

Oral presentation | 12 Organic Molecules and Bioelectronics : 12.4 Organic light-emitting devices and organic transistors

📅 Wed. Sep 18, 2024 1:00 PM - 3:00 PM JST | Wed. Sep 18, 2024 4:00 AM - 6:00 AM UTC 🏛️ B6  
(Exhibition Hall B)

## **[18p-B6-1~8] 12.4 Organic light-emitting devices and organic transistors**

Masatoshi Kitamura(Kobe Univ.)

1:00 PM - 1:15 PM JST | 4:00 AM - 4:15 AM UTC

[18p-B6-1]

Visualizing Molecular Ordering Behavior in Polycrystalline Organic Semiconductor Films by Friction Force Microscopy

○(D)Ryo Miyata<sup>1</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Kiyoshi Nikaido<sup>1</sup>, Ken Nakajima<sup>2</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup> (1.U.Tokyo, 2.TIT)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

1:15 PM - 1:30 PM JST | 4:15 AM - 4:30 AM UTC

[18p-B6-2]

Carrier Injection Dependent on Electrode Work Functions in Sharp Switching Organic Single-Crystal Transistors

○(M2)Shinji Tsuchida<sup>1</sup>, Keito Murata<sup>1</sup>, Yuichi Nagayama<sup>1</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup> (1.U. Tokyo)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

1:30 PM - 1:45 PM JST | 4:30 AM - 4:45 AM UTC

[18p-B6-3]

Mixing-Induced Control of Polar Molecular Order and Strain Gauge Based on Piezoelectric Organic Semiconductor

○(D)Kiyoshi Nikaido<sup>1</sup>, Seita Kuroda<sup>1</sup>, Kentaro Shoriki<sup>1</sup>, Youtarou Takahashi<sup>1,2</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup> (1.U. Tokyo, 2.RIKEN CEMS)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

1:45 PM - 2:00 PM JST | 4:45 AM - 5:00 AM UTC

[18p-B6-4]

Bottom-Contact-Type Short-Channel Organic TFTs with highly lyophobic gate insulator

○(D)Keito Murata<sup>1</sup>, Shinji Tsuchida<sup>1</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Toshiki Higashino<sup>2</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup> (1.U. Tokyo, 2.AIST)

◆ Presentation by Applicant for JSAP Young Scientists Presentation Award

2:00 PM - 2:15 PM JST | 5:00 AM - 5:15 AM UTC

[18p-B6-5]

Fabrication of crystalline thin films by very high-speed blade-coating using liquid crystallinity and their transistor characteristics

○(M2)Issei Suzuki<sup>1</sup>, Jun-ichi Hanna<sup>1</sup>, Hiroaki Iino<sup>1</sup> (1.Tokyo Tech)

2:15 PM - 2:30 PM JST | 5:15 AM - 5:30 AM UTC

[18p-B6-6]

Improvement of carrier accumulation capability in the channel layer using high-k insulating films

○Taiki Fujitani<sup>1</sup>, Naoki Goto<sup>1</sup>, Yoshitaka Iwazaki<sup>1</sup>, Tomo Ueno<sup>1</sup>, Mitaro Namiki<sup>1</sup> (1.Tokyo Univ. of Agri. & Tech.)

---

2:30 PM - 2:45 PM JST | 5:30 AM - 5:45 AM UTC

[18p-B6-7]

Organic Phototransistor on the Nanomesh substrate

○YUTO AOKI<sup>1</sup>, Chika Okuda<sup>1</sup>, Sunghoon Lee<sup>1</sup>, Takao Someya<sup>1</sup>, Tomoyuki Yokota<sup>1</sup> (1.Univ. of Tokyo)

---

2:45 PM - 3:00 PM JST | 5:45 AM - 6:00 AM UTC

[18p-B6-8]

Development of neuromorphic devices with antiambipolar transistors

○Yuho Yamamoto<sup>1,2</sup>, Ryoma Hayakawa<sup>1</sup>, Yoichi Yamada<sup>2</sup>, Yutaka Wakayama<sup>1</sup> (1.NIMS, 2.Univ. Tsukuba)

---

## 摩擦力顕微鏡による多結晶有機半導体膜内の秩序化挙動の可視化

### Visualizing Molecular Ordering Behavior in Polycrystalline Organic Semiconductor Films by Friction Force Microscopy

東大工<sup>1</sup>, 東工大物質理工<sup>2</sup>, <sup>○</sup>(D)宮田 稜<sup>1</sup>, 井上 悟<sup>1</sup>, 二階堂 圭<sup>1</sup>, 中嶋 健<sup>2</sup>, 長谷川 達生<sup>1</sup>

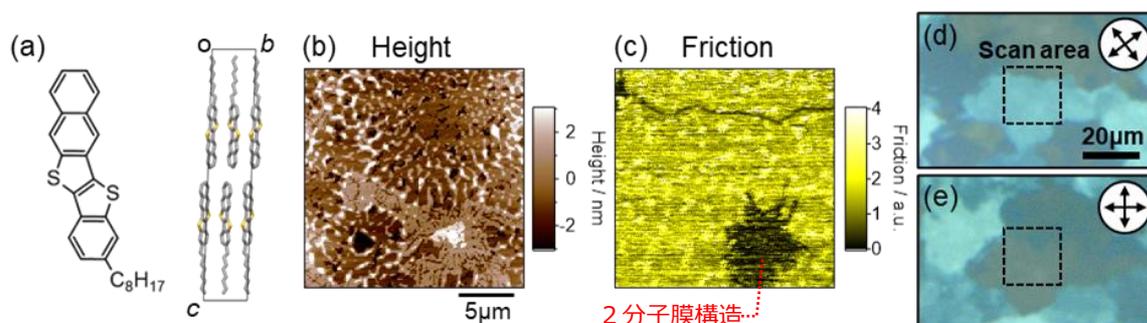
U. Tokyo<sup>1</sup>, TIT<sup>2</sup>, <sup>○</sup>Ryo Miyata<sup>1</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Kiyoshi Nikaido<sup>1</sup>, Ken Nakajima<sup>2</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup>

E-mail: miyata-ryo349@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

拡張  $\pi$  電子骨格とアルキル基の連結により得られる塗布型有機半導体の多くは、非対称な棒状分子が2分子膜型ヘリンボーン構造に層状秩序化することで、優れたスイッチング特性を示す薄膜トランジスタ (TFT) が得られる<sup>[1]</sup>。単結晶薄膜を用いたデバイスでは優れた特性が明らかな一方、各種の塗布プロセスで得られる実用的な多結晶薄膜では、高性能化のための薄膜構造最適化は容易でない。これには、多結晶膜中で生じる高秩序化過程を微視的に理解した上で、製膜法を最適化することが求められる。我々はこれまでに、原子間力顕微鏡 (AFM) を用いた摩擦力評価により、多結晶薄膜内に分布する準安定結晶相 (モノレイヤー相) と2分子膜構造の2相間を判別できることを見出してきた<sup>[2]</sup>。今回、多結晶膜内で生じる準安定結晶相から最安定な2分子膜構造への転移過程に着目し、これら2相の共存状態を摩擦力顕微鏡により評価し、高秩序化のメカニズムを詳細に調べたので報告する。

多結晶薄膜の作製は、2-C8-BTNT<sup>[1]</sup> (図 a) をアニソールに溶解させた半導体溶液を用いて Si 基板上へのスピコートと加熱処理により行った。このとき多結晶膜内の配向秩序は、十分な加熱処理を介して分子配向が乱れた準安定相から最安定の2分子膜相へと転移していく<sup>[1,2]</sup>。そこで、加熱時間を制御した薄膜を作製し、AFMによる表面形状と摩擦力分布の評価を行った結果を図 b, c に示す。ここで図 c に示した摩擦コントラストのうち、黒色の低摩擦領域は加熱処理により2分子膜構造へと転移した領域であることが明らかになっている<sup>[2]</sup>。さらに、AFMにて測定した領域付近のクロスニコル観察を行った結果を図 d, e に示す。図 c の上部に見られた線状の低摩擦領域を境に、クロスニコル像には結晶グレインの明暗変化が観測されている。これより、線状の低摩擦領域はグレイン境界近傍で2分子膜構造への秩序化が進行した様子を捉えていると考えられる。講演では、AFMによる摩擦マッピングから多結晶膜内の準安定相—最安定相間の転移プロセスを評価した結果を示し、層状結晶性有機半導体の相転移機構について議論する。

[1] S. Inoue, *et al. Chem. Sci.* **11**, 12493 (2020). [2] R. Miyata, *et al. ACS Appl. Mater. Int.* 印刷中.



**Fig.** (a) Chemical structure and molecular packing of 2-C8-BTNT. (b) Surface topography and (c) friction force map of the polycrystalline thin film obtained by AFM. (d, e) Crossed-Nicols polarized micrographs of the thin film. The dotted areas corresponded to the scanned areas by AFM in (b, c).

# 高急峻スイッチング有機単結晶トランジスタにおける 電極の仕事関数に依存したキャリア注入

## Carrier Injection Dependent on Electrode Work Functions

### in Sharp Switching Organic Single-Crystal Transistors

東大院工<sup>1</sup>, <sup>○</sup>(M2) 土田 真嗣<sup>1</sup>, 村田 啓人<sup>1</sup>, 永山 裕一<sup>1</sup>, 井上 悟<sup>1</sup>, 長谷川 達生<sup>1</sup>

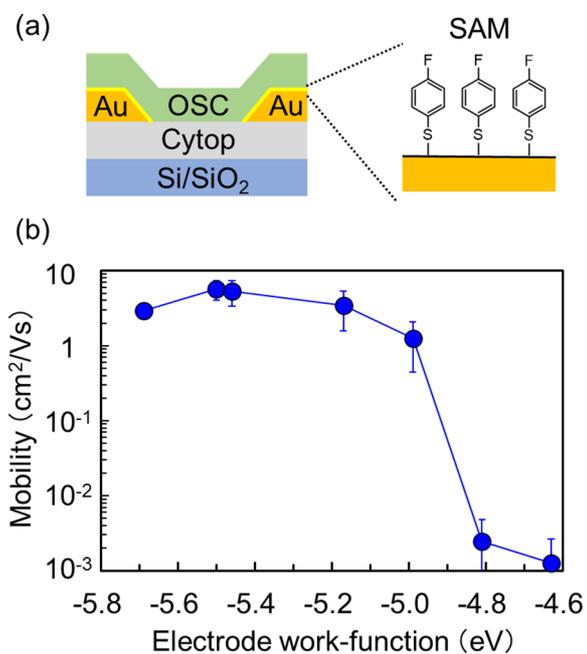
U. Tokyo<sup>1</sup>, <sup>○</sup>Shinji Tsuchida<sup>1</sup>, Keito Murata<sup>1</sup>, Yuichi Nagayama<sup>1</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup>

E-mail: tsuchida-shinji276@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

ボトムゲート・ボトムコンタクト (BGBC) 型有機薄膜トランジスタ (OTFT) は実用化に適したデバイス構造である一方、キャリア注入効率が低い場合十分な性能が得られない場合が多い。これは BGBC 型では半導体/電極/絶縁層が接する 3 元界面でキャリア注入が生じるためであり、特に各要素がどのように注入に寄与するかについて十分な理解が得られていないのが現状である。そのようななか、高撥液な Cytop をゲート絶縁層に用いた BGBC 型構造の塗布型単結晶 OTFT で、理論限界に迫る超高急峻なスイッチングと高い移動度が実現した[1]。この系をモデルに、3 元界面近傍の半導体秩序や、絶縁層の表面エネルギーが注入に及ぼす効果が調べられてきた[2,3]。今回、これら高急峻スイッチング BGBC 型 OTFT において、電極の仕事関数を自己組織化単分子膜 (SAM) により精密に制御し、キャリア注入効率の変化を調べたので報告する。

実験では、電極表面に吸着させる SAM の種類を変えることで電極の仕事関数を制御した (図

a)。半導体は Ph-BTBT-C<sub>10</sub> と Ph-BTBT-C<sub>14</sub> を混合したもの (体積比 98:2) を用い、拡張メニスカス法[1]により Cytop 層上に単結晶薄膜を形成した。作製した素子の電流-電圧特性からデバイス移動度を算出したところ、電極の仕事関数が小さい場合に急激に特性が減少することが分かった (図 b)。これより電極仕事関数が小さい場合は 3 元界面の注入効率が著しく低下していると考えられる。講演では、電極の仕事関数に応じた接触抵抗の変化やデバイス特性の温度依存性等も踏まえ、3 元界面におけるキャリア注入機構について議論を行う。 [1] G. Kitahara *et al.*, *Sci. Adv.* **6**, eabc8847 (2020). [2] K. Murata *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **21**, 024005 (2024). [3] 村田他、第 71 回応用物理学会春季学術講演会 24p-22B-3.



**Fig.** (a) Schematic of device structure and SAM treated electrode surface. (b) Electrode work-function dependence of mobility.

## 分子混合による極性構造制御と圧電性有機半導体のひずみゲージ特性

## Mixing-Induced Control of Polar Molecular Order and Strain Gauge Based on Piezoelectric Organic Semiconductor

東大院工<sup>1</sup>, 理研 CEMS<sup>2</sup>, <sup>○</sup>(D)二階堂 圭<sup>1</sup>, 黒田 清太<sup>1</sup>, 正力 健太郎<sup>1</sup>,高橋 陽太郎<sup>1,2</sup>, 井上 悟<sup>1</sup>, 長谷川 達生<sup>1</sup>U. Tokyo<sup>1</sup>, RIKEN CEMS<sup>2</sup>, <sup>○</sup>Kiyoshi Nikaido<sup>1</sup>, Seita Kuroda<sup>1</sup>, Kentaro Shoriki<sup>1</sup>,Youtarou Takahashi<sup>1,2</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup>

E-mail: nikaido-kiyoshi464@g.ecc.u-tokyo.ac.jp

$\pi$  電子骨格をアルキル基等で置換した層状結晶性有機半導体は、デバイス応用に適した高い薄膜形成能に加えて、置換基や分子種に応じた多彩な層状結晶構造の発現と制御が可能である。実際、分子長軸の向きが揃った極性単分子層が同一方向に積層し、結晶全体で極性を示す結晶が得られており、非線形光学効果や圧電性を利用した新たなデバイス機能の発現が期待される[1]。ただ極性結晶を発現する有機半導体の例はまだ限られ、極性を発現するための分子要件も明らかでない。例えば、典型的な Ph-BTBT-C<sub>10</sub>、及び分子双極子モーメントの増強のためこれにフッ素基を導入した 4F-Ph-BTBT-C<sub>10</sub>(図 a)は、いずれも単体で極性を打ち消し合う分子配列構造を示す。ところが、これらを等モル比で混合することにより、極性結晶が得られることを前回報告した[2]。今回上記混合系において、極性結晶発現による圧電効果と良好な半導体ひずみゲージ特性が得られることを見出したので報告する。

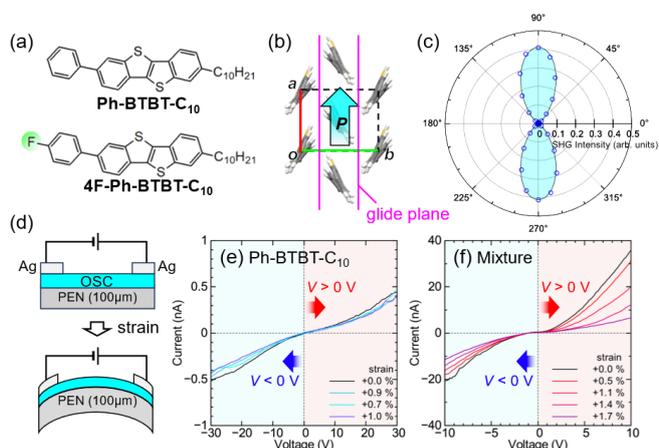
Ph-BTBT-C<sub>10</sub> と 4F-Ph-BTBT-C<sub>10</sub> を等モル比混合した薄膜結晶をブレードコート法により作製し、垂直入射・反射配置における光第二高調波発生(SHG)の測定を行った。結果、*a* 軸方向(図 b)の分極発現を示唆する SHG 信号が得られた(図 c)。

また面内分極に由来した圧電応答を確認した。次に PEN 基板上に作製した薄膜について、ひずみ印加時の電流-電圧特性を評価した(図 d)。結果、無極性の Ph-BTBT-C<sub>10</sub> の特性 (図 e)とは異なり、混合系では電圧の印加方向に応じて電流値の大きさが異なる非対称な特性が見られた(図 f)。また  $\epsilon \sim 1.7\%$  の引張ひずみ印加により最大で 80% に達する顕著な電流変化が得られた(図 f)。ゲージ率 $((\Delta R/R)/\epsilon)$ は 200 以上で、シリコンのピエゾ抵抗素子[3]に匹敵した。講演では混合系の極性分子配列構造、及び圧電効果とひずみゲージ特性の相関について議論する。

[1] S. Inoue *et al.*, *Adv. Sci.* **11**, 2308270 (2024).

[2] 二階堂ら, 第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 24p-1BC-3.

[3] T. Frömling *et al.*, *MRS Bulletin* **43**, 941 (2018).



**Fig.** (a) Chemical structure of Ph-BTBT-C<sub>10</sub> and 4F-Ph-BTBT-C<sub>10</sub>. (b) Schematic of the herringbone structure in the equimolar mixture. (c) SHG polar plot for the equimolar mixture. Polarization of the fundamental light and detected light were set parallel to each other. The solid line represents theoretical fit. (d) Schematic of the two-terminal devices. (e), (f) *I-V* characteristics of the pristine Ph-BTBT-C<sub>10</sub> and the equimolar mixture under tensile strain.

## 高撥液ゲート絶縁層からなる ボトムコンタクト型有機トランジスタの短チャネル化

Bottom-Contact-Type Short-Channel Organic TFTs with highly lyophobic gate insulator

東大院工<sup>1</sup>, 産総研<sup>2</sup>, ○(D)村田 啓人<sup>1</sup>, 土田 真嗣<sup>1</sup>, 井上 悟<sup>1</sup>, 東野 寿樹<sup>2</sup>, 長谷川 達生<sup>1</sup>

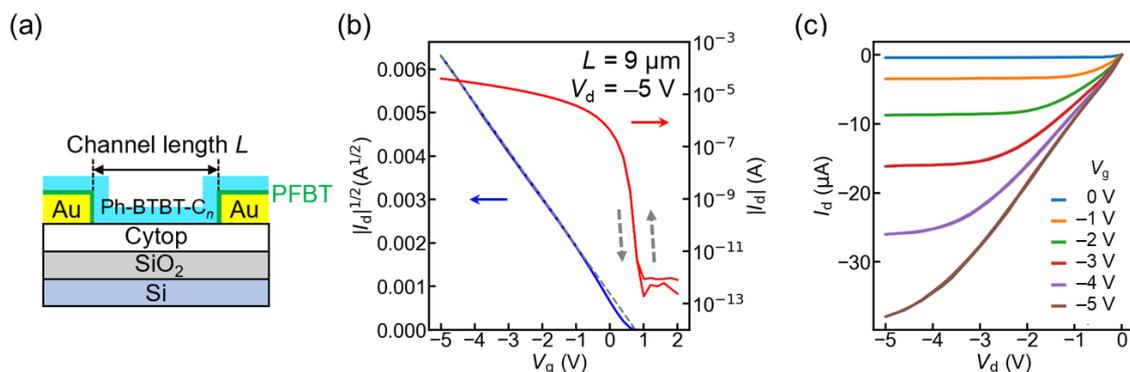
U. Tokyo<sup>1</sup>, AIST<sup>2</sup>,

○Keito Murata<sup>1</sup>, Shinji Tsuchida<sup>1</sup>, Satoru Inoue<sup>1</sup>, Toshiki Higashino<sup>2</sup>, Tatsuo Hasegawa<sup>1</sup>

E-mail: murata@hsgw.t.u-tokyo.ac.jp

有機薄膜トランジスタ (TFT) の動作速度/集積度向上には、半導体の高移動度化に加えてキャリア注入効率向上と素子の短チャネル化が求められる。短チャネル化のためには、半導体層形成前に電極・絶縁層の作製が可能な、ボトムゲート・ボトムコンタクト (BGBC) 型素子構造が有利である。我々はこれまでに、Cytopによる高撥液ポリマーゲート絶縁層からなり、理想的なスイッチング特性を示すBGBC型有機TFTを用いて、注入効率向上と注入機構解明に取り組んできた[1,2]。これら素子のコンタクト抵抗は約1 kΩcmと見積もられ、100 μm程度のチャネル長では十分小さい。しかし10 μm以下の短チャネル化のためには、注入効率向上 (コンタクト抵抗~100 Ωcm以下) が必要になる。今回、高撥液なCytop絶縁層上でフォトリソグラフィ法による高精細な電極パターンニングに成功し、チャネル長が10 μm程度の短チャネルのBGBC型TFTを作製した。これを用いて、短チャネルの有機TFTにおけるキャリア注入の影響を調べたので報告する。

ゲート電極およびゲート絶縁層として、Si/SiO<sub>2</sub>基板上にCytop層を製膜したものをを用いた。この高撥液基板上にフォトリソグラフィ法によりチャネル長10 μm程度の金電極パターンを得た。この電極パターン上に、Ph-BTBT-C<sub>10</sub>とPh-BTBT-C<sub>14</sub>を体積比97:3で混合した溶液を用いて層数制御した半導体単結晶層を、拡張メニスカス塗布法[3]により製膜した (図a)。これにより得られたチャネル長9 μmの短チャネルのBGBC型有機TFTにおいて、図b,cに示すようにヒステリシスが無く、かつSS値が100mV/dec以下の高急峻なスイッチングが再現良く得られた。ただデバイス移動度は最大でも1 cm<sup>2</sup>/Vsでバラつきが大きく、長チャネル素子の1/10程度であった。これは短チャネル素子において、コンタクト抵抗に改善の余地が大きく、電流値が律速されているためと考えられる。講演ではこれら結果を踏まえ、BGBC型TFTにおけるデバイス特性とコンタクト抵抗の起源について議論を行う。 [1] K. Murata *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **21**, 024005 (2024). [2] 村田他、第71回応用物理学会春季学術講演会 24p-22B-3. [3] G. Kitahara *et al.*, *Sci. Adv.* **6**, eabc8847 (2020).



**Fig.** (a) Schematic cross section of TFTs. (b) Transfer characteristics and (c) output characteristics of short-channel TFTs ( $L = 9 \mu\text{m}$ ). Device mobility is 1.0 cm<sup>2</sup>/Vs, and SS value is 84 mV/dec.

# 液晶性を用いた超高速ブレードコートによる結晶薄膜の形成とそのトランジスタ特性評価

## Fabrication of crystalline thin films by very high-speed blade-coating using liquid crystallinity and their transistor characteristics

東工大未来研 °(M2)鈴木 一世, 半那 純一, 飯野 裕明

Tokyo Tech, °Issei Suzuki, Jun-ichi Hanna, Hiroaki Iino

E-mail: suzuki.i.ag@m.titech.ac.jp

有機半導体薄膜製膜において、ディップコート、ブレードコート、バーコートなどに代表されるメニスカス塗布法は、roll-to-roll プロセス可能な製膜方法として注目を集めている。一方で、非常に特性の良い単結晶製膜においては製膜速度が数十  $\mu\text{m/s}$  と非常に遅く、実用化のためには製膜速度の向上が課題である。製膜速度が数  $\text{mm/s}$  以上の Landau-Levich 領域では全面に液膜が形成後、溶媒が揮発し結晶薄膜が得られる<sup>1</sup>。溶媒揮発時における結晶核生成を制御できないため、結晶性の高い低分子材料は結晶化の際、不均一な結晶薄膜を形成し、素子の動作不良や特性のばらつきに繋がる。我々はこれまで、平坦な液晶薄膜を前駆状態とすることで溶液プロセスでも均一な多結晶薄膜形成を報告してきた<sup>2</sup>。液晶性有機半導体 Ph-BTBT-10 (Fig. 1)は液晶相の中でも秩序性の高いスメクチック E 相を発現し、液晶相を経由してスピコートすることで均一な多結晶薄膜が形成される<sup>3</sup>。

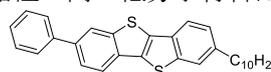


Fig. 1 Chemical structure of Ph-BTBT-10.

本研究では Ph-BTBT-10 を超高速(140mm/s)のブレードコート法で製膜して多結晶薄膜を形成し、有機薄膜トランジスタ(OTFT)を作製した。製膜温度を変化させて Ph-BTBT-10 多結晶薄膜を結晶相温度と液晶相温度で製膜し、高速ブレードコートにおける液晶性の効果を検討した。OTFT は 300nm 熱酸化膜付き Si ウェハおよび Au 電極を PFBT 処理して用いたボトムゲートボトムコンタクト型で作製した。活性層製膜には Ph-BTBT-10:polystyrene = 5:1(重量比)の 0.5wt% p-xylene 溶液を用いた。Ph-BTBT-10 の p-xylene に対する室温(30°C)での溶解度が低いため室温で製膜する際には過飽和溶液を用いた。溶液、ブレード、基板は各製膜温度に加熱した。

Fig. 2 挿入図に示す顕微鏡観察から 30°C製膜では不均一な膜形態が確認された一方、80°C製膜では均一な結晶薄膜が形成された。Ph-BTBT-10 は 30°Cでは結晶相を示す。そのため他の非液晶材料と同様、室温での高速製膜においては分子がランダムに凝集した。冷却過程の DSC から 80°C製膜は液晶状態を経由していると考えられる<sup>3</sup>。また偏光顕微鏡像からは等方的な粒界が観察された。蒸発領域における結晶成長とは異なり、Landau-Levich 領域では結晶核生成がランダムに生じ、塗工方向に対して依存性の無い結晶粒界が形成された。結晶粒界によって移動度が低下するため、異方性がある場合、OTFT 集積化時に素子を移動度が高い方向に並べる必要がある。本研究で得られた塗工方向に依らない結晶薄膜は等方的な素子特性が得られるため、集積回路設計を制限しない。Fig. 2 に典型的 10 素子の飽和伝達特性 ( $V_{ds} = -5\text{V}$ )を示す。30°C製膜の場合は不均一な膜形態により移動度が低くばらつきが大きかったが、液晶性を利用した 80°C製膜の場合は  $4.9 \pm 0.32 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  で変動係数 6.5%と、高くばらつきの少ない特性を示した。

ブレードコート塗布法において液晶性を活用することで、工業化で求められる超高速製膜(100mm/s 以上)においても、特性のばらつきが少ない高移動度トランジスタが実現できており、ブレードコート法を用いた有機トランジスタの工業化において液晶性の利用が非常に重要であると結論づけられる。

1. M. Le Berre, Y. Chen and D. Baigl *Langmuir* **25** 2554 (2009).

2. H. Iino and J. Hanna *Adv. Mat.* **23** 1748 (2011).

3. H. Iino, T. Usui and J. Hanna *Nat. Commun.* **6** 6828 (2015).

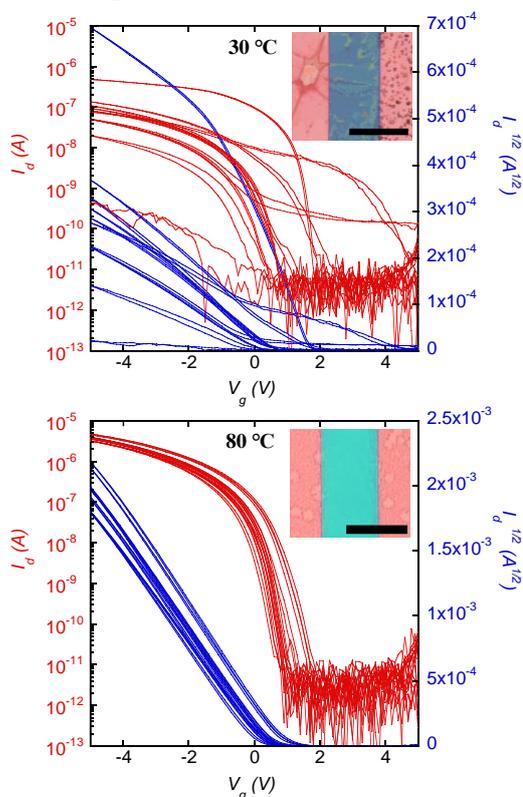


Fig. 2 Transfer characteristics of 10 typical OTFTs fabricated by blade-coating at 30 °C (crystal phase) and 80 °C (liquid crystal phase). The insets show optical microscopy images of Ph-BTBT-10 polycrystalline thin film fabricated by blade-coating at each temperature. Coating direction is left to right. Scale bar: 100  $\mu\text{m}$

## High-k 絶縁膜によるチャンネル層のキャリア蓄積能力の改善

### Improvement of carrier accumulation capability in the channel layer using high-k insulating films

東京農工大学大学院○富士谷大生、後藤直樹、岩崎好孝、上野智雄、並木美太郎

Tokyo univ. of Agri & Tech. ○Taiki Fujitani, Naoki Goto, Yoshitaka Iwazaki, Tomo Ueno, Mitarou Namiki

E-Mail : s247685w@st.go.tuat.ac.jp

#### 1. 研究背景・目的

近年、有機半導体材料は軽量、可溶性、柔軟性などの優れた特性から、次世代のエレクトロニクス材料として注目を集めている。中でも有機薄膜トランジスタ(OTFT)は、印刷プロセスによる大面積で低コストな回路の作製や、フレキシブル基板上への形成が可能であることから、ディスプレイ、センサ、RFIDタグなど幅広い応用が期待されている。しかしながら、OTFTには駆動電圧が高く、移動度が一般的に用いられる無機材料に比べて非常に低いという欠点がある。過去の研究において、我々は、アニール処理を用いて OTFT の性能改善を試みた。その結果、デバイス作成後に窒素雰囲気下で 100°C、30 分のアニール処理を施した OTFT では、ペンタセン薄膜の電気伝導性が向上し、ドレイン-ソース間電流が増大する一方、相対的にリーク電流はほとんど無視できるレベルに抑えられることがわかった。さらに、ドレイン-ソース電流がアニール処理前後で約 3 桁増大したことから、アニール処理に伴うチャンネル部分へのキャリア蓄積量の増大が OTFT の特性改善に、極めて有効であると結論付けた。そこで、アニール処理に加え、ゲート絶縁膜をこれまでの SiO<sub>2</sub> から高誘電率の high-k 材料である HfO<sub>2</sub> に変更することで、有機半導体層と絶縁体界面のキャリア蓄積量を増大させ、OTFT のさらなる性能向上を図れると考えた。本研究では、キャリアの蓄積を確認するため、OTFT の前段階として MOS 構造を作製する。アニール処理による垂直方向の改善に加え、高誘電率の HfO<sub>2</sub> を用いることで、ゲート容量の増加と動作電圧の低減がより期待できる。これにより、アニール処理により改善された有機半導体の移動度を最大限に引き出し、高性能な OTFT を実現する。

#### 2. 実験方法

本研究では、HfO<sub>2</sub> 絶縁膜と SiO<sub>2</sub> 絶縁膜を用いた 2 種類の MOS を作製し、それらの電気特性を比較する。まず、MOS の作製手順は以下の通りである。n<sup>+</sup>-Si 基板を洗浄した後、スパッタリング法を用いて Hf ターゲットから HfO<sub>2</sub> 絶縁膜を成膜したもの(膜厚 17 nm)と、SiO<sub>2</sub> 絶縁膜(膜厚 17 nm)を用いたものを作成する。次に、真空蒸着法により下部ゲート電極として Al を蒸着し、その上に膜厚 10 nm のペンタセン薄膜を形成する。最後に、上部の電極として Au を蒸着する。作製したのち、それぞれの C-V 特性を比較しキャリアの蓄積を確認する。

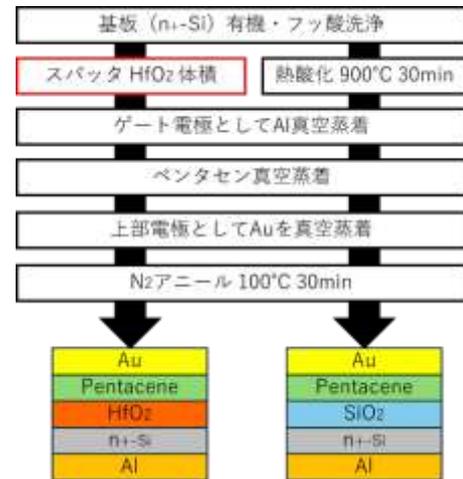


Fig.1 Methods for creating MOS transistors

#### 3. 実験結果

C-V 測定の結果から、SiO<sub>2</sub> 絶縁膜が HfO<sub>2</sub> 絶縁膜を用いた MOS よりも最大容量値が大きくなる結果となった。原理上、HfO<sub>2</sub> の比誘電率は SiO<sub>2</sub> の約 5 倍程度であるため、 $C = \epsilon \cdot S/d$  の関係式に従えば、同じ膜厚であれば HfO<sub>2</sub> 絶縁膜の方が容量が大きくなると予測していたが、反する結果となった。この原因としては、まず、スパッタリング法による HfO<sub>2</sub> 絶縁膜の成膜条件に問題があり、目標とする膜厚よりも実際の膜厚  $d$  が大きくなってしまった可能性がある。膜厚が大きくなると、容量値は減少するため、SiO<sub>2</sub> 絶縁膜を用いた素子よりも容量値が小さくなる。また、C-V 測定のグラフを詳細に観察すると、HfO<sub>2</sub> 絶縁膜を用いた素子の容量値は、測定電圧の範囲内では飽和に達していないことから、HfO<sub>2</sub> の成膜条件をさらに改善していく必要がある。

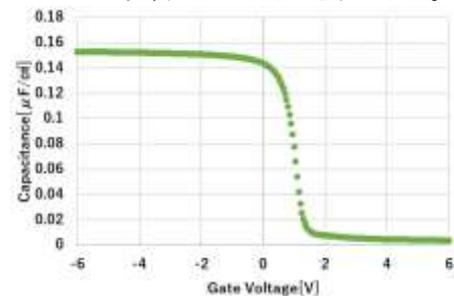


Fig.2 C-V of MOS using SiO<sub>2</sub> insulating films

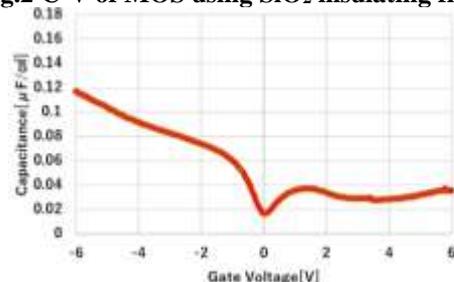


Fig.3 C-V of MOS using HfO<sub>2</sub> insulating films

## ナノメッシュ基板上に作製した有機フォトトランジスタ

### Organic Phototransistor on the Nanomesh substrate

東大院工<sup>1</sup> ◦青木 悠登<sup>1</sup>, 奥田 知華<sup>1</sup>, 李 成薫<sup>1</sup>, 染谷 隆夫<sup>1</sup>, 横田 知之<sup>1</sup>

Univ. of Tokyo<sup>1</sup>, ◦Yuto Aoki<sup>1</sup>, Chika Okuda<sup>1</sup>, Sunghoon Lee<sup>1</sup>, Takao Someya<sup>1</sup>, Tomoyuki Yokota<sup>1</sup>

E-mail: aoki@ntech.t.u-tokyo.ac.jp

皮膚貼り付け型デバイスを用いて生体信号を長期間測定するうえで、デバイス自体に通気性を持たせることが重要である。これは、皮膚貼り付け型デバイスに通気性がないことで、汗腺を塞いでしまい炎症を引き起こしてしまうためである<sup>[1]</sup>。また、光を用いたセンシングは非侵襲で生体内の情報を計測でき、脈波や血中酸素濃度といった生体信号の検出に広く用いられている<sup>[2]</sup>。そのため、通気性を持つ光検出器の開発は生体信号の長期計測を行う上で重要であると考えられる。本研究では、生体適合性の高い高分子材料であるポリウレタンのナノメッシュ基板上に有機フォトトランジスタを作製し<sup>[3]</sup>、その光応答性について評価した。

まず、電界紡糸法によりポリウレタンナノメッシュ基板を形成し、150°Cのヒートプレス処理と化学気相成長によるパリレンの堆積を行った。次に、真空蒸着を用いてゲート電極として金を100 nm、化学気相成長を用いてゲート絶縁膜としてパリレンを300 nm成膜した。その後、有機半導体層としてdinaphthothienothiophene (DNNT)を30 nm、ソースドレイン電極として金を100 nmそれぞれ真空蒸着にて成膜した。Fig 1 に作製した有機フォトトランジスタのデバイス構造と電気特性を示す。作製した有機フォトトランジスタは、白色光を照射した際に約1.8 Vの閾値電圧のシフトが確認され、光応答性を示すことが確認できた。

【謝辞】本研究はJSPS 科研費 JP23H00173 の助成を受けたものです。

[1] Yokota, T et al. (2016) Science Advance 2, e1501856.

[2] Miyamoto, A et al. (2017) Nature Nanotech 12, 907–913.

[3] Gwon, G et al. (2022) Advanced Functional Materials, 32(35).

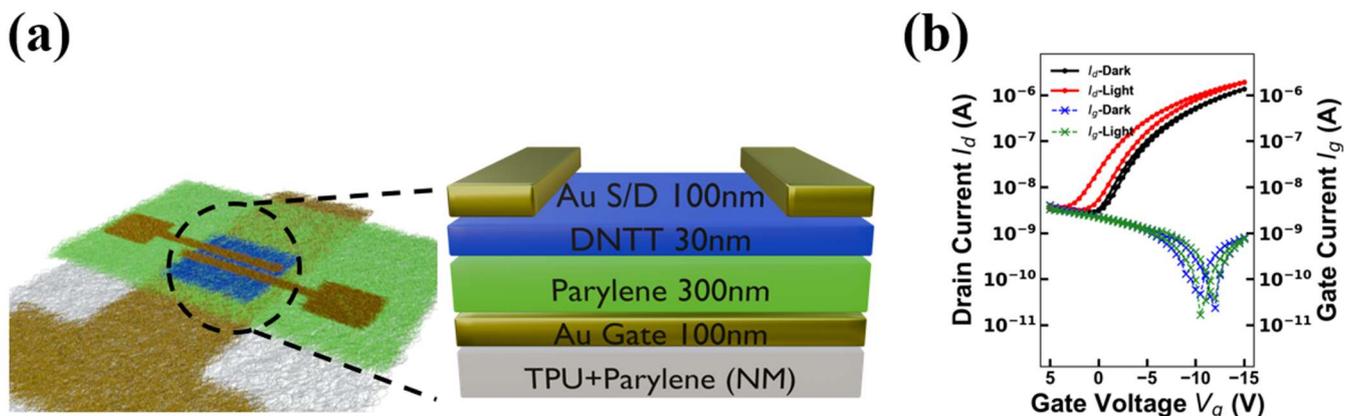


Fig 1 (a)Schematic illustration of the Nanomesh device. (b) I-V Characteristics of the device

## アンチ・アンバイポーラトランジスタを用いた ニューロモルフィック素子の開発

Development of neuromorphic devices with antiambipolar transistors

物材機構<sup>1</sup>, 筑波大<sup>2</sup> ○山本 勇帆<sup>1,2</sup>, 早川 竜馬<sup>1</sup>, 山田 洋一<sup>2</sup>, 若山 裕<sup>1</sup>

NIMS<sup>1</sup>, Univ. Tsukuba<sup>2</sup> ○Yuhō Yamamoto<sup>1,2</sup>, Ryoma Hayakawa<sup>1</sup>, Yoichi Yamada<sup>2</sup>, Yutaka Wakayama<sup>1</sup>

E-mail: YAMAMOTO.Yuuho@nims.go.jp

**【はじめに】** アンチ・アンバイポーラトランジスタ (AAT) は、PN 接合型トランジスタの一種で、ゲート電圧の増加に対してドレイン電流が増加から減少に転じる  $\Lambda$  型の伝導特性を示す<sup>[1]</sup>。この特異な伝導特性を活用して、これまで多値論理回路や再構成可能な 2 入力論理回路、多値ロジック・イン・メモリなどの有機エレクトロニクスの新分野を開拓してきた<sup>[1,2,3]</sup>。本研究ではこれらの研究をさらに発展させてニューロモルフィック素子動作を目指した。AAT に不揮発性メモリ効果を組み合わせ、様々なパルス電圧を印加して電流の増減を制御した。特に AAT 固有の現象である  $\Lambda$  型の伝導特性に由来して同一信号であっても多様なシナプス応答が再現できることを実証したので報告する。

**【実験および結果】** フローティングゲート型 AAT (FG-AAT) の素子構造を Fig. (a) に示す。SiO<sub>2</sub>/Si 基板の上にボトムゲート電極として Au (30 nm)/Cr (5nm) を真空蒸着し、ゲート絶縁膜として HfO<sub>2</sub> (40 nm) を原子層堆積法により成膜した。続いて FG 層として Au (10 nm)/Cr (5nm) を形成し、トンネル絶縁膜として HfO<sub>2</sub> (10 nm) を成膜した。表面コーティング層にはポリスチレン (PS) を用い、スピコート法により 10 nm 形成した。その後 p 型半導体として C8-BTBT (16 nm)、n 型半導体として PhC2-BQQDI (8 nm) を真空蒸着した。最後にソース、ドレイン電極として Au (30 nm) を成膜し、FG-AAT を作製した。

Fig. (b) に AAT の  $I_D$ - $V_G$  特性を示す。FG に電荷が保持されていない初期状態 (黒線) では、ゲート電圧 ( $V_G$ ) 1.8 V にピーク ( $V_{peak}$ ) を持つ  $\Lambda$  型のドレイン電流が観測された。次に正のパルス電圧 ( $V_G = 5$  V, width = 10 s) を印加すると、FG に電子が蓄積するため、 $V_{peak}$  は 1.8 V から 2.8 V へ増加した (青線)。一方、負のパルス電圧 ( $V_G = -5$  V, width = 10 s) では、ホールが FG に蓄積されるため、 $V_{peak}$  は 0.7 V へ減少し (赤線)、全体として 2.1 V に至る  $V_{peak}$  制御を実現した。この特徴を活かし、ニューロモルフィック素子へ応用した。負のパルス電圧 ( $V_G = -5$  V, width = 100 ms) を印加するとドレイン電流は増加し、シナプス増強を示したが、さらに負のパルス電圧を印加し続けると、ドレイン電流は増加から減少に転じ、シナプス抑制を示した (Fig. (c))。通常、このようなシナプス可塑性を示すにはパルス電圧の極性を反転する必要があるが、AAT では  $\Lambda$  型特性を示すため同一のパルス電圧で実現できる。この結果は、FG の荷電状態により、同一信号であっても多様なシナプス応答を再現できるため、より実際のニューロンに近い素子の開発に繋がる成果である。

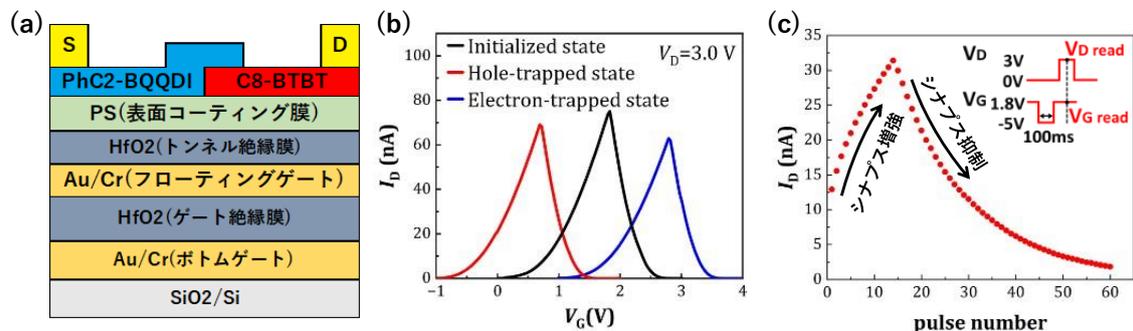


Fig. (a) Device structure of FG-AAT. (b)  $I_D$ - $V_G$  curves of the transistor after applying different  $V_G$  pulses, where  $V_D$  was fixed at 3.0 V. (c) Synaptic potentiation and depression characteristic in the FG-AAT. Here,  $I_D$  was detected at  $V_{G, read}$  of 1.8 V and  $V_{D, read}$  of 3.0 V after applying negative  $V_G$  pulses (-5 V, 100 ms).

**【参考文献】** [1] K. Kobashi *et al.*, *Adv. Electron. Mater.* 3, 1700106 (2017). [2] R. Hayakawa *et al.* *Adv. Mater.* 34,15, 2109491 (2022). [3] R. Hayakawa *et al.*, *Nano Lett.* 23, 8339-8347 (2023).