

平成 26 年 5 月 26 日現在

機関番号：32612

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656205

研究課題名(和文) キャリア濃度制御に基づく有機トランジスタのデバイス設計とスケールング則の確立

研究課題名(英文) Establishment of device design and scaling for organic transistors with carrier concentration control

研究代表者

野田 啓 (Kei, Noda)

慶應義塾大学・理工学部・講師

研究者番号：30372569

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：有機電界効果トランジスタ(OFET)の高性能化に向けて、分子性ドーパントによる電荷ドーピングを活用した新しい素子構造を提案し、デバイスシミュレーション及び実験の両面からその有用性を実証した。また、デバイススケールング則の確立に向けて、現実のOFETデバイスに必ず存在するキャリア注入障壁(ショットキー障壁)を考慮したデバイスシミュレーションを新たに実施すると共に、単一素子の電気特性のみを用いて、ゲート電圧に依存した接触抵抗やチャネルパラメータ(電界効果移動度など)を分離抽出して評価する方法を新たに考案した。

研究成果の概要(英文)：Device structures utilizing charge carrier doping with molecular dopants were newly proposed for improving and controlling device performance of organic field-effect transistors (OFETs), and those availabilities were confirmed by both device simulations and experiments. In addition, toward establishing device scaling rules, a new methodology for extracting gate-voltage-dependent contact resistance and channel parameters (e.g., field-effect mobility) from the electrical characteristics of a single OFET device was developed as well as a new device simulation technique considering carrier injection barriers (Schottky barriers) for realistic OFET devices.

研究分野：電気電子工学

科研費の分科・細目：電子・電気材料工学

キーワード：有機トランジスタ 電荷ドーピング キャリア濃度 デバイスシミュレーション

1. 研究開始当初の背景

(1) 有機半導体材料の光・電子機能を積極的に活用した有機エレクトロニクス分野では、有機電界発光 (EL) ディスプレイや有機 EL 照明素子などが実用化されると共に、太陽電池・各種センサ等への新しい展開も見出され、研究開発の面で活況を呈している。特に、ディスプレイ駆動や RF-ID タグへの応用が期待されている有機電界効果トランジスタ (OFET) については、キャリア移動度の向上や短チャネル化の進展など、着実な進歩を遂げてはいるものの、デバイス動作の再現性・安定性の面で未だ実用レベルに至っていない。

(2) OFET におけるデバイス性能の再現性の低さがなかなか改善されない要因の一つとして、トランジスタ動作機構がキャリア注入で律則される点が挙げられる。OFET では、コンタクト電極から有機半導体へ注入できるキャリアの種類(ホールまたは電子)によって、動作時の極性(pチャネルまたはnチャネル)が決定される。つまり、有機半導体自身の「多数キャリア濃度が低い」ため、デバイス特性がキャリア注入に関わる有機半導体/電極界面の電子状態に大きく左右される。しかし、明確な指導原理が確立されていない有機半導体/電極界面状態の制御に依存したデバイス特性制御法は、産業応用を想定した場合に明らかに不向きであり、従来型のアプローチだけでは、OFET の素子特性の再現性を実用可能レベルまで制御することが大変困難であることが広く認識されている。

2. 研究の目的

OFET に対して、従来の「キャリア移動度」や「有機半導体/金属界面」の制御ではなく、「キャリア濃度」制御という新しい視点でのデバイス研究開発を行う。有機半導体と電子供与性/電子受容性分子との電荷移動に基づくキャリアドーピング手法を確立すると共に、OFET における高キャリア濃度半導体層の配置をシミュレーションによって最適化し、それを実験的に検証することで、OFET の最高性能を引き出す汎用的な素子構造・プロセスを決定する。デバイス特性の再現性の向上及び高速化・高集積化に向け、キャリア濃度制御による、トランジスタ動作のキャリア注入支配からの脱却と、OFET における指導原理(スケール則)の確立を試みる。

3. 研究の方法

(1) 電荷ドーピングとデバイスシミュレーションに基づく OFET デバイス設計

有機半導体のキャリア制御に関する指針を得るため、有機半導体薄膜への電荷ドーピングを行い、高キャリア濃度を安定的に実現するドーパント分子種と有機半導体種の組み合わせを選定した。

引き続き、その電荷ドーピング条件を基に、デバイスシミュレーションによる高キャリア濃度 OFET の構造設計を実施し、キャリアドーピングの効果を理論的に検証した。マイクロスケールのチャネル長を有する OFET に対して、高キャリア濃度層の挿入位置、キャリア濃度及びデバイス特性との相関性を明らかにすることを目指した。最初は接触抵抗やトラップ準位などの外因的効果を含めない計算を行い、有機半導体の内因的な効果を議論、検証したが、必要に応じて、実際のデバイスに存在するショットキー障壁の影響も取り入れたモデルも採用した上でのデバイスシミュレーションも実施した。

(2) OFETにおける電荷ドーピング効果の実験的検証

前項目で設計した高キャリア濃度層を有する OFET の作製とその特性評価を行った。特に、絶縁膜やコンタクト電極表面の化学修飾など、OFETの電気特性を支配する外因的効果を極力抑えた上で、OFETへの電荷ドーピングの効果を検証することを試みた。また、電気化学的視点からのキャリアドーピング及びキャリアトラップに関する理解を深めるため、ドーパント分子の酸化還元電位に対する OFET 素子の電界効果移動度・しきい値電圧の変化を詳細に調べた。

また、ケルビンプローブ原子間力顕微鏡を用いた試料表面形状像と表面電位像の同時観察により、OFET デバイスの動作時における表面電位の2次元マッピングを行い、実験結果とデバイスシミュレーションで得られる OFET 素子内部の電位分布との比較を行った。

最後に、短チャネル効果を防ぐためのスケール則の確立を目指す上で、その指標となるべきチャネルパラメータ(チャネル抵抗等)を評価するための新規手法を提案する。現実のOFET素子では、電荷トラップやキャリア注入障壁などの外因的効果の影響が支配的な例が多く、また素子ばらつきの影響も大きい。これらの影響を排除するため、単一の OFET 素子の電気特性から、接触抵抗・チャネルパラメータを分離抽出して評価する方法を新たに考案し、実際の OFET 素子に対する適用を試みた。

4. 研究成果

(1)ボトムゲート・ボトムコンタクト(BGBC)型OFETのコンタクト電極領域における電荷ドーピング(図1参照)によってドレイン電流が増加する現象について、デバイスシミュレーションに基づき、キャリア濃度・ポテンシャル・電流分布を詳細に計算し議論を行った。その結果、電荷ドーピング層からOFETのチャンネル部へキャリアが供給されることでドレイン電流の増加につながることが示された。また、ペンタセンやオリゴチオフェンといった複数の有機半導体材料を用いたBGBC型OFETに対して、コンタクト領域直上に電子受容性(アクセプタ)分子(フッ化テトラシアノキノジメタン(F_4TCNQ))と半導体分子との共蒸着層から成る電荷ドーピング層を設ける事により、ドレイン電流や見かけ上の電界効果移動度が増加することを実証した。

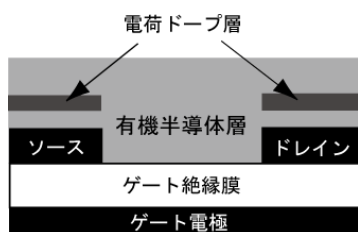


図1. コンタクト電極領域に電荷ドーピング層を有するBGBC型有機トランジスタの構造図。

(2)ボトムゲート・トップコンタクト(BGTC)型ペンタセンOFETの電極/有機半導体界面に F_4TCNQ 分子との共蒸着層から成る局所電荷ドーピング層を設けた試料において、ケルビンプローブ原子間力顕微鏡によるトランジスタ動作(線形動作領域)中での局所表面電位観察を行った。その結果、ドーピング層を設けることで、コンタクト電極近傍の電位降下が著しく減少し、デバイスシミュレーション結果と定性的に一致する結果を得た。

(3)更に、ショットキー障壁が存在する現実のOFET素子を想定し、キャリア注入モデルとして熱励起した電子のトンネル注入機構(熱電子電界放出)を取り入れたデバイスシミュレーションを新たに実施した。その結果、OFETの実験結果でよく見られる電流-電圧曲線における非線形特性を再現でき、短チャンネル化やドーピングによるデバイス特性変化の予測やキャリア注入障壁の評価にも有用である事を示した。更に、同じ障壁高さを仮定した場合、BGBC型素子構造の方がBGTC型よりもキャリア注入障壁の影響を大きく受けること、またコンタクト電極近傍へのドーピングにより両素子構造間のデバイス特性の差異が解消されることを見出した。

(4)有機トランジスタのゲート絶縁膜表面修飾に用いられるポリメタクリル酸メチル(PMMA)の溶液中に電子受容性(アクセプタ)分子を様々な濃度で混合させ、それをゲート絶縁膜上に塗布するという、高分子ゲート絶縁バッファ層へ分子ドーピングを行う手法(図2参照)を新たに開発した。本手法でデバイスのしきい値電圧制御が可能である事を示すと共に、導入されたドーパントが伝導キャリアに対して与える影響(電荷ドーピングやトラップ効果)について電気化学的な視点での評価・議論を行った。

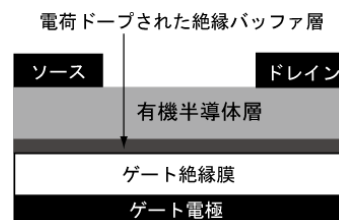


図2. 分子ドーピングされた極薄絶縁バッファ層を有するBGTC型有機トランジスタの構造図。

(5) OFETの単一素子における電気特性から、ゲート電圧に依存する接触抵抗や電界効果移動度を分離抽出する方法を新規に提案した。具体的には、OFETにおける接触抵抗や電荷トラップの影響を考慮した、より正確なトランジスタ動作モデルの構築を行うと共に、素子ばらつきによる評価誤差を回避できる形式にした。引き続き、開発した新手法を用いてOFET素子の評価を行い、スタッガード型(BGTC型とトップゲート・ボトムコンタクト(TGBC)型に対応した)構造を有するデバイスに対しては、本手法の適用が原理的に可能であることを示した。また、ペンタセン薄膜トランジスタにおけるコンタクト領域近傍への電荷ドーピング実験結果を検証し、キャリアドーピングによるバルク抵抗の低減、電界効果移動度の向上、トラップ密度の減少、しきい値電圧の正方向シフト等の影響を簡単に解析できることが明らかとなった。更に、その解析結果から、ドーピング効果は電極近傍にほぼ限定されているが、ゲート電圧印加に伴い、電荷ドーピング層で生成された正孔によって、チャンネル部の深いトラップ準位が過渡的に充填されると共に、トラップのエネルギー分布幅が減少し、チャンネル抵抗と接触抵抗が同時に低減することを見出した。

(6) 以上より、本研究全体の成果として、電荷ドーピングが高性能なOFETデバイスの設計と作製において極めて有効な手段であることを理論及び実験の両面から実証した。また、ショットキー障壁を考慮したデバイスシミュレーションや新規デバイスパラメータ抽出法

を考案し、それらの有用性を示すことで、将来のスケーリング則の確立に向けた重要な成果が得られた。

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)

Kei Noda, Yasuo Wada, Toru Toyabe, "Intrinsic difference in Schottky barrier effect for device configuration of organic thin-film transistors", Organic Electronics, 査読有, vol. 15, No. 7, 2014, 1571-1578, DOI: 10.1016/j.orgel.2014.04.018

Kei Noda, Yasuo Wada, Toru Toyabe, "Numerical investigation of organic thin-film transistors using a thermionic field emission model", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, vol. 53, No. 6S, 2014, 06JH02-1-06JH02-5, DOI: 10.7567/JJAP.53.06JH02

野田 啓, 山崎将嗣、郭哲維、「有機トランジスタにおけるコンタクト構造最適化への取り組み」, Nanotech Japan Bulletin, 査読無, vol. 6, No.4, 2013, 1-6.
https://nanonet.go.jp/ntjb_pdf/nanotechEXPRESS-08.pdf

Kei Noda, Yusuke Wakatsuki, Yuji Yamagishi, Yasuo Wada, Toru Toyabe, Kazumi Matsushige, "Current enhancement with contact-area-limited doping for bottom-gate, bottom-contact organic thin-film transistors", Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, vol. 52, No. 2, 2013, 021602-1- 021602-6, DOI: 10.7567/JJAP.52.021602

Yuji Yamagishi, Kei Noda, Hirofumi Yamada, Kazumi Matsushige, "Organic field-effect transistors with molecularly doped polymer gate buffer layer", Synthetic Metals, 査読有, vol. 162, No. 21-22, 2012, 1887-1893, DOI: 10.1016/j.synthmet.2012.08.020

[学会発表](計10件)

高垣俊介、野田 啓、山田啓文、「単一トップゲート型 OFET 素子における接触抵抗・チャネルパラメータの分離抽出」, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学・相模原キャンパス、2014 年 3 月 17 日。

Kei Noda, Yasuo Wada, Toru Toyabe, "Numerical investigation of organic thin-film transistors using a thermionic field emission model", 26th Microprocesses and

Nanotechnology Conference (MNC2013), Royton Sapporo, Hokkaido, Japan, 2013 年 11 月 7 日。

Kei Noda, "Recent research topics on organic thin-film transistors", One day workshop on organic electronic devices, Shivaji University, Kolhapur, Maharashtra, India, 2013 年 9 月 24 日。

高垣俊介、野田啓、山田啓文、「新規パラメータ抽出手法を用いた OFET の分子ドーピング効果の検討」, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学・京田辺キャンパス、2013 年 9 月 18 日。

野田啓、和田恭雄、鳥谷部達、「熱電界電子放出モデルによる有機トランジスタの数値的検討」, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学・京田辺キャンパス、2013 年 9 月 18 日。

山岸裕史、野田啓、小林圭、山田啓文、「表面電位測定による局所ドーブ有機トランジスタの評価」, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、2013 年 3 月 27 日~30 日。

Yuji Yamagishi, Kei Noda, Hirofumi Yamada, "Organic transistors with molecularly doped polymer gate buffer layer", Seventh international conference on molecular electronics and bioelectronics (M&BE7), Fukuoka International Congress Center, Fukuoka, Japan, 2013 年 3 月 17 日~19 日。

山岸裕史、野田啓、山田啓文、「分子ドーブされた極薄絶縁バフファ層を有する有機トランジスタ」, 薄膜材料デバイス研究会 第 9 回研究集会「薄膜デバイスの未来」, なら 100 年会館 中ホール&ホワイエ、2012 年 11 月 2 日~3 日。

山岸裕史、野田啓、山田啓文、「極薄酸化インジウム層を有する n 型トランジスタ」, 第 73 回応用物理学会秋季学術講演会、愛媛大学及び松山大学、2012 年 9 月 11 日~14 日。

高垣俊介、野田啓、山田啓文、「導電性ポリマーを有する OFET の作製及びデバイスパラメータ抽出」, 第 73 回応用物理学会秋季学術講演会、愛媛大学及び松山大学、2012 年 9 月 11 日~14 日。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

野田 啓 (NODA, Kei)

慶應義塾大学・理工学部・専任講師
研究者番号：30372569

(2)連携研究者

和田 恭雄 (WADA, Yasuo)
元 東洋大学・学際融合研究科・教授
研究者番号：50386736

山田 啓文 (YAMADA, Hirofumi)
京都大学・工学研究科・准教授
研究者番号：40283626