

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289098

研究課題名(和文)ビッグデータ向け環境センサの基盤を支える有機アナログ集積回路

研究課題名(英文)Organic Analog Integrated Circuits and Ambient Sensors for Big Data

研究代表者

染谷 隆夫 (SOMEYA, Takao)

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号：90292755

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,100,000円

研究成果の概要(和文)：近年、ビッグデータ向けセンサの基盤を支えるエレクトロニクスの活用が進んでおり、低駆動電圧有機トランジスタの手法の一つとして、自己組織化単分子膜(SAM)が表面修飾された酸化アルミを絶縁膜として用いる研究が注目されている。このような背景のもと、酸化チタンとSAMのハイブリッド絶縁膜を用いた有機トランジスタと擬CMOSインバータを実現した。さらに、TiO_x+SAM絶縁膜を用いた擬CMOSインバータの変調電圧特性および、それによってゲイン100を示す擬CMOSインバータの作製に成功した。

研究成果の概要(英文)：Applications of electronics on, or even in the human body require devices to be safe and consume low energy, which requires an aggressive scaling of the operating voltage ideally down to sub-1V levels. Here we demonstrate organic transistor with a high-k titanium oxide gate dielectric with a mobility of 1.45 cm²/Vs when operated at 1V. We show organic pseudo-CMOS inverter able to invert an input 0.3V driving-voltage and the inverter with 0.5V driving-voltage able to operate at a 10Hz square wave input. The total delay time of the inverter under such conditions is 24 ms. The here-developed methods allow low voltage operational organic transistor circuits to be fabricated in a highly reliable manner on virtually any substrate, applicable for flexible, wearable and implantable electronics in health care, medical diagnostics and patient monitoring as well as consumer appliances.

研究分野：有機エレクトロニクス

キーワード：ビッグデータ フレキシブルデバイス 有機トランジスタ センサシステム アナログ集積回路

1. 研究開始当初の背景

(1) 本研究課題に関連する研究動向

ビッグデータ時代の到来を迎え、社会システムの最適化・効率化に向けた情報通信技術の活用が進んでいる。ビッグデータの活用は、もともとは顧客情報のようなサービス分野で蓄積されたデータ分析から始まったが、そのデータ対象は急速に広がっており、さらには実空間の情報計測へと拡大している。実空間の情報計測の基盤を支えるのは、多種多様なセンサ技術である。そのため、シリコンとは相補的な特徴をもつ有機デバイスへの期待は高まっており、特に有機トランジスタの軽さ薄さ柔らかさを生かしたセンサ技術は、現在も重要となっている。

有機トランジスタの研究は国内外を問わず活発に取り組みられてきたが、その中心は、あくまで有機半導体の材料開発と物性計測、および単体素子の評価であった。また、企業でも開発は進められているが、その用途はディスプレイと無線タグが中心であった。センサは電圧電流など基本的仕様からしてディスプレイや無線タグとは異にするため、センサ用途のためのフレキシブルデバイスの発展が望まれていた。

(2) 研究代表者の過去の研究成果

研究代表者の染谷らは、自己組織化単分子膜など独自の材料と、プロセスに工夫を凝らすことにより、電気的特性と機械的特性を兼ね備えた世界最高性能の有機トランジスタを発表してきた。さらに、この素子で有機集積回路を作製し、次世代ロボット用の電子人工皮膚など、フレキシブルセンサへの応用という独自の研究を進めてきた。これらの研究発表後、有機デバイスのセンサ応用は急速に発展し、八エの重さが計量可能な超高感度圧力センサといったユニークなフレキシブル有機センサが次々と報告されるようになった。しかし従来の有機センサは、単体素子の試作と、ラポレベルの初期性能評価が進められているにすぎず、フィールドでの実証レベルには到達していなかった。この原因としては、有機集積回路の性能や信頼性が十分でないことが挙げられた。

一方で、デジタル回路と実空間がやり取りするには、アナログのインタフェースが必要であり、センサはアナログ技術が結集されたシステムとなる。しかしアナログ回路の研究は、デジタル回路に比べると大幅に遅れており、故障モードの解明や信頼性の向上も進んでいなかった。

このような背景のもと、センサ用途の有機アナログ集積回路の高性能化と高信頼性化は、急務の課題であり、アナログ回路向けに染谷らの世界最高性能の有機トランジスタの最適化を進めれば、これらの問題を解決できる段階になったと判断したため、本研究課題への着手に至った。

2. 研究の目的

本研究課題では、ビッグデータの基盤を支えるフレキシブル有機センサシステムの実現を目指して、センサ用途に特化して、高性能かつ高信頼性な有機アナログ集積回路の基盤を確立することを目的としている。

この目的を達成するため、まず、有機アナログ集積回路の高性能化を図り、高帯域かつ高利得の有機増幅回路の開発に取り組んだ。次に、センサの高信頼性化を実現するため、有機集積回路の故障モードを解明し、その解決手法の確立を目指した。特に、高耐圧でかつ大電流を遮断できる有機ダイオードを開発し、静電気保護回路に応用することを試みた。

さらに、フレキシブル有機センサシステムを試作して、さまざまな環境下で信頼性と性能を計測し、本研究課題による有機アナログ集積回路の有用性を実証することを目標とした。

3. 研究の方法

これまでに染谷らが開発してきた世界最高性能の有機トランジスタに改良を加え、より高性能かつ高信頼性のある有機アナログ集積回路を実現するために、(1) 有機トランジスタのアナログ集積回路応用 (2) 有機集積回路の高信頼性化 (3) フレキシブル有機センサシステムの性能・信頼性評価 という3つのステップを踏んだ。

(1) 有機トランジスタのアナログ集積回路応用

有機トランジスタをアナログ集積回路へ応用するためには、雑音の評価と低減する技術、素子特性の不均一性を低減(補正)する技術、温度など環境変化に対する特性変化を低減する技術が重要である。本研究課題では、それぞれのデバイス物理を明らかにし、性能の向上を目指した。さらに、これらの知見を集約して、有機差動増幅器など有機アナログ集積回路の特性を明らかにした。

雑音の評価と低減する技術

有機トランジスタの雑音メカニズムを解明すると同時に、その雑音低減の手法の確立を目指した。特に、有機増幅器は、低周波数領域での用途が中心であり、フリッカ雑音(1/f 雑音)の理解が重要である。フリッカ雑音は、トラップ密度など界面の品質に依存する。そこで、様々なプロセス条件下で製造されたトランジスタについて、系統的に雑音レベルを計測することによって、そのメカニズムを解明し、さらに雑音の低減を目指した。具体的には、染谷らが開発した自己組織化単分子膜(SAM)をゲート絶縁膜に応用した有機トランジスタについて、界面トラップを低

減するためのプロセス条件を最適化し、雑音を低減させた。さらに、フリッカ雑音は、素子面積に反比例して低減できるので、ピンホールのないSAMゲート絶縁膜を実現して素子の大面积化を進め、超低雑音の有機トランジスタを実現した。

素子の不均一性を低減（補正）する技術

増幅器の雑音レベルは、究極的には熱雑音やフリッカ雑音で決まるが、電源由来の雑音など外的要因による雑音は差動増幅器によって著しく低減できる。差動増幅器は、特性が完全に同じ増幅器をペアにして、それぞれの入力と出力の差分を取る。有機トランジスタは、素子ばらつきが大きいので、特性が同じ増幅器のペアを作ることが困難である。

そこで、本研究では、差動増幅器の実現を目指して、素子の不均一性を低減（補正）する技術に取り組んだ。具体的には、電氣的な補正、物理的な補正、化学的な補正の3種類のアプローチを組み合わせ、特性の均質性を高めていった。これらの手法は、できるだけ均一なトランジスタの製造を試みた後、それでもやむを得ず残る不均一性を製造後に補正するための技術である。3つの手法は相補的であり、特徴を活かした制御を進めた。

まず、電氣的な補正は、染谷らが開発した浮遊ゲート構造を有する有機トランジスタによって、製造後に閾値制御を行った。この手法による不均一性の低減は既の実証済みであるが、さらに精度を上げて差動増幅器への有用性を検証した。また、物理的な補正として、レーザーで電極のトリミングを行うことによって、より均一性を向上させた。レーザーで電極の形状を制御する際に、損傷など意図しない特性変化の度合いを検証した。さらに、化学的な補正として、半導体層に電荷を誘導するドーピングなどの手法で、製造後に閾値の制御を試みた。特に、ドーピングによって、長期的な信頼性が損なわれると、補正してから時間が経過するにつれて増幅器のペアの特性のずれが大きくなることが予想されるため、経年変化に差がでないような化学的補正の手法の確立に取り組んだ。

温度変化など環境変化に対する特性変化を低減する技術

回路設計では、プロセスばらつき、電源電圧変動、温度変動の3種のばらつきを考慮して、回路動作を保証する。これまでの研究によって、有機トランジスタのプロセスばらつきには、相当な知見が蓄積されてきた。しかし、有機トランジスタの温度依存を含む環境変化に対する特性変化、特にその経年変化に対する影響についてはほとんど知見がない。そこで、本研究課題では、有機トランジスタの環境変化の影響を系統的に評価した。さらに、プロセス条件などの最適化によって、特性変化がより小さい有機トランジスタの開

発に取り組んだ。

(2) 有機集積回路の高信頼性化

高信頼性のセンサを実現するために、有機集積回路の故障モードを解明し、その解決手法の確立に取り組んだ。特に、静電気による故障を解決するため、高耐圧でかつ大電流を遮断できる有機ダイオードを開発し、フレキシブルな静電気保護回路に応用することを試みた。

静電気放電（ESD: Electro-Static Discharge）は、シリコンデバイスのような成熟した半導体デバイスにおいても、損傷や誤動作の原因として多くの問題を引き起こしている。ESDには製造時と使用時の両方の対策が必要であるが、ヒトが直接接触するようなセンサの場合には、特に使用時におけるESD対策が不可欠となる。

そこで、本研究課題では、有機デバイスでフレキシブルな静電気保護回路の開発に取り組んだ。静電気保護回路の基本は、絶縁破壊が起きやすいゲートに外部から静電気が印加されたとき、遮断経路によってチャージを電源ラインなどに迂回させることによって、高い電位がゲートに直接印加されるのを防止することである。この保護回路の特性を決めるのが、ESD保護ダイオードである。

本研究課題では、ショットキー接合型の有機ダイオードに工夫を加え、性能の向上を図った。特に、アノード側の電極金属表面にバッファ層を挿入することによって、注入障壁を下げ、大電流化を進めた。また、縦方向に移動度が大きい半導体材料の素子応用を進め、さらなる大電流化を目指した。また、カソード側に薄い障壁層を挿入して、逆バイアス側の漏れ電流を低減させることに取り組んだ。

(3) フレキシブル有機センサシステムの性能・信頼性評価

本研究課題で得られた知見をもとに、フレキシブル有機センサシステムを試作して、その性能と信頼性の評価を進めた。具体的には、有機増幅回路と有機静電気保護回路を集積化したフレキシブル有機センサシステムを試作して、モデルの検証を進めた。センサシステムには、微小な圧力変化による電気信号を有機増幅回路で増幅させる装置を利用した。さまざまな環境下で有機アナログ集積回路の信頼性と性能を計測することにより、フレキシブル有機センサシステムの有用性をデモンストレーションした。

また、有機デバイスの経年変化については、封止膜の性能が大きな決定因子となることが分かっている。我々の研究グループでは、これまで独自に開発した高性能な封止膜によって、有機トランジスタの寿命延長に成功してきた。また、この実験過程で、ピアホールからのガスバリア漏れが信頼性を阻害しており、超薄型フィルムの場合にその影響が

顕著であることを明らかにしてきた。本研究課題では、このような実装に伴う劣化メカニズムも明らかにすることにより、有機集積回路に対する更なる信頼性の向上に取り組んだ。

4. 研究成果

(1) TiO₂ トランジスタの陽極酸化によるリーク低減

本実験においては、陽極酸化の有無によるトランジスタ特性の変化の確認と、陽極酸化電圧の最適化を行った。陽極酸化の模式図を図1に、作製したトランジスタの伝達特性を図2(a)に示す。

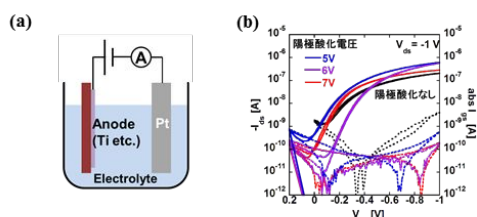


図1 陽極酸化によるTiO_xトランジスタのリーク低減
(a)陽極酸化の模式図 (b)伝達特性

(b)の黒線に見られるように、陽極酸化を行わずに酸素プラズマのみで成膜したTiO_xを用いたトランジスタにおいてリーク電流は大きい値を示し、それ以外の曲線に見られるように、陽極酸化を行った後に酸素プラズマを行ったトランジスタにおいて、リーク電流は陽極酸化電圧が増加するにつれ、減少した。この時、酸素プラズマアッシングの条件は150 W 3 minで固定した。しかしながら、7 Vにおいてオン電流は6 Vより小さく、オンオフ比の観点では、陽極酸化電圧は6 Vが最適であるとした。

(2) TiO₂ トランジスタのO₂ プラズマパワー最適化

本実験では、陽極酸化電圧を6 Vで一定にし、今度は酸素プラズマのパワーの最適化を行った。作製したトランジスタの伝達特性を図2(a)に、移動度のパワー依存性を図2(b)に示す。(b)からわかるように、移動度は酸素プラズマアッシングのパワーの上昇とともに増加し、250 Wの時最大値である1.22 ± 0.16 cm²/Vsをとった。

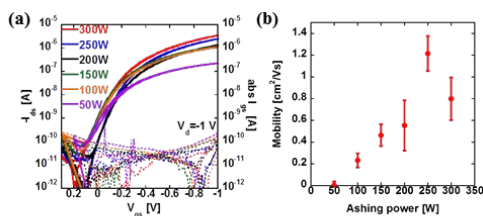


図2 O₂プラズマによるトランジスタ特性の依存性 (a)伝達特性 (b)移動度依存性

(3) TiO₂ トランジスタを用いたインバーター回路

この実験では、これまでで作製したTiO_xトランジスタを用いてインバーター回路の作製を行った。作製したインバーター回路の回路図を図3(a)に、インバーター回路の出力特性を(b)に示す。(b)からわかるように、このインバーター回路は0.5 Vで動作し、そのインバーターゲインは53となった。

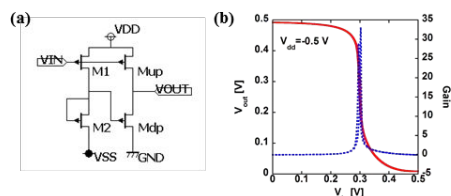


図3 TiO_xトランジスタを用いたインバーター回路 (a)回路図 (b)出力特性

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計1件)

Sunghoon Lee, Tomoyuki Yokota, and Takao Someya, Threshold voltage control for organic thin-film transistors using a tri-gate structure with capacitive coupling, Japanese Journal of Applied Physics (JJAP), 査読有, Vol. 56, 2017, 04CL01-1 ~ 04CL01-4
DOI: 10.7567/JJAP.56.04CL01

[学会発表](計54件)

Takao Someya, Printable Thin-Film and E-Textile Sensors for Health-Monitoring Applications, Materials Research Society (MRS) Fall Meeting & Exhibit, November 29, 2016, Boston (U.S.A.)

Takao Someya, Recent Progress of Ultraflexible Organic Photonic and Electronic Skins, Materials Research Society (MRS) Fall Meeting & Exhibit, November 29, 2016, Boston (U.S.A.)

Takao Someya, Bionic skins with ultraflexible organic devices, William Mong Distinguished Lecture, November 16, 2016, Hong Kong (Hong Kong)

Tomoyuki Yokota, Ultra-flexible organic applications for bio applications, Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology (AsiaNANO 2016), October 11, 2016, Sapporo Convention Center (Sapporo)

Takao Someya, Skin-like stretchable sensors with organic devices, Zing Conference on Organic Semiconductors, September 23, 2016, Dubrovnik (Croatia)

Takao Someya, Bionic Skins with Ultraflexible Organic Devices, The sixth

IEEE RAS/EMBS International Conference on Biomedical Robotics and Biomechatronics (BioRob 2016), June 27, 2016, Singapore (Singapore)

Takao Someya, Flexible Sensors for Health-Monitoring Applications, 2016 Symposia on VLSI Technology and Circuits, "Inflections in VLSI Technologies - Cloud & Beyond", June 13, 2016, Honolulu (U.S.A.)

Takao Someya, Microfabrication and flexible organic devices for wearable electronics, 17th CMI Annual Review Meeting, May 3, 2016, Lausanne (Switzerland)

Tomoyuki Yokota, Printable and Ultra-flexible Temperature Sensor Based on Polymer, 2016 International Conference on Electronics Packaging (ICEP2016), April 21, 2016, Sapporo Education and Culture Hall (Sapporo)

Takao Someya, Reliable Interfaces and Encapsulations for Ultrathin Organic Devices, 2016 Materials Research Society (MRS) Spring Meeting & Exhibit, Symposium EP12: Materials Frontiers in Semiconductor Advanced Packaging, March 31, 2016, Phoenix (U.S.A.)

Takao Someya, Recent Progress of Printable Elastic Conductors for E-Textile, 2016 Materials Research Society (MRS) Spring Meeting & Exhibit, Symposium: MD06: Electronic Textiles, March 30, 2016, Phoenix (U.S.A.)

Takao Someya, Ultraflexible skin-like organic electronics for wearable and implantable applications, International Symposium on Functional Materials 2016, January 25, 2016, Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University (Okinawa)

Takao Someya, Ultraflexible and stretchable organic thin-film devices for biomedical applications, The 9th International Conference on Advanced Materials and Devices (ICAMD2015), December 7, 2015, Jeju (Korea)
Shinri Sakai, Ultra-Stretchable Printed Conductors for Electronic Textile Applications, IDTechEx Sensors USA 2015, November 18, 2015, Santa Clara (U.S.A.),

Takao Someya, Stretchable and ultraflexible skin-like electronics, the Fraunhofer EMFT's Forum be-flexible, November 17, 2015, Munich (Germany)

Peter Zalar, Thin and flexible organic electronic devices for wearable or implantable electronics, American

Chemical Society Fall 2015 National Meeting & Expo (ACS 2015), August 19, 2015, Boston (U.S.A.)

Takao Someya, Ultraflexible Organic Thin-Film Devices for Wearable and Implantable Electronics, SPIE Optics + Photonics, August 11, 2015, San Diego (U.S.A.)

Takao Someya, Ultraflexible organic electronics for healthcare applications, International Union of Pure and Applied Chemistry 2015 (IUPAC 2015): 48th General Assembly and 45th World Chemistry Congress, August 10, 2015, Busan (Korea)

Takao Someya, Recent Progress in Ultraflexible Organic Electronics and Photonics, International Nano-Optoelectronics Workshop 2015 (iNOW2015), August 3, 2015, The University of Tokyo (Tokyo)

Takao Someya, Ultraflexible organic thin-film devices for wearable and implantable electronics, The 15th International IEEE Conference on Nanotechnology (IEEE NANO 2015), July 30, 2015, Rome (Italy)

⑲ Takao Someya, Ultraflexible Organic Devices and Sensors for Biomedical Applications, Materials Research Society (MRS) Spring Meeting & Exhibit, April 7, 2015, San Francisco (U.S.A.)

⑳ Takao Someya, Ultraflexible Electronics Using Organic Devices, International Display Workshops (IDW'14), December 3, 2014, Toki Messe Niigata Convention Center (Niigata)

㉑ Takao Someya, Bionic skins using flexible organic devices, 44th European Solid-State Device Conference (ESSDERC/ESSCIRC 2014), September 24, 2014, Venice (Italy)

㉒ Takao Someya, Flexible Organic Thin-film Devices for Biomedical Electronics, 18th International Symposium on Advanced Display Materials and Devices (ADMD 2014), July 24, 2014, Tohoku University (Sendai)

㉓ Takao Someya, Ultraflexible Organic Devices for Biomedical Applications, The 2014 IUPAC World Polymer Congress and The 45th International Symposium on Macromolecules (MACRO 2014), July 8, 2014, Chiang Mai (Thailand)

㉔ Takao Someya, Ultraflexible organic thin-film devices for biomedical applications, NIMS Conference 2014 -A Strong Future from Soft Materials-, July 3, 2014, Tsukuba International Congress Center (Tsukuba)

⑳ Takao Someya, Ultraflexible and stretchable organic devices for biomedical applications, 2014 GRC Conference on Electronic Processes in Organic Materials: New Frontiers in the Chemistry and Physics of Organic Electronic and Opto-electronic Materials, May 5, 2014, Lucca (Italy)

〔図書〕(計2件)

横田知之、染谷隆夫、0 plus E、皮膚に貼り付け可能なディスプレイを実現、2016、707-708

Martin Kaltenbrunner, Takao Someya, The WSPC Reference on Organic Electronics: Organic Semiconductors, Engineering Applications of OFETs in Flexible and Stretchable Electronics, 2016, 85-114

〔産業財産権〕

出願状況(計0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0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

染谷研究室 有機トランジスタ・ラボ
ホームページ
<http://www.ntech.t.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

染谷 隆夫 (SOMEYA, Takao)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：90292755

(2) 研究分担者

櫻井 貴康 (SAKURAI, Takayasu)
東京大学・生産技術研究所・教授
研究者番号：90282590

高宮 真 (TAKAMIYA, Makoto)

東京大学・大規模集積システム設計教育
研究センター・准教授
研究者番号：20419261

関谷 毅 (SEKITANI, Tsuyoshi)
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号：80372047
(平成27年度より連携研究者)

更田 裕司 (FUKETA, Hiroshi)
産業技術総合研究所・ナノエレクトロニクス研究部門・研究員
研究者番号：30587423
(平成27年度より連携研究者)

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()

研究者番号：