

Title	High-density π -electron Interfaces Integrated in Microstructures and their Electric Functions
Author(s)	宇野, 真由美
Citation	大阪大学, 2010, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/58604
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	宇野真由美
博士の専攻分野の名称	博士(理学)
学位記番号	第 24165 号
学位授与年月日	平成 22 年 9 月 22 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科化学専攻
学位論文名	High-density π -electron Interfaces Integrated in Microstructures and their Electric Functions (微細構造を用いた高密度 π 電子界面の形成とその電子機能)
論文審査委員	(主査) 教授 中澤 康浩 (副査) 教授 小林 光 教授 岡田美智雄 教授 竹谷 純一

論文内容の要旨

物質の表面・界面は、様々な化学反応や電荷移動が起きる最前線であり、多彩な機能性を発現させることができる。例えば p-n 接合を利用したダイオード、発光素子、光発電素子や、電界効果型トランジスタ、分子吸着を利用したセンサデバイス等への応用が可能である。このため、こういった界面機能の詳細をとらえる物性研究は、学術的にも非常に興味深いうえ、エンジニアリングの基盤をなす重要な意味をもっている。しかし、界面現象は原理的に二次元系の応答であるため、通常バルク状物質で適用される示量性の測定では非常に小さい出力信号や微小な変化しか示さないという困難がある。そこで、本研究では、いわゆる MEMS(Micro Electro Mechanical Systems) 技術と呼ばれる三次元微細加工技術を用いて、機能性界面を高密度に三次元的に作製することにより、従来は不可能であった精密測定や新物性の検出を実現することを研究の長期目標としている。

機能性界面をなす材料としては、近年、産業応用の重要性からも非常に注目を集めている、有機半導体材料に着目した。有機半導体は、有機電界効果型トランジスタ(OFET) 構造を用いて、絶縁層に電界をかけることによって、その界面に電荷が蓄積された二次元 π 電子面を構築することができる。この構造を用いれば、電界強度を変調させることにより、キャリア密度をパラメータとして変化させることができるため、分子性固体表面での電子伝導のメカニズムを調べるための強力な手法として利用できる。

本研究では、微細な三次元構造を有する有機トランジスタ(3D-OFET) 構造を独自に開発し、有機半導体界面を従来と比べて非常に高い空間密度で微細構造の表面に作製することにより、高出力、低インピーダンス化を実現した。多数の有機半導体材料の中から材料選択の重要な指針を得るために、同一の有機単結晶内に伝導チャネルを多数構築した構造を開発し、二次元 π 電子面内における伝導性能、及びその方向依存性についての基礎データを得た。これを元に、有機半導体として大気中で安定であり高移動度を示す dinaphtho[2,3-b:2',3'-f]thieno[3,2-b]thiophene (DNNT) を採用し、3D-OFET 構造を作製することにより、従来に比べて桁違いに高出力な電流増幅特性を得た。論文では、本構造上に、簡便な溶液法により他の有機半導体材料を作製した例や、プラスチック基板上で同様の構造を作製した結果についても述べる。

さらに、本研究の手法を用いれば、有機半導体伝導チャネルの桁違いの高出力、低インピーダンス化が可能となるため、桁違いに精密な伝導度測定が可能になる。特に、有機固体の物性研究のために非常に重要となる低温領域でのキャリア移動度を測定する際、移動度が非常に低下することが多いため、これまで精密な測定が困難であった。本研究では、バンド伝導とホッピング伝導の境界にあるとされる有機固体中での電子伝導機構や、界面の不純物準位にトラップされた局在電子と伝導キャリアの相互作用による興味深い物性を明らかにすることを目的として、3D-OFET 構造を用いて低温までの精度良い伝導度測定を行い、伝導機構解明の手掛かりとなる実験結果を得た。

今後は、以上で得られた知見を元に、さらに詳細な物性研究や新たな機能発現を目指す研究へと発展させることを目指している。

論文審査の結果の要旨

物質の表面、界面は、様々な化学反応や電荷移動反応が起こる特異な場所である。そこでは、3次元的な構造をもつバルクとは異なった多様な現象があらわれる。新規な分子反応の構築、吸着分子の電子状態の理解、純粋二次元分子集合系としての機能探索など、新しい物理化学研究を行う上でも重要なステージである。 π 共役系が広がった分子軌道をもつ有機分子の薄膜多結晶や薄片単結晶を用いて作製した電界効果トランジスタは、有機結晶と絶縁体の界面へゲート電圧を用いて電荷注入することによって高移動度のキャリアをつくることができ、次世代エレクトロニクスへの応用として大きな期待がもたれる。しかしながら、これらの有機材料の応用を考える場合、素子のもつインピーダンスが高くなるため出力電流に限界が生じるなどの大きな問題がある。

宇野真由美氏は半導体微細加工技術を用いることによって μm オーダーの三次元加工を施した Si 基板を作成し、そこに有機分子を蒸着することによって高度に集積化した有機電界効果トランジスタ(OFET)の作成に初めて成功した。さらに、その特徴を生かした基礎物性研究を展開し、上記の問題点に有力な解決指針を与え、従来の有機電界効果トランジスタと比較して数百倍にも及ぶ機能性の向上、7MHz 以上での高速制御の実現、プラスチック基板を用いたフレキシブル化の実現性を進める上での有効なデータを得ることに成功した。これらの結果を、「High-Density π -Electron Interfaces Integrated in Microstructures and their Electronic Functions」(微細構造を用いた高密度 π 電子界面の形成とその電子機能)というタイトルの博士学位論文にまとめた。

論文は 7 章からなる。第 1 章で研究全体の背景を述べた後、第 2 章で有機電界効果トランジスタの構造と機能に関する概要、第 3 章で微細加工技術の概要がまとめられている。また第 4 章で本研究に用いた有機分子 DNNT (dinaphtho[2,3-b:2',3'-f]thieno[3,2-b]thiophene)の分子構造上の特徴、その電子状態と通常のデバイスでの電界効果特性について記述されている。第 5 章で、本研究の最も主要な部分である、集積型有機電界効果トランジスタの設計、作成手順の詳細と、集積化によって飛躍的に向上した特性について報告している。続く第 6 章では、低インピーダンス化によって高い出力電流の取出しが可能になったことで実現した、低温での移動度の温度依存性測定とゲート電圧依存性の評価について実験結果とその議論が記述されている。DNNT 有機薄膜での界面の伝導挙動が粒界にあるトラップ準位と結晶内のバンド伝導を組み合わせで記述した Multiple trap and release model で良く説明できることがこの実験によって明確になった。第 7 章で論文全体の結論と将来への展望を述べている。

微細加工技術もちいた新たな構造デザインによる有機電界効果トランジスタの集積化の成功は、有機エレクトロニクスの高速化、フレキシブル化だけでなく、特性評価の高精度化、極低温領域への測定の拡張に道を開き、物性研究への新しい展開を開く発展性の高い成果である。これらのことから、本学位論文は、博士(理学)の学位論文として十分に価値のあるものと認める。