

コーティングによる有機 TFT の作製

Fabrication of Organic Thin-Film Transistors Using Printing Method

中馬 隆

Takashi Chuman

要 旨 アクティブマトリクス駆動フラットパネルディスプレイに使用されている TFT (Thin Film Transistor) には、Si を主原料とした半導体が用いられている。一方では、近年有機化合物を半導体層に用いた有機 TFT の開発が国内外で盛んであり、特に印刷技術を用いて TFT を形成する技術開発が注目されている。本稿では、印刷を用いて有機 TFT を作製する技術を、発表事例を紹介しながら解説する。

Summary Silicon is widely used as a Semiconductor Material of TFT in Active Matrix Flat-Panel Display. On the other hand, Organic TFT using an Organic active layer has been developed actively in Japan and many other countries in recent years, and printing materials and processes for building Organic TFT attract special attention. In this report, I expound on the technology of Printable Organic TFT with some announced studies.

キーワード : アクティブマトリクス駆動, 有機 TFT, 印刷技術

1. はじめに

近年我々が身近に使用している携帯電話、薄型テレビ、パソコンのモニタ、PDA(Personal Digital Assistant)そして電子ペーパーなどには、液晶ディスプレイ (LCD:Liquid Crystal Display) や有機 EL (OLED:Organic Light-Emitting Diode) ディスプレイ、そして電気泳動型ディスプレイなどのアクティブマトリクス駆動型ディスプレイが使用されている。このアクティブマトリクス駆動に欠かせない素子が薄膜トランジスタ (TFT:Thin-Film Transistor) である。一般的に TFT とは、電界効果トランジスタ (FET:Field Effect Transistor) の一種であり、基本的には三端子素子である。現在の TFT はそのほとんどがシリコン (Si:silicon) 半導体を原材料とした活性層を使用している。そして Si 系 TFT は Si の結晶状態によって特性が異なるため、それぞれに適した用途に用いられている。

一方で、活性層に炭素骨格を基本とした有機化合物を用いた有機 TFT の研究開発が、国内外で盛んに行われている。有機 TFT の特長として、Si 系 TFT と比べて柔らかい、低温プロセスが可能であるなどが挙げら

れるが、一番の特長は印刷によりその形成が可能である点である。それ故に大面積フレキシブルディスプレイを安価に作製することができると期待されている。

2. 有機 TFT

2.1 有機 TFT とは

現在ディスプレイなどに使用されている TFT のほとんどが、Si を原材料とした活性層を使用している。この Si 系 TFT は Si の結晶状態によって 2 種類に大別できる。アモルファス Si TFT (以下 a-Si TFT) と多結晶 Si TFT (以下 p-Si TFT) である。a-Si TFT はプロセス温度が 400°C 程度と比較的低いため安価なガラス基板を使用することができ、また大面積ディスプレイへの TFT 作製が容易であるという特長がある。しかしその移動度は 0.5 ~ 1cm²/Vs 程度と小さく、そのため TFT サイズが大きくなり、小型で高精細なディスプレイ用途には不向きである。一方 p-Si TFT はその処理温度により高温 p-Si TFT と低温 p-Si TFT の 2 つに区別される。高温 p-Si TFT は移動度が 100 ~ 200cm²/Vs と高い反面、プロセス温度が 900°C 以上と非常に高温

表1 各種 TFT の移動度, プロセス温度, 成膜装置

	移動度	プロセス温度	成膜装置
高温 p-Si TFT	100 ~ 200cm ² /Vs	>900℃	CVD 装置 熱アニール装置
低温 p-Si TFT	50 ~ 150cm ² /Vs	~ 500℃	CVD 装置 レーザーアニール装置
a-Si TFT	0.5 ~ 1cm ² /Vs	<400℃	CVD 装置
有機 TFT	~ 5cm ² /Vs	<200℃	真空蒸着装置, OVPD 装置 (低分子系材料) 印刷装置 (高分子系材料等)

であるため、耐熱性が高い石英基板が主に使用されている。この石英基板は高価であり、かつ大型化が非常に困難であるため、大面積に高温 p-Si を作製することは難しく、現在は小型用途に特化している。低温 p-Si TFT の移動度は 50 ~ 150cm²/Vs と高温 p-Si に比べて低いが、プロセス温度も 500℃程度と低い。そのため安価なガラス基板を使用することができ、比較的大面積への形成も可能である。現在、a-Si TFT は大画面液晶ディスプレイに、高温 p-Si TFT は液晶プロジェクタの心臓部に、低温 p-Si TFT は高精細液晶ディスプレイや有機 EL ディスプレイに主に使用されている。

一方、有機 TFT の移動度は p-Si TFT に比べて大きく劣るが、a-Si TFT と比べると同等以上である。従って、少なくとも a-Si TFT を使用しているアプリケーションであればそれと置き換えることが可能である。有機物を使用するメリットのひとつは、Si 系 TFT と異なり 200℃以下という非常に低いプロセス温度で作製が可能である点である。すなわち、耐熱性が低いプラスチックフィルム基板上に直接有機 TFT を形成することが可能である。また、Si 系 TFT はその作製に CVD(Chemical Vapor Deposition) などの真空プロセスが必須であるが、有機 TFT は材料によってはその特長を生かして印刷法で作製することが可能である点も大きなメリットのひとつである。表1に各種 TFT の

移動度, プロセス温度, 成膜装置をまとめる。

2.2 有機 TFT の構造

有機 TFT は主にゲート電極層、ゲート絶縁膜、ソース/ドレイン電極層、有機半導体層で構成されており、それらの配置によって構造が区別されている。一般に有機 TFT の構造はボトムゲート型構造とトップゲート型構造に大別され、ボトムゲート型はさらにトップコンタクト構造とボトムコンタクト構造に分類される。

2.2.1 トップコンタクト構造

トップコンタクト構造は作製が容易であり、有機半導体の直上にチャンネルを形成するためのソース/ドレイン電極が位置するため、安定した半導体特性を示す長所がある。しかしソース/ドレイン電極のパターニングには、有機半導体上でのフォトリソグラフィができないため、成膜エリアに開口部を設けたシャドウマスクが一般的に使われる。そのため、チャンネル長は 50μm 以上と大きくなる傾向にある。従って比較的高精細なディスプレイ用途の有機 TFT にはチャンネルサイズの点で不向きな構造である。代表的な構造例を図1に示す。

2.2.2 ボトムコンタクト構造

ボトムコンタクト構造は、ソース/ドレイン電極のパターニングにフォトリソグラフィ技術に代表される微細パターン形成技術を用いることができるため、有機 TFT 素子の微細化が可能であり高精細ディスプレ

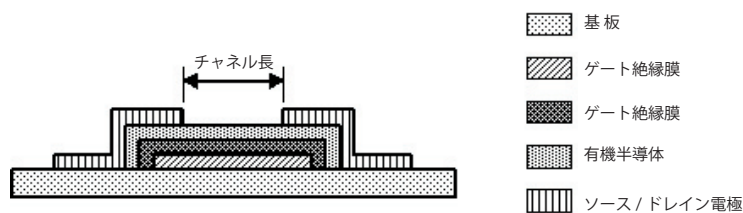


図1 トップコンタクト構造

イ用途に適している。

一般に飽和領域におけるドレイン電流 I_d は下記の式(1)に基づいて算出される。ここで、 W はチャンネル幅、 L はチャンネル長、 μ は移動度、 C はゲート絶縁膜の単位面積あたりの静電容量、 V_G はゲート・ソース間電圧、 V_T は閾値電圧を表す。

$$I_d = (1/2)(W/L) \mu \cdot C (V_G - V_T)^2 \quad (1)$$

従って、チャンネル幅と長の比 (W/L) が大きい程大きなドレイン電流が得られる。電流駆動型の有機 EL ディスプレイにおいては比較的大きなドレイン電流を必要とするため、チャンネル長を短くできるボトムコンタクト構造が有利である。代表的な構造例を図2に示す。

2.2.3 トップゲート構造

トップゲート構造とは、基板上にソース/ドレイン電極が形成され、有機半導体、ゲート絶縁膜を介して最表面にゲート電極が形成された構造のものをいう。一般には自己整合構造の低温 p-Si TFT として良く知られている構造である。こちらもソース/ドレイン電極のパターニングにフォトリソグラフィ技術に代表される微細パターン形成技術を使用することができる。一方で有機半導体層上にゲート絶縁膜、ゲート電極が配置されるため、それらの材料・形成プロセスには有機半導体層へダメージを与えない配慮が必要である。代表的な構造例を図3に示す。

3. コーティングによる有機 TFT の作製

3.1 有機 TFT 作製プロセス

有機 TFT を構成する要素である電極、ゲート絶縁

膜、有機半導体は、最近まで真空蒸着法やスパッタリング法、OVPD(Organic Vapor Phase Deposition) などの真空成膜装置を用いて成膜されることが多かった。一般に真空プロセスを用いる場合には、真空槽や排気ポンプを有することから装置自体が巨大となり、巨額の設備投資が必要である。また、材料の使用効率も悪い。しかし、これらの構成要素を全て印刷プロセスで形成することができれば材料の使用効率も上がり、また巨大な成膜装置が不要となる。また印刷であるため、大面積への対応も容易であるといえる。従って有機 TFT は Si 系 TFT と異なり、大面積かつフレキシブルなプラスチックフィルム基板上に、効率良く有機 TFT 回路を形成することが可能であるという非常に大きな利点を有しているといえる。そこで最近では印刷プロセスによる有機 TFT の開発が注目されてきており、材料や印刷プロセスの開発が盛んに行われている。

ボトムコンタクト構造の有機 TFT の作製プロセスを、真空プロセスと印刷プロセスとの比較で図4に示す。

3.2 印刷による有機 TFT の作製

有機 TFT の構成部材のうち有機半導体、ゲート絶縁膜、ソース/ドレイン電極に着目し、それらを印刷プロセスによって形成した報告例を以下にあげる。

3.2.1 有機半導体

有機 TFT に用いられる有機半導体材料は、低分子系材料(オリゴマー系材料含む)と高分子系材料の大きく2つに分類される。低分子系材料は主に真空蒸着やOVPDによって成膜されるが、P3HT: poly-(3-hexylthiophene), F8T2: poly(9,9-dioctylfluorene-co-bithiophene) などの高分子材料や、低分子系ではある

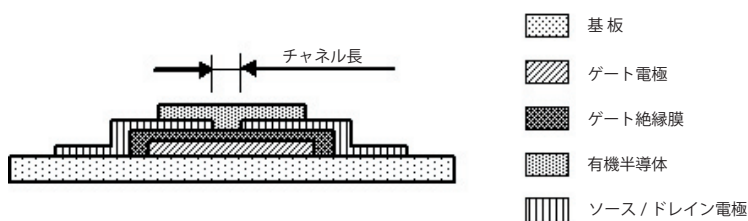


図2 ボトムコンタクト構造

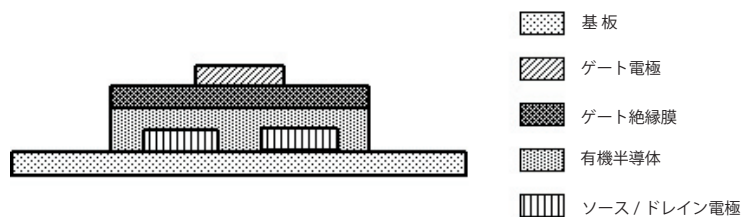


図3 トップゲート型

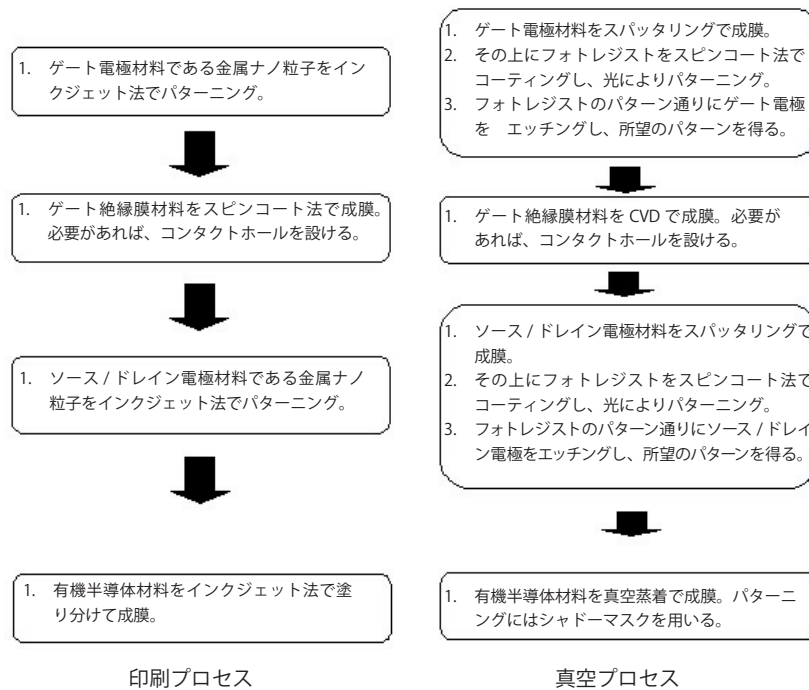


図4 ボトムコンタクト構造素子の作製プロセス印刷プロセスと真空プロセスの比較

もののその骨格に官能基を修飾させるなどして有機溶媒に可溶化したペンタセン^{(1),(2)}や、テトラベンゾポルフィリン⁽³⁾の前駆体は印刷による成膜が可能である。上述した材料はp型の半導体特性を示すが、それ以外にn型の半導体特性を示し、かつ有機溶媒に可溶な材料として、フラーレン(C60)にアルキル鎖を付けたC60MC12⁽⁴⁾がある。図5に代表的な有機半導体材料を示す。

有機半導体材料の印刷方法としては主にインクジェット法が提案されている。インクジェット法とは、インクの微細粒子をノズルより吐出してパターンを形成する印刷法である。インクジェット法のメリットは、基板に対して非接触であり、広面積に印刷できること、使用する材料の量を最小限に抑えることができること、基板への吐出位置精度が非常に良いこと、印刷速度が速いことなどが挙げられる。有機半導体材料を印刷で形成した発表例を以下に挙げる。

XEROXの子会社であるPalo Alto Research Centerは、XEROXのカナダ研究所と共同でポリチオフェンであるPQT-12: poly[5,5'-bis(3-dodecyl-2thienyl)-2,2'-bithiophene]をインクジェット法で形成したフレキシブル有機TFT回路基板を発表している⁽⁵⁾。彼らが開発した有機TFT回路基板の画素数は128×128であり、有機半導体だけでなくその他の部材も印刷法にて形成

していることが特長である。

またセイコーエプソンは有機半導体とゲート電極をインクジェット法により形成した有機TFT素子を開発し、この有機TFT素子を用いてフレキシブル電気泳動ディスプレイのアクティブマトリクス駆動デモを行った⁽⁶⁾。有機TFTの素子構造はトップゲート構造である。有機半導体にはF8T2: poly(9,9-dioctylfluorene-co-bithiophene)を使用し、ゲート電極は銀(Ag)のナノ粒子を用いている。その他ゲート絶縁膜やソース/ドレイン電極も真空プロセスを使用せず、塗布プロセスのみで有機TFTを構成している。

3.2.2 ゲート絶縁膜

ゲート絶縁膜もいくつかの塗布型材料が報告されてきたが、それらは主にスピコート法にて形成されたものである。

ポリイミド(Polyimide)をゲート絶縁膜に用いた有機TFTの開発が東京大学を中心に進められている。通常ポリイミド(Polyimide)を硬化させるためには300℃以上の熱が必要であるが、このポリイミド(Polyimide)は180℃という低温で硬化するため、フレキシブル基板上に成膜することが可能である。彼らはこのポリイミドを使用した有機TFTを、圧力センサー⁽⁸⁾、フレキシブルスキャナー⁽⁹⁾、点字シート⁽¹⁰⁾などさまざまなアプリケーションに応用しようと試み

ている。また、このポリイミドをインクジェット法にて成膜する試みも報告されている⁽¹¹⁾。

PVP: Poly(4-vinylphenol) に架橋材料と OTS を混入したゲート絶縁膜がソニーで検討されている⁽¹²⁾。彼らはこのゲート絶縁膜材料を使用した有機 TFT 回路をプラスチックフィルム上に試作し、2.5 インチ QQVGA のフルカラー有機 EL パネルの駆動デモを行った。ゲート絶縁膜の成膜にはスピコート法を用いている。有機半導体にはペンタセンを使用し、真空蒸着で成膜した。試作した有機 EL パネルは多少の欠陥はあるものの、湾曲させても良好な画像を表示できている。

3.2.3 ゲート電極およびソース/ドレイン電極

電極を印刷で形成した報告はまだ少ないが、インクジェット法により直接基板の上に電極を配置していく電極形成方法が報告されている。

リコーは PEDOT/PSS を電極材料として用い、それ

をインクジェット法で塗布することでソース/ドレイン電極を形成した⁽¹³⁾。ゲート絶縁膜には塗布可能な材料であるポリイミド (Polyimide) を使用し、その表面に紫外線照射による高表面エネルギー部を設けることで微細なパターンニングを行い、5 μm のチャンネル長を実現することができた。

4. まとめ

現在のアクティブマトリクス駆動ディスプレイを支えている Si 系 TFT に変わってその地位を得るために、有機 TFT は大きな利点を有する必要がある。その利点とは低温プロセスであり、印刷による TFT 素子形成である。それらを最大限生かすための各種材料および印刷プロセスの開発を急がなくてはならない。ディスプレイの駆動素子用途の場合、アプリケーションにもよるが、数千~数百万個の有機 TFT が一枚の

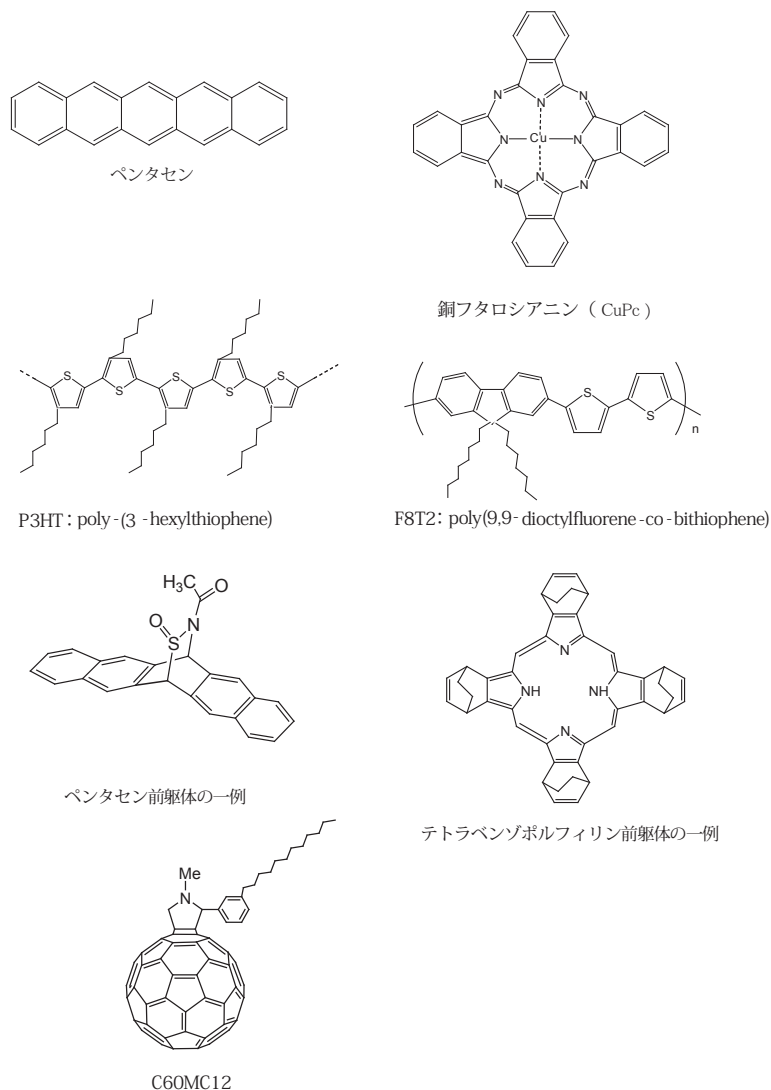


図5 各種有機半導体材料

基板内に組み込まれる。そのすべての有機 TFT において、ばらつきが少なく安定した動作を保障し、かつ TFT の駆動寿命もディスプレイ用途としての基準を満足するものを開発しなければならない。解決しなければならない課題は多いが、高い目的意識を持って開発に取り組んでいく必要がある。

参 考 文 献

- (1) H. E. A. Huitema et al., IDW 03 DIGEST, pp. 1663, (2003)
- (2) A. Afzali et al., J. Am. Chem. Soc., 124, 8812, (2002)
- (3) S. Aramaki et al., Appl. Phys. Lett., 84, 2085, (2004)
- (4) M. Chikamatsu et al., Appl. Phys. Lett., 87, 203504, (2005)
- (5) J. H. Daniel et al., SID 05 DIGEST, pp. 1630, (2005)
- (6) T. Kawase et al., Jpn. J. Appl. Phys., Vol.44, No.6A, pp. 3649, (2005)
- (7) Jung Hun Lee et al., IDW 03 DIGEST, pp. 383, (2003)
- (8) T. Someya et al., ISSCC Dig. Of Tech. Papers, pp. 288, (2004)
- (9) H. Kawaguchi et al., ISSCC Dig. Of Tech. Papers, pp. 580, (2005)
- (10) Y. Kato et al., IEDM Tech. Dig., pp. 276, (2006)
- (11) 野口, 他: 第 66 回応用物理学会学術講演会, 9a-N-9, p.1160, (2005)
- (12) I. Yagi et al., SID 07 DIGEST, pp.1753, (2007)
- (13) 田野, 他: Ricoh Technical Report No.30, p 51, (2004)

筆 者 紹 介

中 馬 隆 (ちゅうまん たかし)

技術開発本部 総合研究所 デバイス研究センター 表示デバイス研究部。主な経歴: 有機系色素を用いた追記型光ディスク, 電子放出素子の研究開発, 有機 EL を用いた 3D ディスプレイの研究を経て, 現在, 有機 TFT の開発に従事。