

Title	Interfacial Polarization Effects of Ionic-Liquid Dielectrics on Carrier Transports in Electric Double Layer Organic Field Effect Transistors
Author(s)	岡上, 大二郎
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/76603
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。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 をご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏 名 (岡上 大二郎)	
論文題名	Interfacial Polarization Effects of Ionic-Liquid Dielectrics on Carrier Transports in Electric Double Layer Organic Field Effect Transistors (電気二重層有機電界効果トランジスタのキャリア輸送に対するイオン液体誘電体の界面分極効果)
論文内容の要旨 イオン液体をゲート誘電体に用いた電気二重層有機電界効果トランジスタ (EDL-OFET) では、イオン液体/有機半導体界面に形成される電気二重層により、界面近傍の有機半導体内で効率的に高密度のキャリアが蓄積・伝搬され、従来型の固体絶縁層を用いたデバイスに比して、極めて低い駆動電力を達成している。しかしながら、高い誘電率をもつ誘電体を用いたOFETでは、誘電体の界面分極がキャリア伝導を著しく妨げる場合がある。本論文では、EDL-OFETの動作環境下の界面をOperando計測による実験科学的手法と分子動力学(MD)計算による計算科学的手法で解析することにより、イオン液体誘電体とキャリアの界面における相互作用の分子スケールで解明することを目的とし研究を遂行した。 有機半導体としてルブレ単結晶を使用したEDL-OFETを用いて、イオン液体の界面分極に由来するキャリアトラップ能を、イオン液体のイオンサイズ、誘電率、粘度の観点から検討した。その結果、イオン液体の界面分極によるキャリアトラップを以下の通り結論付けた。①電極電位を印加することで、数 ms の速いタイムスケールでイオンが界面に集まって電気二重層を形成する。このとき電気二重層内のイオンは、イオン液体の誘電率が大きいほどランダムに分極し、ルブレの界面状態密度がエネルギー的に広がる。エネルギーの低い状態はキャリアを局在化させ、キャリア伝導を妨げる。②その後数時間にわたって、イオン間の静電相互作用による安定化が起こり易いよう、電気二重層内のイオンが再配向する。再配向はイオンの運動性に制限されるため、粘度が高いほど再配向に時間がかかる。③イオンが再配向した結果、大きなサイズのアニオンはルブレ表面から遠くに電荷が位置し、誘起されるキャリアトラップは浅くなる。 以上の通り、本論文において、イオン液体の界面近傍のイオンが電極電位・電荷に応じて二次元的に分極し、キャリア伝導を妨げ得ることを明らかにした。本論文で得られたイオン液体誘電体の界面分極の分子スケールの描像は、イオン種、有機半導体表面構造を適切に選択することで、液体高誘電体の分極を制御できることを示唆し、EDL-OFETのより高効率なキャリア蓄積・輸送を達成する理想的界面の設計指針の構築に資するものである。	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (岡上 大二郎)			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	教 授	福井 賢一
	副 査	教 授	中西 周次
	副 査	教 授	宮坂 博
	副 査	教 授	竹谷 純一 東京大学 大学院新領域創成科学研究科
	副 査	准教授	今西 哲士

論文審査の結果の要旨

軽量かつ柔軟、極めて低い製造コストなどの優位性をもつ有機電界効果トランジスタ（OFET）の中でも、イオン液体をゲート誘電体を用いた電気二重層OFET（EDL-OFET）は、イオン液体/有機半導体界面に形成される電気二重層により効率的に高密度のキャリアが蓄積・伝搬され、従来型のデバイスに比して極めて低い駆動電力を達成している。誘電率が高い固体絶縁層を用いたOFETでは誘電体の界面分極がキャリア伝導を著しく妨げる場合があるが、イオン液体のような“液体”高誘電体についての報告はほとんどなく理解が十分でなかった。そこで、岡上氏は本論文において、EDL-OFETの動作環境下の界面をOperando計測による実験科学的手法と分子動力学(MD)計算による計算科学的手法により解析した。

第3章では、EDL-OFET動作に関するi)有機半導体(ルブレン)へのキャリア注入、ii) 電気二重層形成、iii) 有機半導体チャンネル間キャリア輸送の各プロセスを定量化した。特に、EDL-OFET動作中の界面のキャパシタンスの値から、界面に蓄積されているキャリア量を精密に評価した。第4章においては、イオン液体の界面分極の描像とそのキャリア輸送への影響を解析した。最近接イオン液体層内では、キャリア注入によって数時間のタイムスケールでカチオンとアニオンの両方がルブレン電極に直立するように交互に並ぶ（再配向）ことで静電相互作用による安定化が起こること、その結果としてアニオンの負に帯電した基がルブレンにより近接することで、キャリアのトラップが起き得ることが示された。

さらに、第5章では、カチオン種を固定したままアニオン種を変えて、第4章で述べたイオン液体の界面分極に由来するキャリアトラップ能やキャリア移動度の、イオン液体のイオンサイズ、誘電率、粘度に対する依存性を検討し、その要因をまとめられている。

以上のように、本論文では、EDL-OFETの動作環境下の界面のOperando計測と計算科学的な解析をもとに、イオン液体の構成イオンとキャリアであるホルの分子スケールでの構造とダイナミクスを明らかにし、学術的にも応用上も重要な成果をまとめたものであり、博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。