

透明なカーボンナノチューブフレキシブルトランジスタ

Transparent Carbon Nanotube Flexible Transistors

*相川 慎也 (東大院) 北島 旭 (東大院)
伝正 Erik Einarsson (東大院) Theerapol Thurakitserree (東大院)
伝正 千足 昇平 (東大院) 伝正 丸山 茂夫 (東大院)

Shinya AIKAWA, Asahi KITABATAKE, Erik EINARSSON, Theerapol THURAKITSEREE,
Shohei CHIASHI and Shigeo MARUYAMA
Department of Mechanical Engineering, The University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656

We fabricated flexible and transparent all-carbon-nanotube field-effect transistors (CNT-FETs) using single-walled carbon nanotubes (SWNTs) as channel and electrodes. The use of a plastic substrate that is considerably thinner than those used in other flexible CNT-FETs allowed our devices to be highly deformable without degradation of electrical properties. Using this approach, the devices able to withstand a 1.0 mm bending radius, and to obtain more than 80 % transmittance at the visible range were realized.

Key Words : Single-Walled Carbon Nanotubes, Field-Effect Transistors, Flexibility, Transparency, Polymers

1. はじめに

フレキシブルで透明な次世代電子デバイス実現に向け、単層カーボンナノチューブ (Single-Walled Carbon Nanotube, SWNT)⁽¹⁻¹²⁾、単結晶 Si⁽¹³⁾、アモルファス In-Ga-Zn-O (*a*-IGZO)⁽¹⁴⁾、In₂O₃ ナノワイヤ⁽¹⁵⁾、および有機材料^(16,17)をベースとした電界効果トランジスタ (Field-Effect Transistor, FET) が注目されている。しかし、従来のフレキシブル FET には金^(1-5,18-20)や酸化インジウムスズ (Indium Tin Oxide, ITO)^(6,7,13-16)が電極として使用されている。金電極はデバイスの透明性を低下させ、ITO は脆い材料であるためチャンネル材料の機械的柔軟性を損なってしまう^(21,22)。最近、トランジスタのすべての電極 (ソース、ドレイン、ゲート) に SWNT ネットワーク⁽⁸⁾やグラフェン⁽⁹⁻¹²⁾を用いたカーボンナノチューブ FET (CNT-FET) が作製されている。炭素ベースの材料のみで構成されたこれらのデバイスは、光学的透明性と機械的柔軟性の両方を同時に向上させることが可能である。だが、厚いプラスチック基板上にデバイスが形成される場合、SWNT の柔軟性を十分に活かすことができない。そのため従来素子は、4~8 mm 程度の比較的大きい曲率半径しか達成されていない⁽⁸⁻¹²⁾。

本研究では、SWNT の優れた機械的柔軟性と特異な電気的特性の両方を活かすため、薄いプラスチック基板上にチャンネルおよび電極 (ソース、ドレイン、ゲート) のすべてが SWNT で構成された All-CNT-FET を作製し、その特性評価を行った。

2. デバイス作製

アクティブ層 (ソース・ドレイン電極およびチャンネル) 用、およびグローバルゲート電極用に二つの Si 基板を準備した。前者には、標準的なフォトリソグラフィプロセス (露光および現像) でパターンを形成し、Co 触媒を真空蒸着により 0.5 nm 堆積させた。後者は、パターン形成をせずに Co 触媒を同様に堆積させた。アクティブ層用の基板をリフトオフおよび洗浄した後、アルコール触媒化学気相堆積 (Alcohol Catalytic Chemical Vapor Deposition, ACCVD) 法⁽²³⁾により両方の基板上に SWNT を合成した。合成後の SWNT の上からポリビニルアルコール (Poly-vinyl Alcohol, PVA) 溶液 (濃度: 10 wt.%) をスピコートし、乾燥させた後、Si 基板から剥がした。最後に、アクティブ層およびグローバルゲート電極用の PVA/SWNT シートを互いに貼り合わせ、All-CNT-FET

を作製した⁽²⁴⁾。

3. 結果と考察

3.1 デバイス構造と透過率 パターン成長後の SWNT の SEM 像を図 1 (a) に示す。電極・チャンネルともに SWNT で構成される。図 1 (b) は、作製したデバイスの断面概要図である。デバイス全体の厚さは 15 μm であった。これは、従来のポリエチレンテレフタレート (poly-ethylene terephthalate, PET)^(3, 8, 9)やポリエチレンナフタレート (poly-ethylene naphthalate, PEN)^(20, 25)を基板として用いたフレキシブル CNT-FET よりも 10 倍以上薄い。このため、図 1 (c) に示すように、デバイスの形状変化が容易に可能である。

図 2 は、PVA フィルムおよびコンタクトパッド (PVA/SWNT 膜) 部分の可視領域における光学的透過スペクトルである。80%以上の透過率が得られた。これは、透明デバイスとして十分な光透過率である。

3.2 様々な形状での FET 特性 図 3 (a) は、フラット、湾曲 (曲率半径, $R = 3.5 \text{ mm}$ および 1.0 mm)、およびしわくちゃにされた形態での典型的な All-CNT-FET の伝達特性である。デバイス特性は、半導体パラメータアナライザ (Agilent

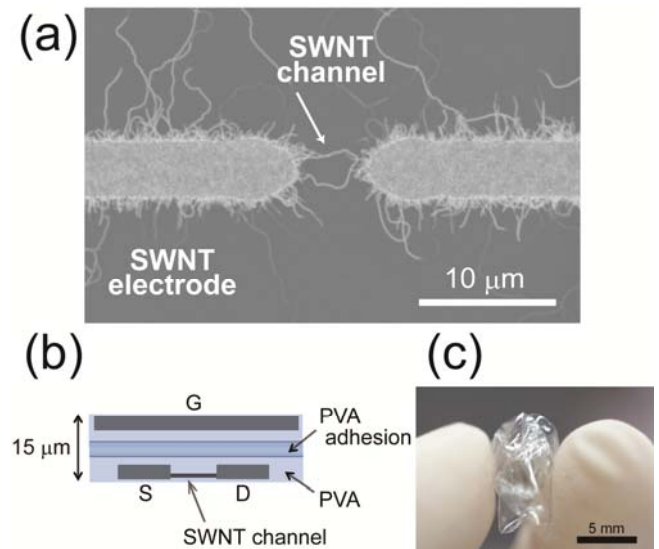


Fig. 1 (a) SEM image of all-CNT-FET channel region. (b) Schematic cross-section diagram of the FET. (c) Photograph of a crumpled, yet functional, all-CNT-FET device.

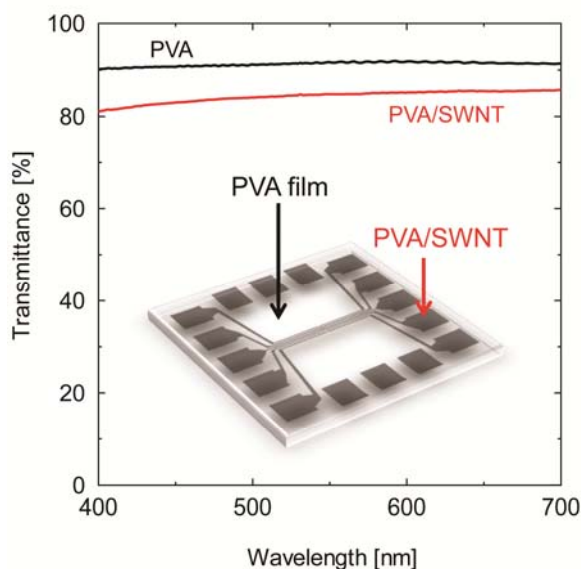


Fig. 2 Optical transmission spectra of the flexible all-CNT-FET in the visible range.

4156C) を用いて、室温、大気雰囲気下で測定された。一般的な CNT-FET は、大気中測定では、単極性の p 型特性を示す。しかしながら、作製した All-CNT-FET は両極性伝導を示した。この CNT-FET の両極性変換については、検討中であるが、重要なのは、このデバイスが強く変形されたにもかかわらず、電気特性の変化がほとんど見られなかったことである。SWNT チャンネルを持つ従来のフレキシブル FET では、機械的ひずみや曲げストレス下でのドレイン電流 (I_D) の劣化が見られる^(1,3,8,25)。これに対して本デバイスは、ポリマー基板の厚さが従来のデバイスと比べて約 1/10 と薄く、チャンネルにかかる機械的ストレスが劇的に減少するため、形状変化に対する劣化が見られなかったと考える。このような、柔軟だが変形に強い SWNT ベースのデバイスは、これまで作製されていない。高い柔軟性の実現は、薄い基板の使用だけではなく、SWNT 自身のしなやかさ⁽²⁶⁾も寄与するところが大きい。

作製した All-CNT-FET の機械的ストレス耐性を調べるために、デバイスを 100 回しわくちやにし、その特性を測定した。 $V_{DS} = -3$ V における伝達特性のサイクル依存は見られなかった。得られた最大ドレイン電流 ($I_{D,max}$) および算出したトランスコンダクタンス (g_m) を曲げ回数に関数としてプロットしたものを図 3(b) に示す。 $I_{D,max}$ は、曲げ回数の上昇とともにわずかに減少した。これは、変形中に、SWNT ネットワーク電極内のコネクションの弱い部分 (SWNT 間が弱い van der Waals 力で接触していることに起因する) が壊れたためだと考える。しかし、 I_D は 30 回程度でストレスに対し安定になった。一方、 g_m は曲げ回数に依存しないことが分かった。これは、PVA が機械的ストレスへの十分な耐用性をもつことを示唆する。

4. まとめ

SWNT およびポリマーのみで構成された All-CNT-FET を実現した。このデバイスは、可視領域で 80% 以上の透過率を有し、デバイスの性能劣化なしに 1.0 mm の曲率半径に耐えられる高い柔軟性を示した。本研究結果は、柔軟で透明なオールカーボンエレクトロニクス実現のための重要な第一歩になると期待する。

参考文献

(1) E. Artukovic, et al., *Nano Lett.* **5**, 757 (2005).

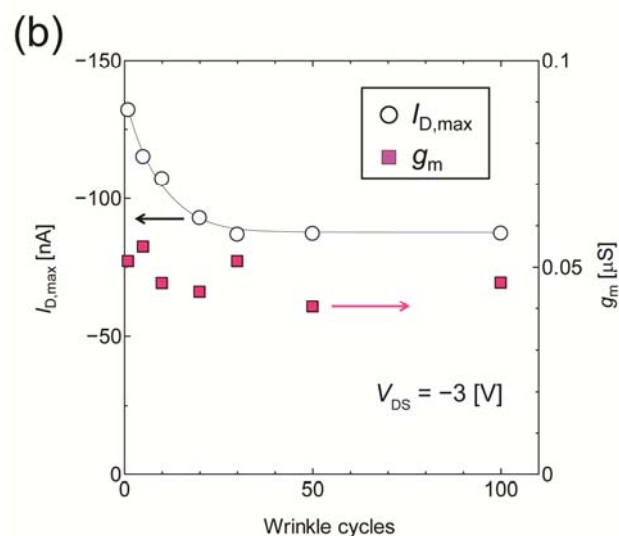
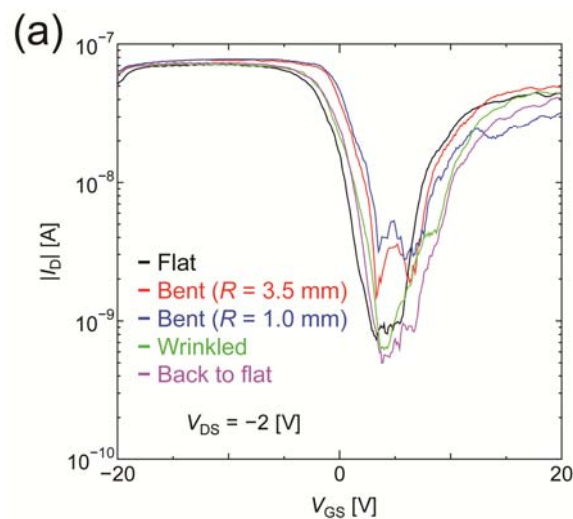


Fig. 3 (a) Transfer characteristics of the flexible FET in flat, bent ($R = 3.5$ mm), more bent ($R = 1.0$ mm), and wrinkled. (b) Shift of the maximum drain current ($I_{D,max}$) and the transconductance (g_m) increasing with wrinkle cycles.

- (2) S.-H. Hur, et al., *Appl. Phys. Lett.* **86**, 243502 (2005).
- (3) Q. Cao, et al., *Adv. Funct. Mater.* **16**, 2355 (2006).
- (4) S. H. Tseng, et al., *Appl. Phys. Lett.* **95**, 204104 (2009).
- (5) T. Takenobu, et al., *Appl. Phys. Express* **2**, 025005 (2009).
- (6) F. N. Ishikawa, et al., *ACS Nano* **3**, 73 (2009).
- (7) S. Kim, et al., *Adv. Mater.* **21**, 564 (2009).
- (8) Q. Cao, et al., *Adv. Mater.* **18**, 304 (2006).
- (9) S. Jang, et al., *Nanotechnology* **21**, 425201 (2010).
- (10) B. Li, et al., *Adv. Mater.* **22**, 3058 (2010).
- (11) W. J. Yu, et al., *Nano Lett.* **11**, 1344 (2011).
- (12) W. J. Yu, et al., *Adv. Mater.* **23**, 1889 (2011).
- (13) E. Menard, et al., *Appl. Phys. Lett.* **86**, 093507 (2005).
- (14) K. Nomura, et al., *Nature* **432**, 488 (2004).
- (15) S. Ju, et al., *Nat. Nanotechnol.* **2**, 378 (2007).
- (16) S.-J. Kim, et al., *J. Mater. Chem.* **21**, 14516 (2011).
- (17) L. Basiricò, et al., *Thin Solid Films* **520**, 1291 (2011).
- (18) K. Bradley, et al., *Nano Lett.* **3**, 1353 (2003).
- (19) Q. Cao, et al., *Nature* **454**, 495 (2008).
- (20) D. Sun, et al., *Nat. Nanotechnol.* **6**, 156 (2011).
- (21) N. Saran, et al., *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 4462 (2004).
- (22) Y. Leterrier, et al., *Thin Solid Films* **460**, 156 (2004).
- (23) S. Maruyama, et al., *Chem. Phys. Lett.* **360**, 229 (2002).
- (24) S. Aikawa, et al., *Appl. Phys. Lett.* **100**, 063502 (2012).
- (25) T. Takenobu, et al., *Appl. Phys. Lett.* **88**, 033511 (2006).
- (26) D. Bozovic, et al., *Phys. Rev. B* **67**, 033407 (2003).