

論文内容要旨（和文）

平成26年度入学 大学院博士後期課程

有機材料工学専攻 有機デバイス分野

氏名 竹田 泰典



論文題目 Study of Complementary Integrated Circuits based on Printed Organic Thin-Film Transistors
(印刷型有機薄膜トランジスタの相補型集積回路応用に関する研究)

プリンテッドエレクトロニクスは、従来、写真やポスター、新聞など、紙やフィルムなどの媒体へ出力する為に用いられてきた印刷の技術を、電子回路の電極、配線の形成、電子デバイス製造へ応用するものである。印刷技術を用いて電極を形成する場合、導電性インクなどを必要な部分に必要な量を印刷し、必要に応じて熱処理をするという短いプロセス時間で電極を形成することができ、さらにアディティブなプロセスであり、材料の利用効率が非常に高いという利点がある。また、金属薄膜形成に真空装置を用いないことから、装置の大型化が容易であり電子デバイスの大面積化・大量生産が可能である。これらの特徴により、印刷技術を用いた高速・低コストな電子デバイス製造プロセスの構築が期待され、国内外を含め盛んに研究が行われている。しかし、印刷法で作製された有機薄膜トランジスタを用いた実デバイスはまだ製品化されていない。

また、有機薄膜トランジスタは一般的にp型半導体において高性能な特性が多く報告されているが、実用的な集積回路の実現には、その低消費電力性と集積度の観点からp型とn型を組み合わせた相補型集積回路が必須である。しかし、塗布形成が可能なn型半導体の報告は殆どされていない。

有機薄膜トランジスタを用いた電子回路を含めた有機エレクトロニクスの一つの応用先として、その柔軟性を活かした肌や衣服に貼ることを想定したウェアラブルデバイスへの応用が期待されている。そのため、有機トランジスタ、有機太陽電池などを1μm程度の超薄膜基板上へ作製した報告がされているが、有機集積回路を超薄膜基板上へ応用した報告はない。

そこで本論文では、印刷法を用いた有機薄膜トランジスタの製造プロセスの開発と、新規に開発された塗布形成が可能なn型有機半導体を用いた有機薄膜トランジスタの作製と特性向上、相補型有機集積回路応用を目的として研究を行った。

第一章 序論

有機薄膜トランジスタについての一般的な説明と塗布型有機薄膜トランジスタの現状を述べたあとに、その応用である集積回路の現状とその課題について述べる。続いて、有機トランジスタの駆動の基礎的な原理と、デバイス試作に用いた装置について述べる。

第二章 インクジェット印刷電極を用いた全塗布型有機擬CMOS回路

有機薄膜トランジスタを構成するソース・ドレイン電極、ゲート電極をインクジェット印刷法で形成し、絶縁膜はスピンドルコート法により形成することで、全ての工程を印刷または塗布法で形成したデバイスの作製プロセス及び特性の評価結果について述べる。銀ナノ粒子インクの印刷条件、溶媒の違いにより、液滴の濡れ広がる範囲やコーヒーリング効果の発現の仕方が異なることを示す。全て塗布法で作製した有機薄膜トランジスタは、20 Vで駆動したときに $0.03 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の移動度を示し、それを4

個集積した擬CMOSインバータ回路、NANDとNOR回路を作製したところ、良好な特性を得ることに成功した。

第三章 全塗布型擬CMOSフリップフロップ回路

前章で、全ての工程に塗布法を用いて、擬CMOSインバータ回路やNAND回路が作製可能であることを示した。本章では、一つのトランジスタを分割された複数のトランジスタで構成することで、半導体の結晶性のばらつきによる特性のばらつきを抑え、フリップフロップ回路が実現できることを示す。6個のトランジスタに分割して構成したトランジスタのばらつきは、1個のトランジスタのばらつきと比較すると標準偏差で0.14から0.06に低減した。これは、有機薄膜トランジスタで集積回路を構成するための有効な手法である。

第四章 印刷型有機薄膜トランジスタを用いた相補型集積回路と超薄膜基板上への応用

塗布法で形成できるp型/n型有機半導体を利用して、相補型集積回路を試作した。ガラス基板上に剥離層を形成し、 $1\text{ }\mu\text{m}$ 厚のパリレンを成膜することで超薄膜基板とした。この基板上にボトムコンタクト・トップゲート構造のn型OTFTを構成し、その上に積層する形でゲート電極層を共通として、ボトムゲート・ボトムコンタクト構造のp型OTFTを構成した。絶縁膜の形成以外は塗布法を用いた。この積層型構造をとることでp型、n型OTFTにおいても良好な電気的特性を実現できることを示し、低電圧で駆動するD-フリップフロップ回路へ応用した。

第五章 凸版反転印刷電極を用いた有機薄膜トランジスタと相補型インバータ回路

凸版反転印刷法は、他のスクリーン印刷やグラビア印刷法などに比べ微細な電極が形成できる。この凸版反転印刷で形成された電極を用いて、相補型集積回路を形成するためのプロセスを示す。積層構造を用いて作製した回路の特性は、 $L=50\text{ }\mu\text{m}$ においてp型/n型の両方で $0.2\text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の移動度を示し、インバータ回路も良好に駆動することを示した。

第六章 総括

本研究により得られた知見についてまとめた。

本論文では、印刷法を用いた有機薄膜トランジスタの作製プロセスの開発と、塗布型n型半導体を用いた有機相補型集積回路への応用を行い、超薄膜基板上の高性能な集積回路を実現した。本成果により、印刷法を用いた有機相補型集積回路の実現にむけた研究開発が加速されると期待できる。

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成29年2月3日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 時任 静士



副査 横山 道央



副査 廣瀬 文彦



副査 森 秀晴



副査 _____



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論文申請者	有機材料工学 専攻 有機デバイス 分野 氏名 竹田 泰典		
論文題目	Study of Complementary Integrated Circuits based on Printed Organic Thin-Film Transistors (印刷型有機薄膜トランジスタの相補型集積回路応用に関する研究)		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	平成29年1月27日～ 平成29年2月1日
論文公聴会	平成29年2月1日	場所	工学部11号館未来ホール(11-201)
最終試験結果	合格	最終試験年月日	平成29年2月1日

学位論文の審査結果の要旨(1,000字程度)

本論文は、印刷型有機薄膜トランジスタ(OTFT)の相補型集積回路応用に関して、印刷法によるOTFTの作製プロセス開発と集積回路応用を実現したもので、計6章から構成されている。その概容と審査結果について下記に示す。

第1章では、研究背景と本論文の目的・構成を記載している。OTFTの学術的背景や、電子デバイスの印刷法による作製(プリンテッドエレクトロニクス)の概要について述べている。また、印刷法による有機集積回路作製の研究課題を整理している。

第2章では、印刷法と塗布法により全ての作製工程を行うためのプロセス開発を行い、小規模な集積回路を実現することで、印刷法による集積回路作製の実現可能性を評価している。

第3章では、低分子半導体を用いた場合のOTFT特性のばらつきの低減を行っている。OTFTを並列に複数個接続する構成を取ることで特性ばらつきの大幅な低減に成功したことを記述している。

第4章では、p型とn型OTFTを用いた相補型集積回路を印刷電極と印刷半導体を用いて実現している。さらに、柔軟な超薄膜基板上へ作製し、回路動作の確認や伸縮時の特性の変化を詳細に述べている。

第5章では、電子回路の集積化を進めるために、高解像度な印刷が実現可能である凸版反転印刷法に着目し、インクに適した印刷条件を最適化することで、短い電極間距離を有する平坦で薄い電極の作製に成功したことを述べている。また、この電極にp型とn型半導体を組み合わせた相補型集積回路を実現し、良好な特性を得たことを述べている。

第6章では、第2章から第5章までの研究内容を総括するとともに、本研究がプリンテッドエレクトロニクスにおける新たな学術領域の創生に寄与したことを述べ、本論文をまとめている。

以上のことから、本論文は工学における学術的探究と有機デバイスの実用化への貢献という観点から、博士(工学)の学位を授与するに十分であると判断された。また、本研究成果は、学術論文(2報掲載済み)と国際会議発表(3件)によってまとめられており、当該専攻の審査基準も満たしている。以上を総合的に判定し、研究成果および研究内容とともに工学的貢献が十分に認められたため合格と判定した。なお本論文は、研究倫理又は利益相反等に係る学内規則に基づく手続きは必要ありません。

最終試験の結果の要旨

最終試験は、45分の学位論文内容の口頭発表および15分の質疑応答により実施した。発表では、研究の背景・目的について述べ、その後具体的なデバイス構造や全ての工程を印刷法でOTFTを作製するためのアプローチについて説明し、OTFTの特性の改善方法、集積回路のおよび今後の展開について明確に説明がなされた。実際の質疑応答では、作製した集積回路の応用に対する性能や、研究者としての今後の研究展望について質問があった。これに対し申請者は適切かつ具体的に回答できた。その結果、博士(工学)として必要とされる専門知識および研究遂行能力を十分に備えているものと判断し、最終試験を合格とした。