

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 9 月 18 日現在

機関番号：11501

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25820134

研究課題名(和文)全印刷方式によって作製された有機トランジスタの特性向上と集積回路応用

研究課題名(英文)Improvement of fully-printed organic thin-film transistors and application for integrated circuits

研究代表者

福田 憲二郎(Fukuda, Kenjiro)

山形大学・理工学研究科・助教

研究者番号：40613766

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)：全行程を印刷法によって作製した有機トランジスタにおいて、世界最高水準の性能を達成した。この印刷型トランジスタを集積化させ、高度に集積化された回路を実現し、良好な駆動を達成した。さらに、超薄型・超柔軟なフィルム基板上に全印刷方式によって有機集積回路を作製することにも成功した。以上に示された研究成果は、実生活のあらゆる場所・曲面に大面積・高性能な有機集積回路を実装可能であるということを示す重要な成果である。

研究成果の概要(英文)：We have demonstrated that fully-printed organic thin-film transistors with excellent electrical performances. The integrated circuits (RS-Flip flop) were operated successfully at low operation voltage and with high operation speed. Furthermore we demonstrated fully printed organic circuits fabricated on one-micron-thick films with extremely light (2 g/m²) and excellent mechanical stability. These results represent significant progress in the fabrication of fully printed organic TFT devices and circuits for use in unobtrusive electronic applications such as wearable sensors.

研究分野：電気電子工学

キーワード：有機トランジスタ プリンテッドエレクトロニクス フレキシブルエレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

有機トランジスタは、低温かつ印刷法で作製可能であり、従来の無機系トランジスタでは実現困難な次世代のデバイス応用が期待されている。代表的応用例としてはフレキシブルディスプレイやセンサなどが挙げられる。有機トランジスタを実際の次世代産業へ応用していくためには、有機トランジスタの「可溶性」と「低温作製可能性」を生かし、PET フィルムに代表される安価なフレキシブル基板上へ大面積領域にデバイスを作製することが必要不可欠である。

有機集積回路における性能は、蒸着系材料においては低電圧駆動・高速動作が実現可能段階を迎えつつある。IMEC は 2010 年、P 型材料であるペンタセンを有機半導体用いたリングオシレータを作製し、10 V 駆動においてシグナルディレイが 400 ns の回路作製に成功している。しかし、この成果は蒸着やフォトリソグラフィなどのプロセスを用いている。印刷手法による近年の研究報告を見ていくと、インクジェット装置を用いた有機半導体層の形成により、電界効果移動度が $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を超えるような高い性能を持つ有機トランジスタの報告がなされている。また、銀ナノ粒子インクを特殊な印刷装置を用いて描画することで、チャンネル長 $1 \mu\text{m}$ 程度の微細なトランジスタの作製に関する報告もある。しかしながらこれらの報告例は部分的に印刷手法を用いて作製したものである。

トランジスタの全行程を溶液プロセスで作製した回路は報告例が非常に乏しく、また蒸着による手法を含んだデバイスと比較して周波数特性が悪い。一例としては、オール印刷/溶液プロセスでの集積回路でグラビア印刷による 5 段リングオシレータを作製し、100 V でシグナルディレイが 400 ms である。

2. 研究の目的

全行程を印刷法を用いてフレキシブル基板上に有機集積回路を作製し、高速動作する集積回路の実現を目指すことで、印刷プロセスによる有機トランジスタの新しいデバイス応用への可能性を実証することを目的とする。

より具体的には、トランジスタ単体の性能向上を実現するための材料選択、印刷手法の確立、半導体・電極の界面状態の最適化を行い、10 - 20 V 程度の駆動電圧領域、チャンネル長 $10 \mu\text{m}$ 以下の微細デバイス単体での電界効果移動度 $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上を達成し、その単体を集積化させることで各種回路の駆動応答性の高速化を実現させる。

3. 研究の方法

全行程を印刷方式によって有機トランジスタを作製し、その特性の向上を行った。その後集積回路に応用し、有機集積回路での世界最高水準の動作速度を目指す。半導体・電極の材料選定から描画手法の決定、焼成条件

を最適化することでそれぞれの材料の最適な形成手法を決定した。また各種自己組織化単分子膜を用いて電極表面を修飾し、修飾の有無による特性変化を評価する。以上から得られた最適なトランジスタ単体作製条件を集積回路に応用させることで、全行程を印刷によって作製した有機トランジスタの高速動作を実現した。また、超薄型の基板フィルム上に本技術を応用させることで、極めて柔軟性に優れた印刷型集積回路の実現を試みた。

4. 研究成果

ソース・ドレイン電極にはインクジェット形成した銀電極を用いた。インクジェット装置の適切な制御によってチャンネル長 $5 \mu\text{m}$ の短チャンネルトランジスタの作製に成功した。半導体層には新規塗布型低分子半導体をディスプレイ装置によって成膜した。電極-半導体間の電荷注入を改善するための層として、ペンタフルオロベンゼンチオール(PFBT)の自己組織化単分子膜(SAM)によって、ソース・ドレイン電極を修飾し、ソース・ドレイン電極の仕事関数を 4.7 eV から 5.4 eV まで変化させることに成功した。以上によって、チャンネル長 $5 \mu\text{m}$ の塗布型有機トランジスタにおいて、20 V 駆動で移動度 $1.2 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、オンオフ比 10^5 以上という、目標値を上回る性能を得ることに成功した。また、コンタクト抵抗の値はおよそ $4 \text{ k} \cdot \text{cm}$ であり、これは世界的に報告されている塗布型有機トランジスタの中では最も小さい値である。

上記のトランジスタを集積化させ、インバータ回路を作製した。その動的特性から回路の応答速度を見積もったところ、8 kHz という値を得た。これは世界で報告されている印刷型有機集積回路の応答速度と比較しても極めて速い値である。さらにこの印刷方式によってさらに複雑な集積回路である RS-フリップフロップの作製も行い、10 V 駆動における良好な動作を実証した。

上記印刷型有機集積回路作製技術にさらなる高機能を付与することを目指し、超薄型・超柔軟なフィルム基板上に全印刷方式によって有機集積回路を作製することにも成功した。厚みわずか $1 \mu\text{m}$ という非常に薄いフィルム上に作製された有機集積回路は全体の重さが $2 \text{ g}/\text{m}^2$ という驚くべき軽量を有している。この超軽量有機トランジスタはガラス基板上に作製した素子と同程度の良好な電気的特性を有していることを確認した。また、半径 $140 \mu\text{m}$ のワイヤに巻き付けた状態でも、50%に押しつぶした状態でも良好に駆動することを実証した。

以上に示された研究成果は、実生活のあらゆる場所・曲面に大面積・高性能な有機集積回路を実装可能であるということを示す重要な成果である。

5. 主な発表論文等

(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5件)

[1] Yasunori Takeda, Yudai Yoshimura, Faiz Adi Ezarudin Bin Adib, Daisuke Kumaki, Kenjiro Fukuda, and Shizuo Tokito, "Flip-flop logic circuit based on fully solution-processed organic thin film transistor devices with reduced variations in electrical performance", Japanese Journal of Applied Physics, **54**, 04DK03 (2015). (査読有り)

[2] Rei Shiwaku, Yudai Yoshimura, Yasunori Takeda, Kenjiro Fukuda, Daisuke Kumaki, and Shizuo Tokito, "Control of threshold voltage in organic thin-film transistors by modifying gate electrode surface with MoOX aqueous solution and inverter circuit applications", Applied Physics Letters, **106**, 053301 (2015). (査読有り)

[3] Yudai Yoshimura, Yasunori Takeda, Kenjiro Fukuda, Daisuke Kumaki, and Shizuo Tokito, "High-speed operation in printed organic inverter circuits with short channel length", Organic Electronics, **15**, 2696-2701 (2014). (査読有り)

[4] Kenjiro Fukuda, Yasunori Takeda, Yudai Yoshimura, Rei Shiwaku, Lam Truc Tran, Tomohito Sekine, Makoto Mizukami, Daisuke Kumaki, and Shizuo Tokito, "Fully-printed high-performance organic thin-film transistors and circuitry on one-micron-thick polymer films", Nature Communications, **5**, 4147 (2014). (査読有り)

[5] Kenjiro Fukuda, Yasunori Takeda, Makoto Mizukami, Daisuke Kumaki & Shizuo Tokito, "Fully Solution-Processed Flexible Organic Thin Film Transistor Arrays with High Mobility and Exceptional Uniformity", Scientific Reports, **4**, 3947 (2014). (査読有り)

〔学会発表〕(計18件)

[1] Kenjiro Fukuda, "Fully-printed and Ultraflexible Organic Integrated Circuits", BIT's Annual World Congress of Smart Materials-2015 (WCSM), Session603, Busan Exhibition & Convention Center (BEXCO), Republic of Korea, March, 24th, 2015.

[2] 福田憲二郎, 岡本 朋子, 儘田 正史, 熊木 大介, 片山 嘉則, 時任 静士, "短チャネル・短コンタクト長全印刷型トランジスタ", 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 14p-D3-3, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県, 2015年3月14日.

[3] 菅野 亮, 関根 智仁, 福田憲二郎, 熊木 大介, 時任 静士, "強誘電性高分子層の熱処理温度による強誘電体ゲート有機薄膜トランジスタのメモリ特性改善", 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 12a-P12-20, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県, 2015年3月12日.

[4] 塩飽 黎, 吉村 悠大, 竹田 泰典, 福田 貴, 福田憲二郎, 熊木 大介, 時任 静士, "印刷型有機トランジスタの閾値電圧制御と回路応用", 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 12a-D3-9, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川県, 2015年3月12日.

[5] 福田憲二郎, "超薄型フィルム上の大面積全印刷有機集積回路", ふくしまものづくり企業交流会, コラッセふくしま, 福島県福島市, 2015年1月20日.

[6] 福田憲二郎, "全印刷型有機集積回路～高性能化、高均一化、軽量化への取り組み～", プリントッド・エレクトロニクス研究会 第4回研究会, 国立オリンピック記念青少年総合センター, 東京都, 2015年1月16日.

[7] 塩飽黎, 吉村悠大, 竹田泰典, 福田憲二郎, 熊木大介, 時任静士, "溶液プロセスによる有機 TFT の閾値電圧制御およびインバータ回路応用", 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-A4-16, 北海道大学札幌キャンパス, 北海道札幌市, 2014年9月18日.

[8] 福田憲二郎, 時任静士, "高分子フィルム上に形成する軽量・大面積有機集積回路", プラスチック成形加工学会大 143 回講演会, 山形大学工学部百周年記念会館, 山形県米沢市, 2014年9月11日.

[9] 福田憲二郎, 時任静士, "印刷で作る柔らかな集積回路", 平成 26 年度産学交流夏季セミナー, 伝国の杜, 山形県米沢市, 平成 26 年 8 月 28 日.

[10] 塩飽 黎, 吉村悠大, 福田憲二郎, 熊木 大介, 時任静士, "ゲート電極表面処理による有機薄膜トランジスタの閾値電圧制御", 電子情報通信学会電子デバイス研究会 (ED), 12, 山形大学工学部百周年記念会館, 山形県米沢市, 2014年4月18日.

[11] 竹田泰典, 小林 悠, Faiz Adi Ezarudin Bin Adib, 福田憲二郎, 熊木大介, 時任静士, "インクジェット法を用いた全塗布型有機トランジスタの作製と集積回路応用", 電子情報通信学会電子デバイス研究会 (ED), 11, 山形大学工学部百周年記念会館, 山形県, 2014年4月18日.

[12] 福田憲二郎, 竹田泰典, 熊木大介, 時任静士, "超薄型パリレンフィルム上の全印刷型有機インバータ回路", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 19a-E3-9, 青山学院大学相模原キャンパス, 神奈川県, 2014年3月19日.

[13] 吉村悠大, 竹田泰典, 関根智仁, 福田憲二郎, 熊木大介, 時任静士, "印刷型有機インバータ回路の短チャネル化による高速動作", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会,

17p-E3-5, 青山学院大学相模原キャンパス, 神奈川県, 2014年3月17日.

[14] 福田憲二郎, 時任静士, "オール印刷型フレキシブル有機集積回路実現を目指した基盤研究", 情報科学用有機材料第142委員会「有機光エレクトロニクス部会 第58回研究会」- プリントブル・エレクトロニクスの最前線 -, 東京理科大学森戸記念館, 東京都, 2014年1月21日.

[15] Kenjiro Fukuda, Yasunori Takeda, Makoto Mizukami, Daisuke Kumaki, and Shizuo Tokito, "Channel length dependence of device performances in fully-solution processed flexible organic thin-film transistor array", 2013 Materials Research Society Fall Meeting & Exhibit, M5.41, Hynes Convention Center, Boston, MA, USA, December, 3rd, 2013.

[16] 福田憲二郎, 竹田泰典, 水上誠, 熊木大介, 時任静士, "オール塗布法で作製した高移動度有機TFTのチャネル長依存性", 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 19a-C5-8, 同志社大学京田辺キャンパス, 京都, 2013年9月19日.

[17] 吉村悠大, 竹田泰典, 佐藤翼, 福田憲二郎, 熊木大介, 時任静士, "自己組織化単分子膜を用いた塗布型銀電極の修飾による塗布型有機トランジスタの高性能化", 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-P8-8, 同志社大学京田辺キャンパス, 京都, 2013年9月18日.

[18] 福田憲二郎, 竹田泰典, 水上 誠, 熊木大介, 時任静士, "印刷法による高性能有機TFTバックプレーン試作技術", 有機EL討論会第16回例会, S3-3, 日本化学未来館みらいCANホール, 東京, 2013年6月27日.

〔図書〕(計 1 件)

福田憲二郎, 竹田泰典, 時任静士, 「次世代プリントドエレクトロニクス技術」, 第3編第6章 有機集積回路, pp.92-100, シームシー出版, 2014年12月.

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：
発明者：

権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福田 憲二郎 (FUKUDA, Kenjiro)
山形大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：40613766

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：