

塚越一仁

(独)物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトゥクス研究拠点・主任研究者

ナノ界面・電子状態制御による高速動作有機トランジスタ

## §1. 研究実施の概要

有機材料に特有の機能を活かして、プラスチックエレクトロニクスを実現することを目指し、プラスチックエレクトロニクスの主要要素である有機トランジスタの動作機構の基礎解明と制御の確立を試みている。この有機トランジスタの魅力は、形状形成に際しての自己組織化と薄膜の柔軟性である。分子間力による自己組織化によって、従来の半導体素子形成プロセスとの比較では想定できない室温程度の温度域で成膜が出来る。この低温形成は、高温では溶解もしくは焼失するプラスチック基板の様な基板上に素子を直接形成できる。この性質によって、有機材料で作製した素子の形状柔軟性と基板の形状柔軟性が得られ、従来のガラスなどの硬質基板と比較して、柔軟なエレクトロニクスの提案が可能となる。一方で、有機薄膜を使った電界効果移動度はルブレン単結晶トランジスタに於いて  $20\sim 30\text{cm}^2/\text{Vs}$  にも達することが実験的に見出され、Mott 転移を使った電界効果有機素子では約  $100\text{cm}^2/\text{Vs}$  にも達する。この内在するポテンシャルを引き出し、上記の自己組織化を引き出した薄膜トランジスタの形成技術を確認することが出来れば、新たなエレクトロニクスを生み出すことができるはずである。しかしながらこれらの魅力的性質を同時に塩梅良く引き出せるシステムを、自己組織化を有効に使う配列することは容易ではない。蒸着法などで形成する多結晶薄膜では電界効果移動度は通常  $0.1\text{cm}^2/\text{Vs}$  程度であり、作り方によって揺らぎも大きく、有機薄膜の本来の特性を最大限に引き出しているとは言えない。この要因の解明と制御法を見つけて出すことが学術的に大変興味深いことであり、応用を考慮した実学においても要請が高い。実際に、有機トランジスタ実用を目指すメーカーから有機トランジスタ伝導機構の確定的な解明が強く望まれている。

有機トランジスタの特性を議論するに当たり、一般的には分子合成に依る新規分子を作り出すことに焦点があてられていた。しかし、どのような分子を作り出すべきかの議論が不十分であり、単に電界効果移動度を高くすることが指標となっていた。これに対して、我々は極めて高い端子抵抗が有機トランジスタの特性を低下させている要因と見極め、この要因を解明して制御することを目指している。実際に、有機トランジスタの電流注入抵抗は、通常数  $k\sim$  数  $10k\Omega\text{cm}$  であり、この

高注入抵抗が高い動作電圧(一般に数 10V~100V 程度)の要因である。結果として、高注入抵抗は AC 動作における高速動作律則要因となっており、実際の画素駆動トランジスタとしての適応を検討する場合の懸案要因である。また、注入抵抗が高い素子ほど、ゲート電圧やドレイン電圧走印でのヒステリシスが際だって大きくなり、駆動の制御性も低下することも実験で明らかにすることができた。

直近の応用展開のためには、端子抵抗を低下させるために、金属/有機半導体界面に電荷を供給しうる分子もしくは薄膜を挿入する。この挿入薄膜が界面にて起こす相互作用の機構を調べた。これによって、界面での電荷トラップサイトの低減と端子抵抗の相関を見出すことに成功した。さらに、界面電荷トラップサイトの無いトラップフリー界面を実現するために、有機結晶トランジスタの実現を提案し、新たなトランジスタ作製法の開発を有機分子の自己組織化に基づいて追及している。

## §2. 研究実施体制

### (1)「有機トランジスタの界面制御と短チャネル素子(塚越)」グループ

① 研究分担グループ長:塚越一仁 ((独)物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクニクス研究拠点、主任研究者)

#### ② 研究項目

- ・研究統括
- ・界面制御と短チャネル素子
- ・面内伝導システムの基礎伝導解析

### (2)「有機半導体基礎伝導(岩佐)」グループ

① 研究分担グループ長:岩佐 義宏 (東京大学 工学系研究科、教授)

#### ② 研究項目

- ・新奇機能性有機トランジスタの探索
- ・有機単結晶を用いた発光トランジスタ

### (3)「面内伝導システム基礎伝導(神田)」グループ

① 研究分担グループ長:神田晶申 (筑波大学数理物質科学研究科、准教授)

#### ② 研究項目

- ・面内伝導システムにおけるグラフェンの基礎伝導特性の解明

### §3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する)

#### 3.1 有機/金属界面における電流注入

##### 3.1.1 電極から有機薄膜までの界面伝導・電荷注入層を持つ有機 FET

有機/金属界面は、古典的な半導体/金属界面として近似的なモデルで説明される場合が一般的である。このモデルでは、金属のフェルミ準位と(p型)有機半導体の HOMO レベルのエネルギー差によって、界面の障壁高さが決まる。実際のデバイスにおいては、このシンプルな古典的モデルでは説明できない現象が観測される。

コンタクト界面がデバイス特性に与える影響を系統的に調べるために、図 1 のような有機 FET を作製した。まず酸化膜 (200 nm) 付シリコン基板の表面をフェニル系単分子膜で処理した後、半導体層としてペンタセン (40 nm) を形成した。有機/金属界面の影響のみを調べるため、電荷注入層としてコンタクトに各種金属 (Au, Cu, Al) を 2 nm 挿入し、さらに大気下で安定な Au を 38 nm 蒸着して電荷注入層を覆うことでソース・ドレイン電極を形成し (図 1)、素子を一度大気下に取り出した後に測定を行った。(本実験を、“Ex-situ”とする。)

飽和領域におけるドレイン電流 (図 2) に関して、電極と半導体のエネルギーレベルアライメントによる一般的な予測では、仕事関数 ( $W_F$ ) の値に従って Au ( $W_F = 5.1$  eV)、Cu ( $W_F = 4.65$  eV)、Al ( $W_F = 4.28$  eV) の順に良好なコンタクトが得られると筈である。しかし、実際に得られたドレイン電流値は Al、Cu、Au 順で高く、予測とは逆の結果となる。さらに、素子のコンタクト抵抗の Transmission line model (TLM) による評価 (図 3(a)) では、Al、Cu、Au の順で低くなる (図 3(b))。有機/金属界面の電荷注入には、従来モデルでは説明出来ない現象が再現性良く現れる。[発表論文投稿中]

##### 3.1.2 In-situ 測定

界面金属によるコンタクト抵抗低減を目指して、電流注入の詳細を調べた。デバイスの作製から評価までを大気に暴露することなく行うことで、酸素や水といっ

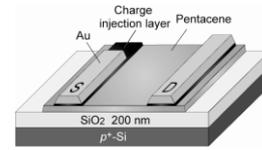


図 1 電荷注入層を有するトップコンタクト有機 FET。

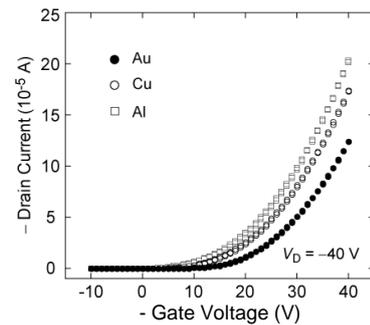


図 2 Au、Cu、Al を電荷注入層に用いた有機 FET の伝達特性。

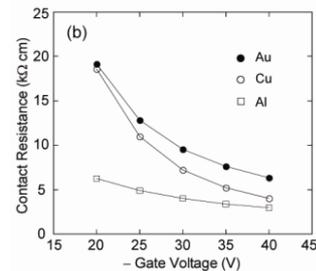
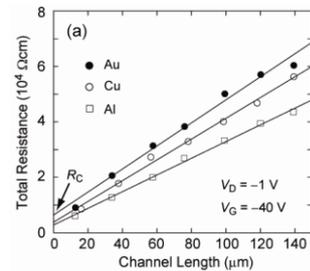


図 3 Au、Cu、Al を電荷注入層に用いた有機 FET の TLM プロット (a) とコンタクト抵抗 (b)。

た外因的な影響の一切を排した測定を行った(本比較実験を、“In-situ”とする)。この In-situ 実験では、ex-situ と比較して決定的な差異を得た。In-situ の作製・測定プロセスは、真空蒸着装置とグローブボックスを連結したシステム内にて以下のように行った。Ex-situ の場合と全く同様の前処理を行ったシリコン酸化膜基板を、連結システムの真空蒸着装置に導入した。ペンタセン(40 nm)を真空蒸着した後にグローブボックス内 N<sub>2</sub> 雰囲気下(酸素<1 ppm、水<1 ppm)でマスクの交換を行い、試料を蒸着装置内に戻して Au、Cu、Al の電荷注入層を有する 2 層電極を形成した。その後、再びグローブボックス内において特性の評価を行った。飽和領域における伝達特性(図 4)は、Ex-situ の測定結果(図 2)とは異なり、ドレイン電流値は Au、Cu、Al の順で大きく、電荷注入層の仕事関数から予測される結果と一致した。この結果から、ex-situ におけるコンタクト抵抗の減少は、大気中による電荷注入層の変化に因る。特に、Au を基準に考えると、界面の酸化が要因と推測される。

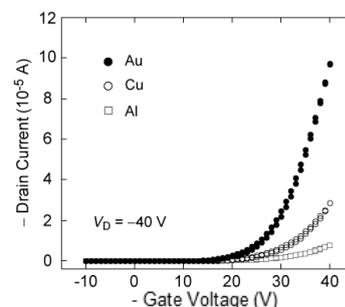


図 4 大気に曝すことなく素子作製・測定を行った、Au、Cu、Al を電荷注入層に用いた有機 FET の伝達特性。

### 3.1.3 金属／半導体界面の電荷移動現象

以上の結果は、大気に暴露した有機 FET のコンタクト界面には金属自然酸化膜が自ら形成し、電荷注入機構に大きな影響を与えていることを示している。界面の金属酸化膜によって注入抵抗が減少するメカニズムとして、次の 2 点が考えられる。第 1 の可能性は、酸化膜の荷電子帯(VB)を介したペンタセンへの電荷注入である(図 5(a))。金属酸化物の内部準位または不純物準位によって金から電荷が酸化物の深い VB に注入され、さらにペンタセンに注入されることで障壁高さが下がる可能性がある。しかし、金の仕事関数は一般的に 4.7-5.1 eV 程度と言われており、そもそもペンタセンの VB に対してそれほどの障壁高さを持つとは考えにくい。第 2 の可能性は、金属酸化膜とペンタセン間の電荷移動である(図 5(b))。ペンタセンの HOMO から酸化物の伝導体(CB)に対して電荷が移動することで金属／ペンタセン界面に正孔が生成し、それがコンタクト界面トラップを埋めることによって注入抵抗が下がると考えられる。

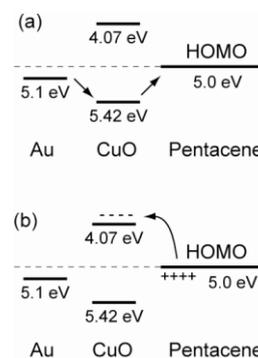


図 5 電極界面の自然酸化膜形成による電荷注入抵抗減少の模式図。(a) 酸化膜の VB を介した伝導。(b) 酸化膜とペンタセン間の電荷移動によるキャリア生成。

### 3.1.4 Ni 自然酸化膜による抵抗制御

金属自然酸化膜を効果的に用いて、より簡便な構造でコンタクト抵抗を制御することもできる。シリコン酸化膜基板上にペンタセンを 40 nm 蒸着し、大気下に取り出した後に、Au ソース・ドレイン電

極を形成し、通常のトップコンタクト型構造を有する有機 FET を作製した。その上面に電荷ドープ層として Ni を 0.5 nm 真空蒸着し、図 6(a) のような構造の有機 FET を作製した。素子を大気下でしばらく放置した後に N<sub>2</sub> 雰囲気下で電気測定を行った。線形領域におけるドレイン電流(図 6(b))は、Ni 層を蒸着したことにより上昇し、Ni 層を持たない素子と比較して線形領域における移動度は 0.42 から 0.64 cm<sup>2</sup>/Vs へ、飽和領域における移動度は 0.48 から 0.66 cm<sup>2</sup>/Vs へと 1.5 倍に改善された。

この改善効果の要因を明らかにするため、TLM 法によるプロットを行った(図 6(c))。得られたコンタクト抵抗を図 6(d) に示すが、Ni 層を形成したことでコンタクト抵抗は約 1/4 に減少し、ゲート電圧 -40 V において 1710 Ωcm にまで低減された。それでは、(コンタクト界面に挿入された訳ではなく)デバイスの上面に形成された Ni 層が、どのようなメカニズムでコンタクト抵抗を低減したのであろうか。それは、有機 FET への電荷注入は、主にトップコンタクト電極の端から行われていることを示している(図 7)。ペンタセンと Ni 膜との間の電荷移動により、電極端近傍まではキャリアが豊富でトラップの少ない領域が形成されるであろう。金はペンタセンと比較して伝導度が非常に高いため、電極端までは電流は金の中を伝導し、端から注入される。その近傍のトラップ密度を Ni 層によって下げることでコンタクト抵抗が低くなると解釈できる。

### 3.1.5 トラップフリーチャネル形成のための自己組織化結晶チャネル

有機分子の特徴である自己組織化を利用したチャネル作製法を検討した。まず、有機半導体と絶縁膜界面は、2つの分子が自発的に層分離する方法を用いた(図 8)。低分子有機半導体材料と絶縁体ポリマーの 2 種類の分子材料を混合し、溶液に溶かして基板上に滴下しスピンコートすると、2 種類の分子は基板上で自然に分離する。ポリマー膜層が基板直上、その上層に低分子膜層が形成される。ステップ2として、2 種分子混合溶液を作る溶媒の蒸気に曝すと(図 9)、2 層に分かれた上層の低分子が基板上で再構成され結晶を作ることが分かった。長さ数 100 ミクロンの大きさ

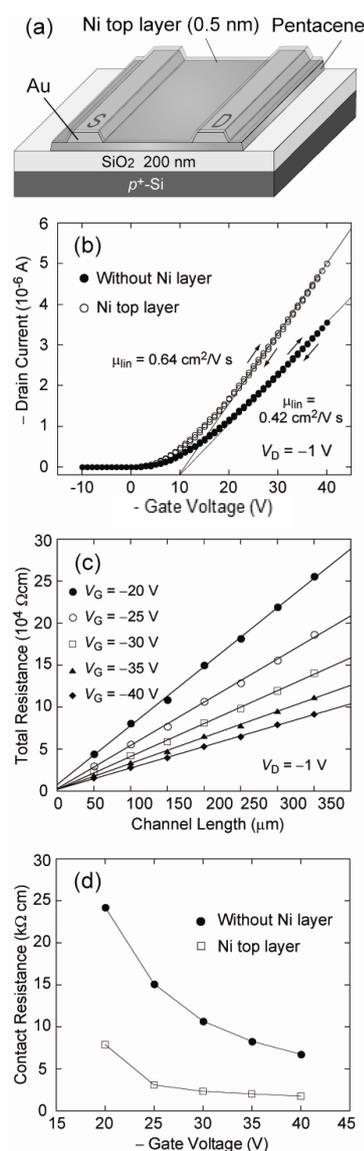


図 6 (a) Ni 電荷移動層を上面に形成した有機 FET の模式図。(b) Ni 層の有無による伝達特性変化。Ni 層を有する素子の TLM プロット(c)とコンタクト抵抗(d)。

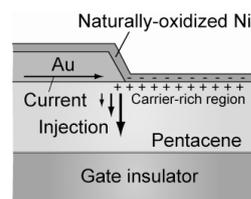


図 7. 電極端からの電荷注入における自然酸化膜効果模式図。

まで成長させることができた。この結晶成長法では、真空装置などは不要である。

今回用いた“層分離塗布法”と“溶媒アニール法”は、それぞれ別個に開発されて他の材料で研究されており、其々効果があることは分かっていたが、特別に優れた素子は得られていなかった。これに対して、我々は2つの方法を組み合わせ、さらに其々の方法の特徴を最適化するための材料選択や諸条件を見つけ出して、有機半導体結晶を基板上で直接作ることに成功した。

この有機結晶を用いて、トランジスタとして評価したところ、電界効果移動度が極めて高く、最大で  $9.1\text{cm}^2/\text{Vs}$  に達し、塗布作製トランジスタとして世界最高となった。従来は、結晶粒界や、絶縁膜と有機薄膜界面の物理的な凹凸や静電気的な乱れを制御できず、移動度の向上の障害要因となっていた。しかし、本方法は、有機分子自体が最も安定的な状態に帰着する自己組織化を用いたプロセスであり、これらの要因を大きく低減することができた。また、余計な結晶粒界がないために、素子の空気中での安定性が格段に向上した。

有機薄膜デバイスは水蒸気や酸素によって容易に特性が変化するために、空気に触れ無いようなシステム(アルゴンガスもしくは窒素ガス中など)にて素子を作らなければならないが、本方法は通常空気中にて作製できるため、成膜システムが非常に簡略化出来る。

さらに、学術的な点でも大きな進展を見出した。温度特性を測定したところ、冷却に伴って移動度は低下することなく上昇し、結晶粒界や不純物散乱などの影響が小さいことを示した。これは、この有機結晶トランジスタの伝導機構がバンド状伝導であることを明瞭に示しているものであり、本研究の有機半導体結晶は、有機半導体の本質を研究する上でも高い評価を受けている<sup>20)</sup>。

### 3.2 チャネル伝導特性

昨年度は、有機/絶縁体界面に存在する電子トラップの起源探索、およびカルシウム/有機単結晶界面評価方法の確立、さらには電気2重層を用いた新概念に基づく有機単結晶両極性トランジスタ作製を行った。これらは、新しい発光トランジスタさらにはレーザーデバイス提唱に結びつく重要なマイルストーンである。

これまでの研究成果により金属/有機単結晶界面に関する理解は急速に深まっており、その結果として様々な高効率発光材料を用いた両極性発光トランジスタが実現した。現状において、更なる

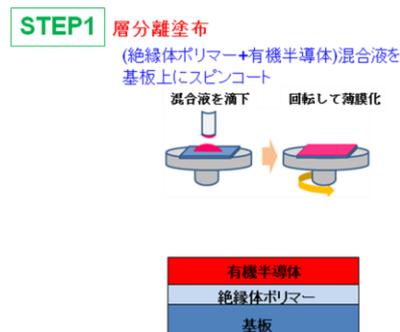


図 8. 塗布作製法のステップ 1. 2 種分子を混合し、基板上にスピン塗布するだけで、絶縁部位と半導体部位が分離する。

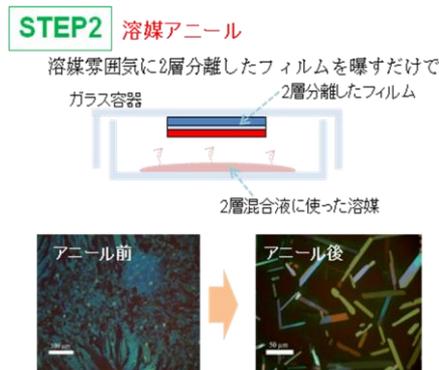


図 9. 第 2 ステップ。ガラス容器に試料と溶媒を簡単に封じ込めて保持するだけで、絶縁ポリマー状の有機半導体膜が分子レベルで再構成されて結晶化する。

発展の足枷となっているのは有機/絶縁膜界面に存在する電子トラップといえる。これら電子トラップは電子移動度を大幅に低減させ、発光トランジスタが到達可能な電流密度も制限する。この問題を解決するため、一つには、発光解析を用いた接触抵抗の評価方法を確立し、金属/半導体界面と絶縁体/半導体界面に生じている問題を明確に分離する事に成功した。これまで、不安定なカルシウム電極を使用した場合には接触抵抗の評価方法が確立されておらず、これが電子トラップの問題を複雑化させていたが、電子伝導における絶縁体/半導体界面を議論できる下地を確立した。[発表論文投稿中]

次に、有機絶縁膜作製時の溶媒依存性や物理吸着物に対する依存性を徹底的に明らかにした。その結果、残留有機溶媒が界面トラップの一要因であることを初めて明らかにした。図10では、PMMA 絶縁膜をスピコート法で作製するとき用いる、溶媒依存性を示した。沸点が高く PMMA 膜中の残留量が多いと思われる Chlorobenzene に比べ、沸点が低く残留量が少ないと思われる Ethylacetate を用いた場合は、大幅に電子電流が増幅されている。物理吸着物に関しても同様の電子電流増幅効果が観測されている。図11に、グローブボックス中の保存期間依存性を示す。グローブボックス内に1日間保存した場合に比べ、より吸着物が脱離していると考えられる17日間保存した同じデバイスでは、電子電流が大幅に増幅している。このような手法を用いた改善の結果として、両極性発光トランジスタが達成可能な電流密度を、既存の素子に比べ一桁以上大きな値まで押し上げる事に成功し、非常に明るい発光を観測する事に成功した(図12)<sup>13,15)</sup>。

更に、根本的に新しい概念として、固体絶縁膜を用いない電気 2 重層トランジスタを両極性発光トランジスタに導入した。電気 2 重層トランジスタは、通常の固体絶縁膜に比べ桁違いに大きな静電容量を有している。そのため、到達可能な電流密度を数桁上昇させる切り札となりえる。これまで、有機単結晶を用いた電気 2 重層トランジスタでは両極性伝導が実現されていなかった。その原因に、電子注入障壁の問題

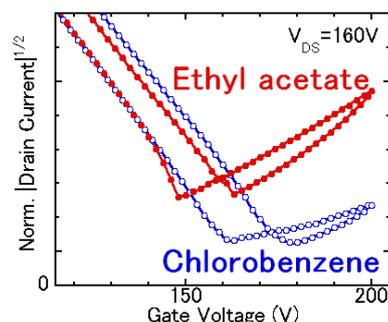


図 10. トラップの溶媒分子依存性。  
Chlorobenzene を溶媒用いた場合に比べ、Ethylacetate では電子電流が増幅している。

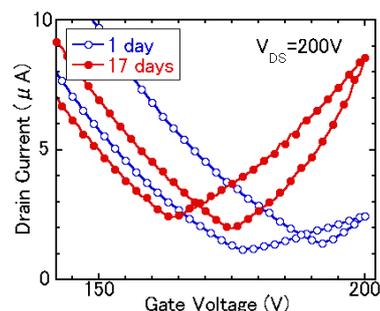


図 11. トラップの吸着分子量依存性。グローブボックス内で1日放置した場合に比べ、17日後では電子電流が増幅している。

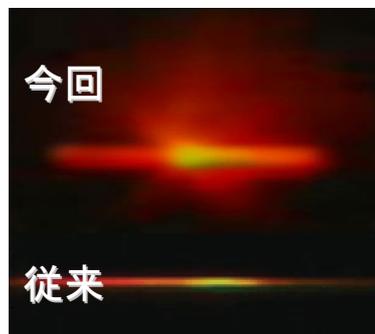


図 12. 高電流密度下での発光。

があげられる。電子を注入するには、反応性の高いカルシウム電極が不可欠である。しかしながら、これらは電気 2 重層を形成する電解質によって、瞬時に酸化されてしまう。この問題を解決するため、電極が電解質と全く触れないユニークなデバイス構造を考案し、世界初の両極性電気 2 重層有機トランジスタ実現に成功した。[発表論文投稿中]

カルシウム/有機単結晶界面評価方法の確立、電子トラップの軽減、さらには電気 2 重層を用いた新概念に基づく有機単結晶両極性トランジスタ作製などの成果は、どれも到達可能な電流密度を底上げする成果であり、これらは新しい発光トランジスタさらにはレーザーデバイス提唱に結びつく重要なマイルストーンである。(岩佐グループ担当)

### 3.3 高速パイ電子系伝導システム

原子 1~数層からなる単層・多層グラフェンは、移動度の高さ、素子作製の自由度の高さにより新たな 2 次元電子材料としての可能性を持つ。この特性を電子素子として引き出すことを目指して、グラフェンの基礎伝導特性を検討した。薄膜グラファイトチャネルを SiO<sub>2</sub>/高ドープ Si 基板上に剥離法で形成し、Ti 電極ならびに Al 電極を電子ビーム露光と金属リフトオフ法で作製した。Al 電極はグラファイト上に直接形成するにも関わらず、自己形成にて界面に絶縁層を形成しグラファイトチャネルに対して電氣的絶縁となる独自の方法である。(この Al 自己組織化ゲート絶縁膜は、世界の競合研究グループから頻繁な問い合わせを頂き、今後グラフェン素子形成のポイントとなる可能性がある。)

グラフェンは原子スケール厚のため、金属的電子状態であるにもかかわらず、電界を印可すること

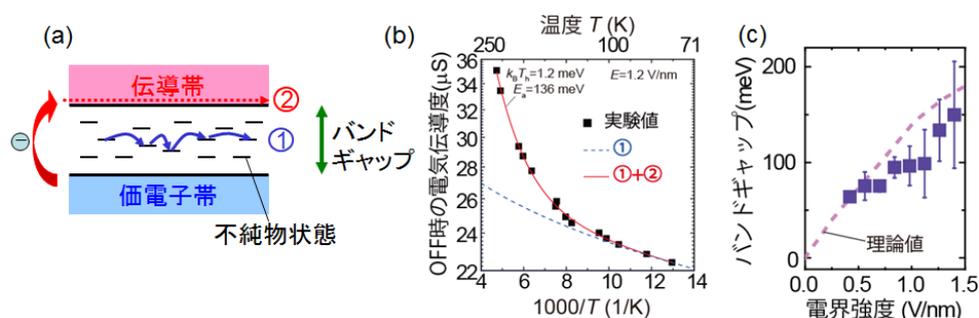


図 13. (a) バンドギャップが開いたグラフェンにおける電気伝導のモデル。メカニズム①:バンドギャップ内の不純物由来の電子順位を介した伝導。伝導性は弱いですが、小さなエネルギーでも伝導電子が励起するので、低温においても電気伝導がおこる。メカニズム②:価電子帯から伝導体に励起された電子による伝導。伝導性は高いが、大きな励起エネルギーが必要なため、低温では抑制される。(b)OFF 抵抗の温度依存性と、左図のモデルに基づいた解析。トランジスタ OFF 時の素子の電気伝導度の温度変化。点線は、左図のメカニズム①による低温部分のフィッティング。実線はメカニズム①と②の共存を仮定し、全温度域に対してフィッティングした結果。この温度変化は片方のメカニズムだけでは説明できない。(c)解析によって求めたバンドギャップの電界強度依存性と、その理論計算の結果。電気伝導度の温度依存性へのフィッティングによって抽出したバンドギャップ。理論計算(破線)は良く一致する。

で電気伝導を変化させることは可能である。しかし、バンドギャップがないことから、スイッチング素子として適応用途が限られてしまうことが問題であり、バンドギャップの導入が世界中で盛んに議論されている。これに対して、2層のグラフェンに垂直電界を印加することで、グラフェンにバンドギャップを導入でき半導体的な特性が得られるはずであることが理論的に指摘されていた。実験的には、このバンドギャップは光学的研究によって存在が示されていたが、電子素子としての電気伝導特性においては明瞭に観測することができず、Missing Gap とされ、原因究明が世界中で議論されていた。

独自開発の世界で最も効率的に電界印加を可能とするゲート絶縁膜自己形成法を用いて、グラフェンに垂直電界を印加し、素子の温度特性から、バンドギャップを有する伝導体に特有の特性を見出すことができた。1.5V/nm 前後の電界を印加すると、素子抵抗が印加電界に従って増大する。この電界印加によって、グラフェントランジスタの課題である電流オン/オフ変調を増大することができ、現時点で最大 400 まで達することに成功した(図 13)<sup>7)</sup>。

さらに、Missing Gap の出現に必要な物理要因を見出すことに成功した。電界を印加してバンドギャップを形成した際に、グラフェン中もしくは周辺に存在する不純物状態が作る状態を介して、バリアブルレンジホッピングが生じていることが明らかになった。課題は、この“不純物状態”の要因が未だ解明できていないことであり、今後解明し制御しなければならない。しかし、本成果はグラフェン研究の大きな疑問に解を示した成果として評価されており、今後の発展の基礎となると思われる。(神田・塚越グループ担当)

## §4. 成果発表等

### (4-1) 原著論文発表

#### ●論文詳細情報

1. Direct evaluation of low-field mobility and access resistance in pentacene field-effect transistors,  
Yong Xu, T.Minari, K.Tsukagoshi, J.A.Chroboczek, G.Ghibaudo,  
Journal of Applied Physics 107 (11) 114507/1-7 (2010).
2. Low operating bias and matched input-output characteristics in graphene inverters  
S.-L.Li, H.Miyazaki, A.Kumatani, A.Kanda, K.Tsukagoshi,  
Nano Letters 10 (7) 2357-2362 (2010).
3. Extraction of low-frequency noise in contact resistance of organic field-effect transistors,  
Yong Xu, T.Minari, K.Tsukagoshi, R.Gwoziecki, R.Coppard, F.Balestra,  
J.A.Chroboczek, G.Ghibaudo,  
Applied Physics Letters 97 (3) 033503/1-3 (2010).

4. Understanding contact behavior in organic thin film transistors,  
Sui-Dong Wang, Yan Yan, Kazuhito Tsukagoshi,  
*Applied Physics Letters* 97 (6) 063307/1-3 (2010).
5. Determination of the Number of Graphene Layers: Discrete Distribution of the  
Secondary Electron Intensity Stemming from Individual Graphene Layers  
H.Hiura, H.Miyazaki, K.Tsukagoshi,  
*Applied Physics Express* 3 (9) 095101/1-3 (2010).
6. Influence of Electrode Size on Resistance Switching Effect in Nanogap Junctions,  
H.Suga, M.Horikawa, S.Odaka, H.Miyazaki, K.Tsukagoshi, T.Shimizu, Y.Naitoh  
*Applied Physics Letters* 97 (7) 093118/1-3 (2010).
7. Influence of disorder on conductance in bilayer graphene under perpendicular  
electric field,  
H.Miyazaki, K.Tsukagoshi, A.Kanda, M.Otani, and S.Okada  
*Nano Letters* 10 (10) 3888-3892 (2010).
8. Theoretical study of superconducting proximity effect in single and multi-layered  
graphene  
M.Hayashi, H.Yoshioka, A.Kanda  
*Physica C*, S 846-847 (2010).
9. Effect of current annealing on electronic properties of multilayer graphene  
S Tanaka, H Goto, H Tomori, Y Ootuka, K Tsukagoshi, A Kanda  
*Journal of Physics, Conference Series*, 232, 012015 (2010).
10. Inverse spin valve effect in multilayer graphene device  
H. Goto, H. Tomori, S. Tanaka, Y. Ootuka, K. Tsukagoshi, A. Kanda,  
*Journal of Physics, Conference Series*, 232, 012002 (2010).
11. Fabrication of ultrashort graphene Josephson junctions  
H.Tomori, A.Kanda, H.Goto, S.Takana, Y.Ootuka, K.Tsukagoshi  
*Physica C* 470, 1492-1495 (2010).
12. Dependence of proximity-induced supercurrent on junction length in multilayer  
-graphene Josephson junctions  
A.Kanda, T.Sato, H.Goto, H.Tomori, S.Takana, Y.Ootuka, K.Tsukagoshi,  
*Physica C* 470, 1477-1480 (2010).
13. Electron transport in rubrene single-crystal transistors,  
S. Z. Bisri, T. Takenobu, T. Takahashi, Y. Iwasa  
*Applied Physics Letters* 96 (18) 183304/1-3 (2010).
14. Transport mechanism in metallic and semiconducting single-walled carbon  
nanotube networks,  
K.Yanagi, H.Udoguchi, S.Sagitani, Y.Oshima, T.Takenobu, H.Kataura, T.Ishida,

- K.Matsuda, Y.Maniwa,  
ACS Nano 4 (7) 4027-4032 (2010).
15. High current densities in a highly photoluminescent organic single-crystal light-emitting transistor,  
K.Sawabe, T. Takenobu, S. Z. Bisri, T. Yamao, S. Hotta, Y. Iwasa  
Applied Physics Letters 97 (4) 043307/1-3 (2010).
16. Tunable carbon nanotube thin-film transistors produced exclusively via inkjet printing,  
H. Okimoto, T. Takenobu, K. Yanagi, Y. Miyata, H. Shimotani, H. Kataura, Y. Iwasa  
Advanced Materials 22 (36) 3981-3986 (2010).
17. Ultrasensitive detection of DNA molecules with high On/Off single-walled carbon nanotube network,  
D. Fu, H. Okimoto, C. W. Lee, T. Takenobu, Y. Iwasa, H. Kataura, L.-J. Li  
Advanced Materials 22 (43) 4867-4871 (2010).
18. Green light emission from the edges of organic single-crystal transistors,  
Y. Yomogida, T. Takenobu, H. Shimotani, K. Sawabe, S. Z. Bisri, T. Yamao, S. Hotta,  
Y. Iwasa  
Applied Physics Letters 97 (17) 173301/1-3 (2010).
19. Microscopic mechanisms behind the high mobility in rubrene single-crystal transistors as revealed by field-induced electron spin resonance,  
K. Marumoto, N. Arai, H. Goto, M. Kijima, K. Murakami, Y. Tominari, J. Takeya, Y. Shimoi, H. Tanaka, S. Kuroda, T. Kaji, T. Nishikawa, T. Takenobu, Y. Iwasa  
Physical Review B 83 075302 (2011).
20. Organic Single Crystals Directly Grown on Polymer Dielectric via Solution Process and Field Effect Transistors with Band-like Transport,  
C.Liu, T.Minari, X.Lu, A.Kumatani, K.Tsukagoshi, K.Takimiya,  
Advanced Materias 23 (4) 523-526 (2011).
21. Enhanced Logic Performance with Semiconducting Bilayer Graphene Channels,  
S.-L.Li, H.Miyazaki, H.Hiura, C.Liu, K.Tsukagoshi,  
ACS nano 5 (1) 500-506 (2011).
22. Control of device parameters by active layer thickness in organic field-effect transistors  
Masataka Kano, Takeo Minari, Kazuhito Tsukagoshi, Hiroki Maeda,  
Applied Physics Letters 98 (7) 073307/1-3 (2011)
23. グラフェン素子の作り方とゲート電界による伝導変調 (小特集「グラフェンの視点から見た炭素材料」)

- 塚越一仁, 宮崎久生  
炭素 243号 (6) 110-115 (2010).
24. 2層グラフェン電気伝導の強電界効果,  
塚越一仁, 宮崎久生, 神田晶申  
固体物理 45 (11) 93-102 (2010).
25. 新たな世界を作り出した物質"グラフェン" - 流れを引き寄せた洞察力 -  
塚越一仁, 若林克法  
岩波「科学」 81 (1) 23-26 (2011).
26. 有機デバイスの半導体物理と界面機能,  
竹延大志, 岩佐義宏  
固体物理 45 133 (2010).
27. 磁気特性(スピン輸送)  
神田晶申, 塚越一仁  
炭素学、印刷中 (2011).
28. p-i-n Homojunction in Organic Light-Emitting Transistors,  
S. Z. Bisri, T. Takenobu, K. Sawabe, S. Tsuda, Y. Yomogida, S. Hotta, C. Adachi, Y.  
Iwasa,  
Advanced Materias, in press (2011).

#### (4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 2件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 9件)