

1. 学位申請者： Safizan Binti Shaari

2. 論文題目： STUDY ON THE PHYSICAL AND ELECTRICAL PROPERTIES OF VARIOUS DIELECTRIC INTERFACIAL LAYERS AND EVALUATION OF DEVICE PHYSICS IN ORGANIC THIN FILM TRANSISTORS
(有機薄膜トランジスタにおける種々の絶縁性界面層を持つデバイスの物理及び電気的性質とデバイス物理の評価に関する研究)

3. 学位論文の要約
(英文)

Organic thin film transistors (OTFTs) have been widely studied for large-area applications, including paper-based organic electronics, active-matrix displays, and radio frequency identification (RFID) due to their attractive advantages, such as low cost, light-weight and reasonable performance potential. However, there are still an issues in OTFTs need to improve the performance of the devices, particularly to achieve high carrier mobility, high on/off current ratio and zero threshold voltage. Most of the performances of OTFTs are critically related to inorganic/organic interfaces in OTFTs. There are two important interfaces in OTFTs which are the semiconductor/dielectric and semiconductor/electrodes interfaces. Therefore, in this study, we investigate physical and electrical properties of organic semiconductor/dielectric interface by inserting various interfacial layers, and temperature dependence characteristics of organic semiconductor/electrodes interface by inserting MoO₃.

In first part of the thesis, we discussed on the effect of various interfacial layers on pentacene, 2, 7-dioctyl[1]benzothieno [3,2-b][1]benzothiophene (C8-BTBT), and dinaphtho[2,3-b:2',3'-d] thiophene (C6-DNT-V) based organic thin film transistors. The interfacial layers used in this study were polymer materials, polyimides, self-assembled monolayers (SAMs), and high-k inorganic insulators. Physical and electrical properties of each device have been investigated. Characterization techniques, such as, contact angle measurement, X-ray diffraction (XRD), atomic force microscopy (AFM), and electrical measurement are used in this study to find out the influence of these interfacial layers on silicon dioxide surface, and organic crystal growth. Physical properties such as water contact angle of dielectric surface increases after coating on SiO₂ with various interfacial layers, indicating surfaces became highly hydrophobic. A more hydrophobic dielectric surface is expected to result in better crystal growth in pentacene, C8-BTBT, and C6-DNT-V thin films and increased performance of

electrical properties. The device performance including mobility, threshold voltage and on-off ratio are determined by V_D - I_D and V_G - I_D characteristics.

In order to understand the influence of various interfacial layers on the electrical properties of the OTFTs further, the relationship between the physical and the electrical properties of the OTFTs, including relationship between the mobility and the contact angle, the threshold voltage and the contact angle, the on/off ratio and the contact angle, the mobility and the X-ray diffraction intensity, and the mobility and the dielectric constant were investigated. Correlation coefficient (R) was calculated to analyze the relationship between both properties. This result shown that contact angle weakly depends on the mobility of the C6-DNT-V compare to others organic semiconductor. However, the contact angle strongly depends on the threshold voltage, with R of 0.83 for pentacene, 0.61 for C8-BTBT and 0.88 for C6-DNT-V. The hydrophobicity of the dielectric interfacial layer significantly influenced the threshold voltage of the device. The mobility of the pentacene thin film is also affected by the crystallization. The differences molecular structures of pentacene, C8-BTBT and C6-DNT-V, for example with and without alkyl-chains and straight or bend core structure strongly influence electrical properties in this study.

In second part of the thesis, we discussed on the other important interface in OTFTs is between the semiconductor and the electrode, where the charge injection happen during device operation. Temperature dependence characteristics of pentacene and C8-BTBT-based OTFTs with MoO_3/Au electrodes were investigated. Recently, molybdenum oxide (MoO_3) is one of the special metal oxide that used as a buffer layer for carrier injection to reduce contact resistance, barrier height and improve hole injection in OTFTs performance. It is shown that by inserting MoO_3 can enhanced electrical properties of OTFTs. Possible conduction mechanism in two types of organic semiconductor which are pentacene and C8-BTBT were evaluated by measuring temperature dependence characteristics of OTFTs.

Temperature dependence V_D - I_D characteristics can be fitted with two possible carrier transport mechanism which are Schottky thermionic emission injection and polycrystalline conduction models. In pentacene OTFTs with MoO_3/Au electrodes, the activation energy decreases concurrently by applied gate voltage. The effect of activation energy is attributed to the carrier transport occurred either via charge injection at a source/drain or in the organic materials while transport across grain boundaries/barrier height, due to the Fermi level shifted and/ or changed due to the free carrier concentration. At low applied voltage region, temperature dependence V_D - I_D characteristics can be fitted with Schottky thermal emission. At high applied voltage region, temperature dependence of V_D - I_D characteristics can be fitted with polycrystalline conduction model.

In C8-BTBT OTFTs with MoO_3/Au electrodes, temperature dependence of V_D - I_D characteristics from 133 K to 293 K with different gate-bias voltage in three different regions was investigated. From these experimental data results, temperature dependence V_D - I_D characteristics can be explained with

polycrystalline conduction model at low temperature region. On the other hand, temperature dependence V_D - I_D characteristics can be explained with Schottky thermal emission at high temperature region. Therefore, we found that OTFT operation behaves many variations of conduction models and operational model should be considered during these operational situations.

(和訳)

有機トランジスタ (OTFT) は、低コスト、軽量、そして適切な性能のため、プラスチックエレクトロニクスを含む大面積応用や、アクティブマトリクスディスプレイ、そして高周波認識タグ (RFID) 等への応用へ向けて盛んに研究されている。しかしながら高移動度、高オンオフ比、そして低いしきい電圧など、解決すべき課題が残されている。多くの OTFT の特性は、有機／無機界面の特性に関係している。そこには、有機半導体／絶縁膜界面と、半導体／電極界面の二つの重要な界面が存在している。そのため、本研究では、種々の絶縁層界面を有する有機半導体材料／絶縁膜界面の物理的及び電気的特性を調べるとともに、有機半導体／電極界面に MoO_3 層を挿入したときの特性の温度依存性を調べた。

本論文の前半では、種々の界面絶縁層を持つペンタセン、2,7-dioctyl[1]benzothieno[3,2-b][1]benzothiophene (C8-BTBT)、そして dinaphtho[2,3-b:2',3'-d]thiophene (C6-DNT-V) 半導体を持つ有機トランジスタの特性を調べた。今回検討した絶縁膜は、ポリマー、ポリイミド、自己組織化膜(SAMs)、そして高誘電率無機絶縁膜である。それらの物理的及び電気的特性について調べた。シリコン酸化膜上でのこれらの界面層の影響と結晶成長条件を調べるために、接触角測定、X 線回折、原子間力顕微鏡、そして電気的特性を測定した。接触角測定では、種々の絶縁膜堆積により、接触角が増加した。ペンタセン、C8-BTBT、そして C6-DNT-V 薄膜の結晶成長には、より疎水性の高い表面が必要であり、電気的特性が改善される。 V_D - I_D と V_G - I_D 特性から、移動度、しきい電圧、そしてオンオフ比が決定される。

種々の界面層の OTFT への影響を調べるために、移動度対接触角、しきい値対接触角、オンオフ比対接触角、移動度対 X 線回折強度、そして移動度対誘電率の相関を調べた。相関係数 R は、両者の性質から解析される。その結果、接触角は、他の半導体材料と比較して、C6-DNT-V の移動度と、弱い相関性を示した。しなしながら、しきい電圧との相関では、ペンタセンで 0.83、C8-BTBT で 0.61、C6-DNT-V で 0.88 と強い相関を示した。絶縁性界面層の親水性が、強くしきい電圧に影響している関係となった。ペンタセンの移動度は、結晶性と大きく依存性があった。異なる分子形状となるペンタセン、C8-BTBT と C6-DNT-V では、すなわち、異なるアルキル長と屈曲したコア構造が、電気的特性に強く影響した。

本論文の後半では、デバイスでのキャリア注入の起こる有機半導体と電極界面について議論した。ペンタセンと C8-BTBT 半導体で MoO_3/Au 電極を持つ OTFT 特性の温度依存性を調べた。最近、 MoO_3 は、コンタクト抵抗、バリアハイトそしてホール注入を改善するバッファ層として利用されている。 MoO_3 の挿入により、電気的特性の改善が報告されている。二つの半導体であるペンタセンと C8-BTBT で、OTFT の特性の温度依存性を測定することで、キャリアの注入特性を調べた。

V_D - I_D 特性の温度依存性から、ショットキー熱放出注入と polycrystalline 伝導モデルの二つのキャリア輸送機構が見積もられた。特に、 MoO_3/Au 電極を持つ OTFT では、ゲート電圧の印加により活性化エネルギーの減少が見られた。活性化エネルギーからは、ソース／ドレイ

ンからの有機膜へのキャリア注入、または、フェルミレベルの移動か自由キャリア密度の変化によるグレイン境界やバリアハイトの変化によるキャリア輸送機構の変化が見積もられた。低ゲート電圧領域では、 V_D - I_D 特性は polycrystalline モデルであると考えられた。また、高ゲート電圧領域では、 V_D - I_D 特性はショットキー熱放出モデルでフィッティング出来た。

MoO₃/Au 電極を持つ C8-BTBT OTFT で、133~293K での異なるゲート電圧で、異なる三つの領域に分けて温度依存性を測定した。これらの測定から、低温領域での V_D - I_D 特性の温度依存性は、polycrystalline 伝導を示した。それに対して、高温での V_D - I_D 特性の温度依存性は、ショットキー熱放出で説明された。そのため、OTFT 動作は、多くの伝導モデルと動作モデルを考慮しなければならないことを示した。