



Title	Novel methods for fine-pitch integration of organic transistors and their applications
Author(s)	中山, 健吾
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/34443
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (中山 健吾)

論文題名

Novel methods for fine-pitch integration of organic transistors and their applications

(有機トランジスタのための新規微細化技術とその応用)

論文内容の要旨

有機トランジスタは、軽量性や機械的柔軟性といったユニークな特長や、低温プロセスで比較的簡便に作製できるといった利点から、次世代のプラスチックエレクトロニクスを実現するためのキーデバイスとして近年期待が高まっており、活発な研究開発が行われている。

有機トランジスタの課題として、応答速度や出力電流密度等の性能が、実用上要求される水準に照らして必ずしも十分とは言えないことが挙げられる。これは主に次の2つの理由による。1つ目は、有機半導体のキャリア移動度に起因する。キャリア移動度は半導体内における電子の動き易さを表す物理量である。無機半導体の場合、その代表格である単結晶シリコンでは $1000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度、多結晶膜でも $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上という高い値を示すのに対し、典型的な有機半導体材料のキャリア移動度は $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度しかない。キャリア移動度は、トランジスタの性能に直結する重要な指標であり、高移動度半導体材料ほどデバイスとして好ましいと言える。移動度が高いと、低電圧で同じ出力電流を得ることが可能になる他、電子のドリフト速度が高まるためにトランジスタのオン状態（導通状態）とオフ状態（非導通状態）を素早く切り替えることができ、スイッチング速度の向上にも繋がることになる。これは、出力電流・応答速度ともにキャリア移動度に比例することによる。そのため、より高いキャリア移動度を有する新規有機半導体材料が、この10年ほどで急速に開発されてきている。

2つ目は、有機トランジスタの微細化がこれまでは難しかったことが挙げられる。デバイススケールの縮小に伴う短チャネル化は、特に応答速度の向上にとって重要であるが、従来の方法で作製されるボトムコンタクト電極の場合、微細配線パターンの形成に有利な反面、有機半導体薄膜の均一な成長が阻害されるために寄生抵抗の問題が顕在化し易いという欠点があった。これに対しトップコンタクト構造では、有機半導体膜を成膜した後に電極が形成されるため寄生抵抗の影響を低減し易いものの、電極パターンの微細化が技術的に困難であった。

本論文では、有機トランジスタの微細化・集積化におけるこれまでの課題を克服し、高性能トップコンタクト型デバイスを作製できる革新的技術について述べ、そのデバイス応用も含めて報告する。

各章の概要は以下の通りである。

第1章では序論として、有機トランジスタ開発の応用上の意義について記述した。

第2章では、トランジスタの性能に対する微細化の重要性と、有機トランジスタで短チャネル化を実現する際の現状における技術的課題について記述した。

第3章では、高移動度有機半導体材料におけるキャリア輸送機構について述べた。

第4章では、有機半導体の性能に悪影響を与えることなくトップコンタクト型の微細金属電極を構築することができる新規手法について詳述する。この新規手法は、金属のウェットエッチングを用いて有機半導体活性層上にトップコンタクト型電極を構築する手法であり、フォトレジストを用いた微細加工技術と組み合わせることによって配線間隔が数ミクロン以下の極めて微細な金属配線を実現するものである。本文中では、金属エッチング剤に対する有機半導体材料の熱力学的安定性に絡めて作製プロセスの紹介を行うと共に、寄生抵抗や応答速度等の定量的な評価結果を通じて新技術の有用性について詳述した。

第6章と第7章では、実際のデバイス応用として、液晶ディスプレイ並びに有機論理素子の作製例について記述した。

第8章では、有機トランジスタの集積化を目的とした、3次元有機電界効果トランジスタの開発について記述した。これは、立体構造を利用して縦型チャネル高密度に構築することで従来の平面型素子に比べて半導体活性層の飛躍的な集積化を実現するものであり、短チャネル化と、出力電流密度の増大にとって有利な素子構造である。

第9章では、本論文の総括と今後の展望について述べた。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (中 山 健 吾)			
論文審査担当者	(職)	氏 名	
	主 査	教授	笠井 秀明
	副 査	教授	菅原 康弘
	副 査	教授	萩行 正憲
	副 査	教授	大森 裕
	副 査	教授	竹谷 純一 (東京大学大学院新領域創成科学研究科)

論文審査の結果の要旨

次世代の低コストかつフレキシブルなエレクトロニクス材料として、有機半導体が注目されている。最近有機半導体材料やプロセス技術の開発が進み、溶液プロセスで作製された単結晶有機半導体において、 $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を超える高移動度のキャリア輸送が実現するようになった。しかし、有機半導体をトランジスタ材料として実用化するには、現状よりも高速で応答するデバイス化プロセスを開発する課題が存在する。特に、有機半導体は、一般的にフォトリソグラフィによる微細パターンニングで用いられる有機溶媒によるダメージを受けやすいため、通常の方法での集積回路化が困難である。従って、今後高速の演算回路を、有機半導体を用いて安価に実現し、ウェアラブルセンシングデバイスのネットワークなど、幅広い産業応用につなげるために、信頼度の高い有機半導体微細構造を実現する必要がある。本論文では、金薄膜を有機半導体層の直上に形成した後、有機半導体層を無事に残しつつ、金薄膜の一部を溶液によってエッチングするという、一見無謀にも思える新規プロセスの開発によって、数マイクロメートルまでチャネル長を微細化した有機トランジスタの作製に成功したことを報告している。また、通常は平面状に積層した構造を有する有機トランジスタに対し、縦方向のチャネルを有する、三次元有機トランジスタにおいて短チャネル化が簡単なプロセスで実現することを提案し、実際に高速のデバイス性能を実現した。本論文における主な成果を要約すると以下の通りである。

(1) 有機半導体上金薄膜のエッチングによる高性能短チャネル有機トランジスタ作成法の開発：

有機トランジスタの応答速度は、移動度に比例し、チャネル長の2乗に反比例するため、デバイスの高速応答を実現するために、高移動度でありかつチャネル長の短いデバイス作製法が求められるが、こうした手法はいまだ開発途上にあった。本論文の議論は、以前に試みられていた、有機半導体と絶縁膜の間にソース及びドレインの電極を作成する方法や有機半導体上のポリマーレジストをパターンニングして後から剥離する方法には、致命的な欠点があることを明確に指摘することにより開始される。そうして、有機半導体上に直接金薄膜を形成し、その後にチャネルとなる部分をエッチングすることによって短チャネルの有機トランジスタを作製する手法を提案するのであるが、こうした方法は、有機物が金より安定であるはずがないという固定観念によって、従来の研究者が決して試みなかったことである。しかしながら、本論文では、最近開発された酸化電位の高い大気中で安定な有機半導体化合物では、金よりもイオン化ポテンシャルの高いものも存在するので、その場合には、有機膜状の金をエッチングしても、金の下有機半導体層は影響を受けないはずであることを喝破して、実際にそのことを、酸化電位の異なる3種類の有機トランジスタデバイスの比較によって実証している。3種類の有機半導体のうち、金よりもイオン化ポテンシャルが 0.5 eV 程度大きい C10-DNBDT と称される化合物は移動度が $10 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を上回り、溶液から結晶成長するプロセスを適用可能であることがわかっていうえ、金のエッチングプロセスによって、ほとんどデバイス性能は影響を受けないことがわかったため、集

積回路に応用するのに極めて実用に近いことが明らかになった。

(2) 新しいパターニングプロセスを利用した有機半導体集積回路：

さらに、イオン化ポテンシャルが p 型有機半導体よりも大きいことがわかっている、n 型有機半導体においても、同様のプロセスが適用可能であることを予測し、実験によって確認することに成功している。その結果、p 型と n 型を組み合わせた CMOS 回路も構成可能となつて、高速の論理回路が実際に次々と製作されていくこととなる。本論文では、基本となる演算素子である NAND 回路などの正しい論理演算を実際に実現することを示した。

(3) 三次元有機半導体トランジスタ：

三次元有機半導体トランジスタでは、通常の平面型有機トランジスタとは異なり、チャネルの無機が基盤に垂直な方向であるため、チャネル長さは、基板面に作製する凹凸構造の深さによって決定される。従つて、フォトリソグラフィを用いた場合に製作が困難になる、チャネル長がサブマイクロメートルのデバイスであっても、比較的簡単に製作することが可能である特徴を有する。従つて、電子ビームリソグラフィなどの高コストかつ生産効率の悪い手法ではなく、工業的に容易な手法で、こうした短チャネルの高速デバイスの製作が可能になる利点を有する。本論文では、パターニングしたフォトレジストの壁面をチャネルとして利用する新しいデバイス構造を提案し、実作している。その結果、比較的移動度が低いポリマーの有機半導体であっても、高性能のトランジスタ動作を実現することに成功している。従つて、有機半導体上の金のウェットエッチング法とあわせて、短チャネルの高速有機トランジスタを実現する有力な手法であることを示したといえる。

以上のように、本論文は、これまで困難とされていた、有機半導体トランジスタの短チャネル化を実現する 2 つの新規プロセスを独自に開発したことにより、次世代の低コスト有機論理回路開発を 1 歩進めた点が、まず大きく評価されるべきポイントである。加えて、その解決手法が、単なる既知技術の改良ではなく、応用物理の基礎に立ち返った独自の考察に基づいていることも、博士論文としての質を高めている。また、実際の論理集積回路の基礎的な動作を実際に示しており、今後のより複雑な論理回路の開発への道筋を示している点も、発展性が期待でき、応用物理学の成果として有益なものと考え、よつて本論文は博士論文として価値あるものと認められる。