaza Lijiang Ancient Town Lijiang, Yunnan, China
 6. Agung Setiadi, Megumi Akai-Kasaya, Akira Saito, Yuji Kuwahara, “Thin Film Single Walled Carbon Nanotube Transistor for Stochastic Resonance Device” ACSIN-12 & ICSPM21, November 4-8, (2013) Tsukuba, International Congress Center_
 7. M. Akai-Kasaya, Y. Okuaki, S. Nagano, A. Saito and Y. Kuwahara, “Nonlinear transport in two-dimensional polymer monolayer”, Symposium on Surface and Nano Science 2012, January 9-12, 2012, Shizukuishi Prince Hotel, Shizukuishi, Shizukuishi, Iwate, Japan
 8. Agung Setiadi, Takuya Nakanishi, Megumi Akai-Kasaya, Akira, Saito, Yuji Kuwahara, ” Multiple Carbon Nanotube Junctions for Stochastic Resonance Devices” IVC-19 & ICNT Sep.9 (2013) Paris, Palais des Congres
 9. M. Akai-Kasaya, S. Nagano, A. Saito, and Y. Kuwahara, ”Charge transport in two dimensional organic layer behaving as quantum dot array” EMN Fall meeting Energy Materials Nanotechnology, 8,Dec.(2013) Doubletree by Hilton, Orland FL USA.
 10. Agung Setiadi, 赤井 恵, 齋藤 彰, 桑原裕司、“Advantages of Flattened Electrode in Bottom Contact Single Walled Carbon Nanotube Field Effect Transistor” 第61回応用物理学会春季学術講演会、2014年3月20日、青山学

院大学

11. Agung Setiadi, 赤井 恵, 齋藤 彰, 桑原裕司、“Bottom Contact Ambipolar SWNT-FET Devices Using Flattened Electrodes” 精密工学会春季大会、2014年3月21日、東京大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤井 恵 (AKAI MEGUMI)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：50437373