

【学位論文内容の要旨】

Organic thin-film transistors (OTFTs) have attracted increasing interest for their potential advantages, such as, low cost, lightweight and possible fabricating on flexible substrate, as well as, large-area feasibility. For constructing a high performance top-contact OTFT, it is very important to understand the influence of interfaces, which play a crucial role in the overall performance of the device. Mainly, there are two kinds of interfaces in the OTFT. First is in between the semiconductor and the gate dielectric, where the conducting channel forms. The second one is in between the source/drain (S/D) electrodes and the semiconductor layer where charge carriers are injected.

First, I particularly discussed the latter interface. Organic and metal interfaces mostly limit the performance of the device and field effect mobility is also decreased. In earlier reports, it has been shown that the diffusion between the metal electrode and pentacene reduce the hole injection carrier at the interface which causes the increase in barrier height and contact resistance which effect the performance of the OTFTs. It is shown that the contact between the S/D electrodes and the organic semiconductor can be improved by inserting transition metal oxide layer as carrier injection layers. Because of good electronic properties, transition metal oxides such as molybdenum oxide (MoO_3), tungsten oxide (WO_3) and vanadium oxide (V_2O_5), and other oxides such as germanium oxide (GeO), titanium oxide (TiO_2) offer a unique opportunity to control the work function, and hence increase the charge-injection properties. Therefore, by modifying the organic/electrode interface, the S/D electrodes do not directly contact with pentacene layer and hence significantly reduces the contact resistance, barrier height and provides protection from diffusion and other chemical reactions, which

increase device performance.

Second, I investigated the enhancement of the charge injection and field effect mobility by inserting a thin (5 nm) MoO₃, GeO, WO₃ and TiO₂ interlayer between the Au electrode and pentacene layer in a top contact pentacene based organic thin-film transistor (OTFTs). In comparison with the pentacene-based OTFT with only-Au electrode, the device performance with bilayer electrode has been considerably improved. The device performance including field effect mobility, threshold voltage, and on/off ratio of all the device after modification was highly improved, and the highest mobility of 0.96 cm²/Vs, threshold voltage of -4 V, and highest on/off ratio of 5.2×10⁴ were achieved in the device with 5 nm GeO. I further investigated the temperature dependence of I_D-V_D characteristics which showed strong temperature dependence in all the devices.

Third, the obvious temperature dependence of I_D-V_D curves in all devices suggests that the charge injection characteristics can be fitted by the Schottky emission mechanism. By plotting the relationship between ln(I) vs V^{1/2} and extrapolating straight lines to the ordinal point, the current at zero voltage I₀ is determined. By using the values of I₀, the relationship between ln(I₀/T²) vs 1/T is plotted and from the resulting slope of extrapolated lines. While in case of bilayer MoO₃/Au shows 0.03 eV, WO₃/Au shows 0.05 eV, TiO₂/Au showed 0.04 eV and with only Au electrodes barrier height of 0.12 eV is achieved. The lowest barrier heights of 0.01 eV could be achieved in case of bilayer GeO/Au electrodes. It is assumed that the barrier height was dramatically reduced by inserting thin oxide layer between the Au and pentacene layer.

Similarly, from surface morphology of pentacene, the root mean square roughness is also decreased after inserting metal oxide layer. The main factor for the improvement in

the performance of the OTFTs with bilayer electrodes was explained in terms of the reduction in barrier height and smoothed surface roughness of active layer. Therefore, the combination of a thin oxide layer with Au as a bi-layer electrode is an effective way to improve the characteristics of OTFTs, which makes the device suitable for commercial applications.

Finally, I further reported the enhanced carrier injection in pentacene OTFTs with a thin MoO₃-doped pentacene layer between pentacene semiconductor and the S/D electrodes. Device performance including drain current, field effect mobility, and threshold voltage are improved by employing a MoO₃-doped pentacene thin layer. The barrier height at the Au/pentacene interface is lowered from 0.12 to 0.05 eV after inserting a MoO₃-doped pentacene thin layer between them.

In summary, I have studied bi-layer S/D contact of metal oxide/ electrode structure by applying OTFT. Obtained barrier height is as small as 0.01 eV for GeO/ Au structure, which value is lower than that of conventional MoO₃/Au structure of 0.03 eV. Therefore, GeO/Au bi-layer electrode structure is promising for other kinds of electrodes structure. In addition, effectiveness of doped pentacene with MoO₃ is designated. These device structures are promising for OTFT application and exhibited best performance reported to date. Therefore, it is considered that this doctoral thesis is suitable for receiving *Doctor of Philosophy*.

【論文審査の結果の要旨】

有機薄膜トランジスタ(OTFTs)は、低コスト、軽量、そしてフレキシブル基板上への作製と大面積化可能な性質から興味を持たれている。高性能トップコンタクトのOTFTを実現するには、デバイス性能全体を左右する界面の影響を理解することが大切である。OTFTでは、主に二つの重要な界面が有る。第1は、ゲート絶縁膜/半導体界面で、これによりチャネルを形成する。第2は有機半導体/金属界面で、これによりキャリアが注入される。

第1に、有機半導体/金属界面について議論した。有機/金属界面はデバイス性能を最も制限し、電界効果移動度も低減される。初期の報告では、金属電極とペンタセンの相互拡散が、OTFTのバリアハイトとコンタクト抵抗を増加させ、界面でのホール注入を減少させることが示された。ソース/ドレイン(S/D)電極と有機半導体の間のコンタクトが、キャリア注入層として遷移金属酸化物を挿入することで低減されることが示された。遷移金属酸化物である MoO_3 、 WO_3 、 V_2O_5 や他の酸化物である GeO や、 TiO_2 等の良好な電気的特性で仕事関数が制御され、その結果として電荷注入特性が改善される。それゆえ、有機/電極界面を改良することで、S/D電極が直接ペンタセン層に接触しなくなり、コンタクト抵抗、バリアハイト、そしてデバイス性能を向上させる拡散や他の化学的反応を防ぐことが可能となる。

第2に、トップコンタクトのペンタセンOTFTを用い、薄い(5 nm)の MoO_3 、 GeO 、 WO_3 、そして TiO_2 界面層をAuとペンタセン間に挿入した際の電荷注入特性の改善と電界移動度の評価を行った。Auのみの電極を持つペンタセンOTFTと比較して、二層構造電極を持つデバイスの性能は大きく改善された。界面層挿入後の電界効果移動度、しきい電圧、オンオフ比の全てのデバイス性能は高く改善され、5nmの GeO を用いることで最高移動度 $0.96 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 、しきい電圧-4 V、

そして最高のオンオフ比 5.2×10^4 が達成された。また、全てのデバイスの I_D-V_D 特性の温度依存性測定で、強い温度依存性が確認された。

第3に、全てのデバイスの I_D-V_D 特性の温度依存性より示唆されるショットキー放出機構によるフィッティングを行った。 $\ln(I)$ と $V^{1/2}$ 特性で、電圧0Vへの外挿のプロットから、零Vでの電流 I_0 が決まる。この I_0 を用い、 $\ln I_0/T^2$ 対 $1/T$ 特性の関係をプロットし傾きを得る。二層構造の MoO_3/Au で0.03 eV、 WO_3/Au で0.05 eV、 TiO_2/Au で0.04 eVであるのに対し、そしてAu電極のみではバリアハイトが0.12 eVであった。最も低いバリアハイトとして、二層電極 GeO/Au で0.01 eVを得た。以上のように、Auとペンタセン層間に薄い酸化物層を挿入することで、バリアハイトが劇的に減少出来た。

同様に、ペンタセンの表面モフォロジーから、実効ラフネスは金属酸化物層の挿入により減少した。二層電極を持つOTFTの性能改善の主要因は、バリアハイトの減少と、活性層の表面ラフネスの減少によるものと説明された。それ故、薄い酸化物層とAuの二層構造の組合せは、OTFT特性の改善に有効な方法であり、これにより商業的応用の観点からデバイスを望ましく作製出来ると言える。

最後に、ペンタセンとS/D電極間に薄い MoO_3 ドーパのペンタセン層を持つペンタセンOTFTでのキャリア注入特性の改善について報告した。薄い MoO_3 ドーパのペンタセン薄層の挿入により、ドレイン電流、電界効果移動度、そしてしきい電圧を含むデバイス特性が改善された。Au/ペンタセン界面でのバリアハイトは、 MoO_3 ドーパのペンタセン挿入により、0.12eVから0.05eVへ低減された。

結論として、金属酸化物/電極の二層構造電極のコンタクトのOTFT応用について研究した。 GeO/Au 構造で得られたバリアハイトは0.01 eVと小さく、これは通常用いられている MoO_3/Au 電極の0.03 eVと比較して低かった。それ故、 GeO/Au 二層構造は他の電極構造と比較して有望である。加えて、ペンタセンと

MoO₃がドーピングされたペンタセンの有効性を示した。これらのデバイス構造はOTFT応用で有望であり、報告されているなかでは最高の性能を示した。

それ故、本博士論文は博士号を得るのに相応しいものであると判断された。