# 不揮発性有機トランジスタメモリの高性能化と 有機メモリ回路の開発

Performance enhancement of nonvolatile organic transistor memories and development of organic memory circuits

研究代表者 大阪公立大学工学研究科 准教授 永瀬 隆

Takashi Nagase

The developments of high-performance nonvolatile organic transistor memories and organic memory circuits become critical issues for enhancing the functionality of organic integrated circuits and their related devices. However, organic transistor memories generally suffer from high driving voltages, and electrically programmable organic memories require approaches to control threshold voltages for developing various organic memory circuits. In this study, we have demonstrated that solution-processed organic transistor memories with organic floating-gate layers achieve memory operations with a driving voltage as low as 20 V. We found that the developed memories exhibit photoresponsive synaptic characteristics suited for the development of highly functional solution-processable image sensors with memory functions. We also developed approaches to control the positive and negative threshold voltage shifts for the fabrication of organic memory circuits.

# 要旨

有機集積回路やその応用デバイスの高機能化にお いて、不揮発性有機トランジスタメモリの高性能化 や有機メモリ回路の開発は重要な課題となる.しか しながら、有機トランジスタメモリの駆動電圧は一 般に高く、また多様なメモリ回路の作製には電気的 に書込み可能な有機メモリの閾値電圧の制御が求め られる.本研究では、研究代表者らが開発した有機フ ローティングゲート層を用いた塗布型有機トランジ スタメモリの駆動電圧の20 V程度までの低電圧化を 達成し、メモリ機能を有する塗布型イメージセンサ の高機能化に適した光応答性シナプス特性を示すこ とを見出した.また、有機メモリ回路の作製に求めら れる正側と負側に閾値電圧シフトを制御する手法を 開発した.

### 1. まえがき

薄膜トランジスタ(TFT)は真空蒸着等で作製さ れた半導体薄膜を用いることで大面積の電子回路を 形成できることから,液晶や有機ELを用いたフラッ トパネルディスプレイのバックプレーン回路に盛ん に応用されている.TFTの半導体材料には水素化アモ ルファスシリコン,低温ポリシリコン,In-Ga-Zn-0等 の酸化物半導体及び有機半導体が用いられる.有機 電界効果トランジスタ(有機FET)は半導体層やゲ ート絶縁膜に有機材料を用いたTFTであり,他のTFT と比べて製造に要する熱処理温度が低いため(通常 150 ℃程度),汎用的なプラスチックフィルム上に直 接的に電子回路を作製することが可能である.更に, 塗布法や各種の印刷技術を活用することで低い製造 コストで大量生産が可能となることから,大面積の フレキシブルディスプレイ,印刷技術を用いた低コ スト無線情報タグ,シート型の健康センサ等のウェ アラブルデバイスへの応用が期待されている.これ らのデバイスの高機能化に向けては論理演算を実行 するコードや取得した情報の記録に用いる不揮発性 メモリが不可欠となるが,有機メモリの性能や信頼 性は実用化できる水準には至っておらず,有機電子 回路に不揮発性有機メモリが実装された例はほとん ど無い.

有機 FET にメモリ層を付加したトランジスタ型の メモリは 2 端子メモリに比べてより信頼性の高いメ モリ回路を作製できる.特に,USB メモリやソリッド ステートドライブに用いられているフローティング ゲート方式を採用した有機 FET メモリは大きな閾値 電圧シフトを示し,1年を超える情報の保持が可能で あることから近年盛んに研究が行われている.しか しながら,情報の書込みには通常 60 V 程度の高いゲ ート電圧の印加が必要となる.また,将来的には溶液 プロセスを用いた有機メモリ回路の作製が求められ るが,有機フローティングメモリの作製には有機半 導体層,トンネル絶縁膜,フローティングゲート,制 御ゲート絶縁膜等の多くの材料の積層が必要となる ことで溶液プロセスを適用することが困難という問 題があった.

研究代表者らは、高分子絶縁体と可溶性の低分子 半導体の混合膜で自発的に生じる垂直相分離現象と 高分子半導体を用いたトップゲート構造の有機 FET が有する溶液プロセスに対する優位性に着目し、電 極以外の有機層を溶液プロセスで作製できる有機フ ローティングゲートメモリの開発に成功した.開発 した有機 FET メモリのメモリ動作は有機半導体層の 電子準位やキャリア輸送特性に依存し、半導体層に poly(3-hexylthiophene) (P3HT) を用いた場合には 暗所で書込みを行っても電気特性に変化は見られな いが、光照射下で書込みを行った場合に伝達特性の 閾値電圧が変化し、不揮発性メモリとして動作する ことをこれまでに明らかにしている(1).また、この様 な光応答性を利用することで、各画素にメモリ機能 を付加したイメージセンサを溶液プロセスで作製で きることを報告した<sup>(2)</sup>. 更に, 有機半導体層にジケト ピロロピロール (DPP) とジチエノチオフェン (DTT) を含むドナー・アクセプター型の両極性高分 子半導体 (DPP-DTT) を用いることで暗所で書込み を行った際にも閾値電圧を変化させることが可能と なり、電気的に書込みと消去が可能な有機 FET メモ リを実現できることを明らかにした<sup>(3)</sup>.特に,DPP-DTT を用いた場合にはメモリ素子の直列接続でメモリア レイの構成が可能となる NAND 型のメモリ動作が得ら れることを報告した(4).

本研究では、研究代表者らが開発したフローティ ングゲート有機 FET メモリの高性能化と有機メモリ 回路の開発を目的とした.ここでは、(1)書込み、消 去電圧の低減に対して検討したゲート絶縁膜の薄膜 化及び電極仕事関数の制御の効果、(2)有機 FET メモ リを用いたイメージセンサの高機能化に向けて行っ たシナプス特性の評価及び(3)メモリ回路の開発に 向けて検討した両極性半導体を用いたメモリの閾値 電圧制御について報告する.

# 2. 実験方法

本研究で作製した有機 FET メモリの基本的な構造 と用いた有機材料の化学構造を図1に示す. 有機 FET メモリの作製にはトップゲート/ボトムコンタクト

(TG/BC) 型の素子構造を用い、有機層の成膜にはス ピンコート法を用いた.TG/BC 構造を用いた有機 FET メモリでは、従来のボトムゲート/トップコンタクト 構造のメモリと異なり、有機層の成膜前にフォトリ ソグラフィやインクジェット印刷等によって微細な ソース-ドレイン電極を作製できるため、集積化が容 易という特長がある.本研究では、ガラス基板上また は表面に熱架橋させた poly(4-vinylphenol) (PVP) 膜を作製したガラス基板上にフォトリソグラフィと リフトオフによって Cr/Au 膜をパターニングし、ソ ース-ドレイン電極を作製した. 光応答性有機 FET メ モリの半導体層には、P3HT 及びP3HT よりも高い大気 安定性や正孔輸送性を有する PBTTT を用い、ゲート 絶縁膜の薄膜化の効果やシナプス特性を評価した. 暗状態で動作する有機FETメモリの作製に対しては、 両極性高分子半導体のDPP-DTT 及びDPP 骨格を有し、 正孔輸送性に優れた PDPP4T, または電子輸送性に優 れた PDBPyBT を用い、可溶性フラーレン (PCBM) や これらの両極性半導体の混合の効果を調べた.

フローティングゲート層には、絶縁性の高分子と して広く知られている poly(methylmethacrylate)



図1 有機フローティングゲート層を有する有機 FET メモリの構造と用いた有機材料の化学構造.

(PMMA) と有機溶剤に溶解するペンタセン誘導体の 6,13-bis(triisopropylsilylethynyl)pentacene (TIPS-pentacene) の混合膜を用いた. これらの有機 材料は高分子半導体を溶解しない酢酸ブチルに高い 溶解度を示し、有機半導体層にダメージを与えるこ となく、塗布により積層することが可能である. 有機 半導体層上に PMMA:TIPS-pentacene 混合膜をスピン コート法により成膜した後、100 ℃、10 分間程度の 熱処理を施すことで、低い分子量と低い表面エネル ギーを有する TIPS-pentacene は混合膜の上方に偏析 し,凝集する.この際,有機半導体層上の混合膜の下 方にはPMMA を主成分とするトンネル絶縁膜が形成さ れ, TIPS-pentacene 凝集体はフローティングゲート として機能する<sup>(1)</sup>.一方,この様な PMMA と TIPSpentacene の混合膜の垂直相分離では膜下方にも TIPS-pentacene が移動することで、作製した有機メ モリの消去特性が不十分となる. 図 2 に示す様に, PMMA:TIPS-pentacene 混合膜に更に少量の PCBM を添 加した PMMA:TIPS-pentacene:PCBM 混合膜 (重量比 80:17:3) を用いてフローティングゲート層を作製 した際にはTIPS-pentaceneの膜上方への偏析が促進 され、消去特性の改善が見られる<sup>(2)</sup>. そのため、P3HT 及びPBTTTを用いたメモリにはPMMA:TIPS-pentacene に少量の PCBM または Bis-PCBM を添加したフローテ ィングゲート層を用いた.

ゲート絶縁膜にはこれまではフッ素系溶剤を用い る塗布型高分子絶縁体である CYTOP を用いていたが、 本研究ではゲート絶縁膜の薄膜化に際して、リーク 電流の低減が容易な CVD 成膜による parylene-C ある いは、薄膜化した CYTOP/parylene-C の2 層膜をゲー



図2 P3HT 膜上に塗布成膜した有機フローティングゲート層の AFM 像と高さプロファイル: (a) PMMA:TIPS-pentacene 混合膜 (重量 比80:20) 及び(b) PMMA:TIPS-pentacene:PCBM 混合膜 (重量比 80:17:3) を用いた場合.

ト絶縁膜に用いた.ゲート電極にはマスク蒸着した A1 (40 nm)またはゲート絶縁膜との間に高仕事関数 のMoO<sub>3</sub> (5 nm)を挿入したMoO<sub>3</sub>/A1 電極を用いた.メ モリ素子のチャネル長は10 µm,チャネル幅は1.5 mm とした.メモリ素子の大気や水分による特性変化を 避けるため、有機層の成膜及び電気測定は窒素置換 したグローブボックス内で行った.

光応答性のメモリ素子の書込み時の光照射には中 心波長 469 nm の青色 LED 光または中心波長 660 nm の赤色 LED 光を用いた.ソースメータ(Keithley6430 及び 2400)を用いて書込み,消去前後に暗状態で伝 達特性を測定することで,メモリ性能を評価した.

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 光応答性有機 FET メモリの低電圧化

有機半導体層にPBTTT,フローティングゲート層に 重量比80:17:3のPMAA:TIPS-pentacene:Bis-PCBM混 合膜を用いた有機 FET メモリの低電圧化に対して, ゲート絶縁膜の薄膜化及び電極仕事関数の制御の効 果を調べた.

図3(a)はゲート絶縁膜に膜厚140 nmのparylene, 図 3(b) は膜厚 300 nm の CYTOP を用いた PBTTT FET メ モリの書込み, 消去後の伝達特性を示す. 本研究に用 いた光応答性の有機 FET メモリでは図 3(c)に示す様 に、光照射下で正のゲート電圧を印加することで有 機半導体層で電子正孔対が光生成され,電子はTIPSpentacene (フローティングゲート) の LUMO 準位に 移動し、蓄積されることで情報の書込みが行われる. 蓄積された電子は有機半導体層に過剰な正孔を誘起 し、書込み後の伝達特性は正電圧側にシフトする.特 に、有機半導体層での光キャリア生成を利用した際 にはソース-ドレイン電極から半導体層への電子注 入が不要であることで閾値電圧シフトは比較的低い 書込み電圧でも生じる.図3(a)及び(b)に示した様に、 +20 Vのゲート電圧 (V<sub>d</sub>) を用いた際にもメモリ動 作は可能となる. しかしながら, ゲート絶縁膜が厚い 場合にはドレイン電流値が低下し、サブスレッショ ルド・スイング (SS) が増加することで、書込みと消 去の状態を判別する際に用いられるゲート電圧 0 V におけるドレイン電流の比が 10<sup>2</sup>程度に制限される. CVD 成膜した parylene を用いてゲート絶縁膜を 140 nm まで薄膜化することでオン電流と SS が改善され、

104程度の高いオンオフ比を得られることが分かった. 一方、図3(a)及び(b)に示す様に消去に対してはより 高いゲート電圧の印加が必要となる.書込み電圧に 対して消去電圧が高くなる理由として、PBTTT FET メ モリで Au ソース-ドレイン電極から PBTTT 半導体層 のHOMO 準位への正孔の注入を改善するために行った 自己組織化単分子膜の pentafluorobenzenethiol (PFBT) で表面処理を行った影響が考えられる.即ち, PFBT 処理の Au 電極の仕事関数は-5.5 eV 程度である が、ゲート電極に仕事関数が-4.3 eV 程度のAl を用 いた場合には内臓電位が生じることで消去しづらく なる可能性がある.この様な内蔵電位による影響を 調べるため、ゲート絶縁膜 (parylene, 115 nm) と Al ゲート電極の間に高仕事関数を有する MoO<sub>3</sub> (-5.2 ~5.6 eV) を挿入した. 図3(d) にゲート電極に Al を 用いた PBTTT FET メモリ素子と MoO<sub>3</sub>/A1 を用いたメ モリ素子の書込み電圧に対する閾値電圧シフト量を



図3 (a) 厚さ 140 nm の parylene, (b) 厚さ 300 nm の CYTOP をゲ ート絶縁膜に用いた PBTTT FET メモリの書込み (青色 LED 光照射 下)、消去(暗状態下)後の伝達特性.(c) Al ゲート電極を用い た PBTTT FET メモリの書込み時のエネルギーバンド図.(d) Al お よび MoO<sub>3</sub>/Al ゲート電極を用いたメモリの書込電圧と閾値電圧シ フトの関係.(e) parylene ゲート絶縁膜(140 nm)を有する PBTTT FET メモリの書込み, 消去特性に対するドレイン電圧印加の効果.

示す.ゲート電極にAlを用いた素子ではゲート電極 とソース-ドレイン電極との仕事関数差(1.2 eV 程 度)により生じた内蔵電位により,書込み電圧0V印 加時においても7.5 V 程度の閾値電圧シフトが生じ ていることが分かる.Alゲート電極/絶縁膜界面に高 仕事関数のMoO<sub>3</sub>を挿入し,ソース-ドレイン電極との 仕事関数差を減少させることで,書込み電圧0Vに おける閾値電圧シフトを抑制できることが分かった.

有機 FET メモリでは通常ソース電極及びドレイン 電極を0Vとして書込み,消去操作を行うが,ドレイ ン電圧を印加することで書込み,消去電圧を更に低 減させることが可能となることが分かった.図3(e), 3(f)はソース-ドレイン電極に PFBT/Au,ゲート電極 に MoO<sub>3</sub>/A1 を用いた PBTTT FET メモリに書込み及び 消去電圧をそれぞれ+15 V,-20 Vとした際の伝達特 性である.書込み,消去時にゲート電圧と同じ極性の ドレイン電圧を印加しても閾値電圧シフト量に変化 は見られないが,逆の極性のドレイン電圧を印加す ることで閾値電圧シフト量が増加することが分かっ た.ドレイン電圧を印加することで,±20 V程度の比 較的低い書込,消去電圧でメモリ動作し,オンオフ電 流比で10<sup>3</sup>以上を得るこが可能となった.

# 3.2 有機メモリを用いたイメージセンサの高機 能化に向けたシナプス特性の評価

不揮発性メモリは近年、生物の脳を模倣したニュ ーロモルフィックデバイスの構成要素としての応用 が期待されており、脳内の神経細胞同士を繋ぐシナ プスを人工的に再現するメモリデバイスの研究開発 が活発化している。Chaiらは金属酸化物を用いた2 端子メモリの紫外光照射によって得られる光電流の 大きさや減衰速度がパルス光の強度や時間幅によっ て大きく変化することを見出し、イメージセンサの プリプロセッシング機能(コントラスト増強やノイ ズ除去)として利用できることを報告している<sup>(5)</sup>. 本研究では、有機半導体層にP3HT、フローティング ゲート層に PMMA: TIPS-pentacene: PCBM 混合膜(重 量比80:17:3)を用いた有機FETメモリにおいて、 図4(a)に示す様に光照射下で入力としてパルス状の ゲート電圧(30 V,幅100 ms)を印加し、出力とし て得られるドレイン電流の時間依存性を測定するこ とでシナプス特性を評価した.



図4 (a) P3HT FET メモリのシナプス特性の評価. (b) 1 mW/cm<sup>2</sup>の 赤色 LED 光 (660 nm) 及び青色 LED 光 (469 nm) 照射下で書込み (ゲート電圧 30 V, 幅 100 ms) によるドレイン電流の変化. (c) 強度の異なる赤色 LED 光及び (d) 青色 LED 光で繰り返し書込み を行った際のドレイン電流の変化. (e) 赤色 LED 光照射下での書 込み時のエネルギーバンド図.

図 4(b) は赤色 LED 光 (660 nm) 及び青色 LED 光 (469 nm) の照射下でゲート電圧パルスを10秒毎に 印加した際のドレイン電流の変化である. 有機 FET メ モリの光応答は通常の FET と異なりパルス電圧印加 後も電流が減少せずに持続する特性が得られるが、 これは有機半導体層で光生成された電子がフローテ ィングゲート層に蓄積されることで半導体層に過剰 な正孔が誘起されるためである. 図 4(c), 4(d)に示 す様にパルス電圧の印加を繰り返すと蓄積電子量が 増加することで電流が増加し、 フローティングゲー ト層に蓄積できる電子量の上限に近づくことで電流 は飽和する傾向を示す.一般に光強度が弱い場合で も電圧印加を繰り返すことで電流値は同程度に達す ることが予想できるが、赤色 LED 光照射下では光強 度が弱い場合には電流値の増加が大きく抑制される ことが分かった. これは赤色 LED 光照射下では通常 の不揮発性メモリが有する長期記憶の特性だけでな く, 短期記憶の特性を示すためと考えられ, 特に赤色 光照射下では光強度に応じたシナプス特性が現れる ことが明らかとなった.この様なシナプス特性は照 射光の波長によって光キャリア生成が変化するため と考えられ、特に赤色光照射下では図 4(e)に示す様 にフローティングゲート層における TIPS-pentacene での光キャリア生成が支配的になることで発現した ものと考えられる.

# 3.3 両極性半導体を用いた有機 FET メモリの閾値 電圧制御

有機半導体層に両極性高分子半導体 DPP-DTT を用 いることでソース-ドレイン電極からの電子注入が 可能となり、暗状態で電気的な書込みによるメモリ 動作が得られる. これは、DPP-DTT が P3HT や PBTTT と異なり、深いLUMO 準位を有し、また正孔だけでな く電子に対しても良好なキャリア輸送特性を有する ことに由来している.しかしながら,DPP-DTTを用い たメモリに暗状態で書込みを行った際に伝達特性に 現れる閾値電圧シフト量は小さく、光応答性の有機 FET メモリに比べて駆動電圧の低減がより困難とな る. 駆動電圧を低減させるためには、閾値電圧シフト 量そのものを増大させる必要がある. 有機 FET メモ リは一般にチャネルを流れる伝導キャリアでなく、 少数キャリアを蓄積し易く、書込み後にエンハンス メント型の伝達特性を示す. この様なメモリを用い ることで NOR 型のメモリ回路の作製が可能となる. 一方、メモリ回路の配線数を減少させるためには、メ

モリ素子の直列接続から構成される NAND 型の有機メ モリ回路の実現も求められる.そのためには、書込み 後にデプレッション型の伝達特性を生じる、伝導キ ャリアを蓄積可能な有機 FET メモリを作製する必要 がある.本研究では、DPP-DTT を用いた正孔伝導性の p型有機 FET メモリに対して、電子蓄積及び正孔蓄積 による閾値電圧シフト量の増大を可能とする素子構 成を探索した.

図5(a),5(b)に有機半導体層にPDPP4T,フローテ ィングゲート層に重量比の70:30のPMMA:TIPSpentacene 混合膜を用いた有機FETメモリの半導体 層に可溶性フラーレンを添加した際の結果を示す. 図5(a)に示す様にPDPP4Tを用いた有機FETメモリで は、低いオフ電流と高いオン電流を示す良好な p型 のFET 特性が得られる特長がある.図5(b)はPDPP4T に PCBM を重量比で30%混合した場合のメモリ特性 であり、強い電子アクセプターであるPCBMを30%混



図5 (a) PMMA:TIPS-pentacene 混合膜(重量比70:30)を有する PDPP4T FET メモリの暗状態での書込み(V<sub>6</sub> =+60 V, 1 s), 消去(V<sub>6</sub> = -60 V, 1 s) による伝達特性の変化, (b) PDPP4T:PCBM 層(重量比70:30)を有する FET メモリの伝達特性及び(c) 書込み時のエネルギーバンド図.(d) PMMA:TIPS-pentacene 混合膜(重量比70:30)を有する DPP-DTT FET メモリの暗状態での書込み(V<sub>6</sub> =+60 V, 1 s), 消去(V<sub>6</sub> = -60 V, 1 s) による伝達特性の変化, (e) DPP-DPP:PDBPyBT 層(重量比70:30)を有する FET メモリの伝達特性及び(f) 各有機半導体の HOMO-LUMO 準位の比較.

合した場合にもオフ電流を増加させることなく, 閾 値電圧シフト量が11 Vから25 V程度まで増加する ことが分かった.

図 5(c)に示す様に PDPP4T 層に混合した PCBM の LUMO 準位(-3.7 eV) は PFBT 処理を施した Au 電極 (-5.5 eV) との差は依然として大きいが閾値電圧が 正電圧側に大きくシフトする.これは,電子注入特性 が界面の電子注入障壁だけでなく,注入される半導 体層の移動度に依存すること<sup>60</sup>を反映した結果であ り,過去に DPP-DTT メモリで得られた比較的小さい 閾値電圧シフトは電子注入が制限されることで生じ ていたことが明らかとなった.また,自己組織化単分 子膜で修飾したソース-ドレイン電極は書込み時の 有機半導体層への電子注入を制限せず,高いオン電 流を維持したままで,閾値電圧シフトを増加させる ことが可能であることが分かった.

図 5(d)は有機半導体層に DPP-DTT, フローティン グゲート層に PMA:TIPS-pentacene 混合膜(重量比 70:30)を用いたメモリの伝達特性であり,図5(e)は DPP-DTT 層に PDBPyBT を重量比で 30%混合した場合 の結果である. DPP-DTT 層に PDBPyBT を混合すること で,伝達特性の閾値電圧は正のゲート電圧を印加し た際に正電圧側にシフトし, PDPP4T 層に PCBM を混合 した場合と同様の効果が得られることが分かった. これは半導体層の電子輸送性が増加したことでソー ス-ドレイン電極からの電子注入が改善したためと 解釈できる.一方,負のゲート電圧を印加した際には 閾値電圧が初期状態から負電圧側にシフトし,フロ ーティングゲート層に正孔を蓄積させることが可能 となることが分かった.この様な結果は PDBPyBT と 同様に高い電子移動度と深いHOMO 準位を有する高分 子半導体である P(NDI2OD-2T)(図5(e))を混合した 場合には観測されなかった.正確な理由は明らかに できていないが,PDBPyBT が深いHOMO 準位と高い正 孔輸送特性を併せ持つ両極性半導体であることが関 係しているものと考えられ,両極性半導体の混合が 正孔蓄積特性の付与に有効な手段となることが分か った.

## 4. まとめ

本研究では,研究代表者らが開発を進めている有 機フローティングゲート層を有する塗布型有機トラ ンジスタメモリの高性能化や各種の有機メモリ回路 の開発に向けた閾値電圧の制御法に開発を行った. 有機半導体の特長である可視光領域における良好な 光キャリア生成特性を利用し,ゲート絶縁膜の薄膜 化や電極仕事関数の制御を行うことで,20 V程度ま での低電圧化が可能となることが分かった.また,有 機フローティングゲート層を有するメモリの書込み 特性は照射光の波長によって変化し,有機メモリを 用いたイメージセンサの高機能化に利用可能なシナ プス特性を示すことが明らかとなった.光キャリア 生成特性の活用は有機メモリの低電圧化や高機能化 に有効な手段であるが,電気的に書込み可能な有機 メモリの低電圧化や閾値電圧シフトの制御は有機メ モリ回路の実現に不可欠と考えられる.本研究を通 じて,電気的に書込み可能な有機メモリの閾値電圧 シフト量の増大やシフト方向の制御する手法を得る ことができたが,低電圧化や動作速度の改善に向け てはトランジスタ自体の特性の改善を含めたより系 統的な取り組みが求められる.

#### 謝辞

本研究にご支援賜りました公益財団法人マツダ財 団及び関係者の皆様に厚く御礼申し上げます.

### 発表論文

- [1] K. Morikawa, S. Hattori, N. Nishida, T. Kobayashi, H. Naito, and T. Nagase, Optoelectronic Synaptic Characteristics of Organic Transistor Memories with Organic Semiconductor Floating Gates, Proceedings of the International Display Workshops Vol. 30, (2023/12), p. 1120-1121.
- [2] R. Hattori, S. Hattori, T. Kobayashi, H. Naito, and T. Nagase, Vertically-Phase Separated Organic Floating-Gate Layers for High-Performance Organic Phototransistor Memory, in preparation.
- [3] K. Morikawa, K. Nakagawa, S. Hattori, T. Kobayashi, H. Naito, and T. Nagase, Optoelectronic Artificial Synapse Based on Organic Phototransistor Memory with Self-Organized Organic Floating Gates for Neuromorphic Vision Sensors, in preparation.

### 口頭発表, 受賞等

- [1] 森川和慶、中川和紀、西田直之、永瀬 隆、小林隆史、内藤 裕義、塗布型イメージセンサの高機能化に向けた有機フロー ティングゲートメモリのシナプス特性の評価、第83回応用 物理学会秋季学術講演会、講演予稿集 11-159, 2022年9月、 仙台. (Poster Award 受賞)
- [2] 森川和慶,中川和紀,永瀬隆,小林隆史,内藤裕義,塗布

形成した電荷蓄積層を有する不揮発性有機トランジスタメモ リにおけるシナプス特性,薄膜材料デバイス研究会第19回 研究集会,講演予稿集 p.77-80,2022年11月,京都.(スチ ューデントアワード受賞 受賞者:森川和慶)

- [3] 西田直之,永瀬 隆,小林隆史,内藤裕義、ドナー・アクセ プタ型高分子半導体用いた塗布型有機フローティングゲート メモリの素子特性と動作機構,薄膜材料デバイス研究会第
   19 回研究集会,講演予稿集 p. 217-220, 2022年11月,京都
- [4] T. Nagase, Organic floating-gate phototransistors for printable nonvolatile memories and image sensing devices, 13th International Conference on Organic Nonlinear Optics/2022 International Conference on Organic Photonics and Electronics, Lecture number I1-6, Nov. 2022, Nara, Japan. (招待講演)
- [5] T. Adachi, T. Nagase, N. Nishida, T. Kobayashi, and H. Naito, Device characteristics of electrically programmable organic transistor memories using polymersmall molecules composite floating-gate layers, The 13th International Conference on Nano-Molecular Electronics, Lecture number P-24, Dec. 2022, Tokyo, Japan.
- [6] K. Morikawa, T. Nagase, K. Nakagawa, N. Nishida, T. Kobayashi, and H. Naito, Optoelectronic artificial synapse device based on organic floating-gate memory, The 13th International Conference on Nano-Molecular Electronics, Lecture number P-59, Dec. 2022, Tokyo, Japan.
- [7] 安達天規、西田直之、永瀬隆、小林隆史、内藤裕義、両極 性高分子半導体を用いた有機フローティングゲートメモリの 特性改善、第70回応用物理学会春季学術講演会、講演予稿 集 11-334, 2023 年 3 月、東京.
- [8] 森川和慶、中川和紀、西田直之、永瀬 隆、小林隆史、内藤 裕義、塗布型有機フローティングゲートメモリのシナプス特 性の発現機構、第70回応用物理学会春季学術講演会,講演予 稿集 11-221, 2023 年 3 月、東京.
- [9] シ ウテイ、奥田萌斗、森川和慶、安達天規、西田直之、永 瀬 隆、小林隆史、内藤裕義、プラスチック基板を用いた有 機フォトトランジスタメモリの特性評価、第70回応用物理 学会春季学術講演会、講演予稿集 11-333, 2023 年3 月、東 京、
- [10] T. Adachi, N. Nishida, T. Kobayashi, H. Naito, and T.

Nagase, Electrically programmable organic floatinggate memory with enhanced hole trapping characteristics, KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics 2023, Lecture number P1-22, Aug. 2023, Fukuoka, Japan

- [11] Y. Shi, T. Adachi, K. Morikawa, S. Hattori, K. Nakagawa, T. Kobayashi, H. Naito, and T. Nagase, Electrical performance of top-gate pentacene organic transistor memory with organic composite floating-gate layer, KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics 2023, Lecture number P1-23, Aug. 2023, Fukuoka, Japan
- [12] K. Morikawa, K. Nakagawa, N. Nishida, T. Kobayashi, H. Naito, and T. Nagase, Optoelectronic synaptic characteristics of organic floating-gate memories with organic composite charge storage layers, KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics 2023, Lecture number P2-61, Aug. 2023, Fukuoka, Japan
- [13] 服部秀政,安達天規,森川和慶,小林隆史,内藤裕義,永 瀬隆,ジナフトチエノチオフェンを用いた有機フローティ ングゲート有機トランジスタの書込特性,第84回応用物理 学会秋季学術講演会,講演予稿集 11-072, 2023 年9月,熊 本.
- [14] 安達天規、小林隆史、内藤裕義、永瀬 隆、NAND型フラッシュメモリの開発に向けた両極性高分子半導体を用いた有機フローティングゲートメモリの正孔蓄積特性の向上、薄膜材料デバイス研究会第20回研究集会、講演予稿集 p.66-68,2023年11月、京都.
- [15] 森川和慶,服部秀政,小林隆史,内藤裕義,永瀬隆,溶液 プロセスを用いた有機フローティングゲートメモリの光応答 シナプス特性の発現機構の解明,薄膜材料デバイス研究会 第20回研究集会,講演予稿集 p.71-73,2023年11月,京都
- [16] シ ウテイ、安達天規、森川和慶、服部秀政、中川和紀、小 林隆史、内藤裕義、永瀬 隆、塗布成膜した有機フローティ ングゲート層を有するトップゲート型ペンタセン有機トラン ジスタメモリの電気特性、薄膜材料デバイス研究会 第20回 研究集会、講演予稿集 p. 63-65、2023 年11 月、京都.
- [17] 服部秀政,森川和慶,安達天規,小林隆史,内藤裕義,永瀬 隆,有機半導体フローティングゲートを有する有機フォトト ランジスタメモリの書込特性,薄膜材料デバイス研究会第

20回研究集会,講演予稿集 p. 186-188, 2023年11月, 京都.

- [18] K. Morikawa, S. Hattori, N. Nishida, T. Kobayashi, H. Naito, and T. Nagase, Optoelectronic synaptic characteristics of organic transistor memories with organic semiconductor floating gates, The 30th International Display Workshops, Lecture number Lecture number FLX2-4L, Dec. 2023, Niigata, Japan. (Best Student Paper Award)
- [19] 服部秀政,安達天規、森川和慶,小林隆史,内藤裕義、永瀬 隆,分子フローティングゲートを有する有機トランジスタの アナログシナプスデバイスへの応用,第71回応用物理学会 春季学術講演会,講演予稿集11-365,2024年3月,東京.

#### 参考文献

- F. Shiono, H. Abe, T. Nagase, T. Kobayashi, and H. Naito, Org. Electron. Vol. 67, p. 109-115, 2019年4月.
- H. Abe, R. Hattori, T. Nagase, M. Higashinakaya, S. Tazuhara, F. Shiono, T. Kobayashi, and H. Naito, Appl. Phys. Express Vol. 14, p. 041007, 2021年3月.
- (3) M. Higashinakaya, T. Nagase, H. Abe, R. Hattori, S. Tazuhara, T. Kobayashi, and H. Naito, Appl. Phys. Lett. Vol. 118, p. 103301, 2021年3月.
- (4) M. Higashinakaya, T. Nagase, R. Hattori, S. Tazuhara,
  T. Kobayashi, and H. Naito, Proc. Inter. Display
  Workshops Vol. 27, p. 882-883, 2020年12月.
- (5) F. Zhou, Z. Zhou, J. Chen, T. H. Choy, J. Wang, N. Zhang, Z. Lin, S. Yu, J. Kang, H. -S. P. Wong, and Y. Chai, Nature Nanotech. Vol.14, p. 776-782, 2019年7月.
- Y. Shen, M. W. Klein, D. B. Jacobs, J. C. Scott, and
  G. G. Malliaras, Phys. Rev. Lett. Vol. 86, p. 3867-3870, 2001 年4 月.