

審査の結果の要旨

氏名 葛岡 義和

「ポリフェニレンビニレン系ポリマーの光機能素子に関する研究」と題した本論文は、シアノ置換型ポリパラフェニレンビニレン (CN-PPV) 系高分子を用いた光照射による光物性制御を行い、光照射による CN-PPV 系高分子の光物性変化のメカニズムを明らかにするとともに、導電性高分子である有機デバイスへの応用に関する研究であり、5章から構成されている。

第1章は序論であり、無機半導体に対する有機半導体の位置づけを述べており、有機半導体の中でもさらに低分子型・高分子型の有機デバイスへの応用例を踏まえて、半導体デバイスにおけるポリパラフェニレンビニレン (PPV) 系高分子の位置づけを明らかにしている。また、PPV 誘導体の開発の経緯および、CN-PPV 系高分子が注目される経緯を示し、本研究で明らかにした CN-PPV 系高分子の光照射による発光色変化の特徴について述べている。

第2章では、CN-PPV の光照射による発光スペクトル変化について述べている。CN-PPV の光照射による発光スペクトル変化は光酸化反応に基づく現象であることが示された。発光スペクトルのブルーシフトは CN-PPV の π 共役面の面間距離が光酸化に伴って広がることに由来する分子間相互作用の減少に起因すると考えている。従来は物質の発光ピークを制御するために、物質の分子構造を変化させる手法が主に採用されていた。本章の結果は薄膜を形成した後に、光反応によって所定の部分の分子間相互作用を制御することで単一物質によって構成される薄膜でも様々な種類の発光ピーク波長(594-547nm)を制御できることを示している。

第3章では、更に2種類の CN-PPV 系誘導体の光照射による発光スペクトル変化における温度転移現象について述べている。CN-PPV 系高分子の光照射による発光スペクトル変化は光酸化による π 共役系面間距離が広がることによって生じ、光酸化時の CN-PPV 系高分子の温度が高いときは光酸化によって π 共役系面間距離が変化し、低温時には π 共役系面間距離の変化が進まないことを示している。この分子構造の変化のしやすさには CN-PPV 系高分子のガラス転移状態が関与していると述べている。

第4章では、光照射により簡便に半導体物性が制御できる CN-PPV 系高分子の電気デバイスへの応用展開として、有機太陽電池を研究している。太陽電池の構造として、正孔輸送層/発電層/電子輸送層の3層構造太陽電池を作製し、電子輸送層に CN-PPV 系高分子を用いている。光電変換特性としては通常のパルクヘテロジャンクション型の太陽電池では

達成できていない開放起電力 0.92V が得られ、電子輸送層に CN-PPV を用いることおよび 3 層構造の優位性を示している。成膜後に光照射によりバンド構造が制御できる CN-PPV を電子輸送層に用いた塗布型太陽電池は、今後の有機デバイスのバンド制御を行う上で非常に価値があると述べている。

第 5 章では材料とプロセスと機能を軸として、これまでの研究成果の位置づけと、今後の有機半導体の実用化に向けて期待される研究をまとめている。有機半導体は、無機半導体に比べて非常に高次構造の安定性が低いことが特徴であり、本研究においてはこの特徴を積極的に活かして一旦形成された分子集合体の構造を光照射により変化させることにより、その光物性を制御している。本研究の課題は分子集合体の構造変化による電気伝導機構変化の解明、構造変化により変化した光励起・発光過程の解明であると述べている。

以上要するに、分子集合体の構造をプロセスにより制御することは、有機半導体デバイスの応用上極めて重要であり、化学システム工学及び反応工学への貢献が大きいものと考えられる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。