

審査の結果の要旨

氏名 横山 孝理

有機薄膜トランジスタ (TFT) は機械的柔軟性を持っていること、低温プロセスが可能であること、大面積化した際の1素子当たりのコストが安いことなどの利点があるため、次世代のフレキシブルディスプレイなどへの応用が期待されている。課題の一つは電流駆動力の小さいことがあげられ、有機 TFT の研究においては、いかに高移動度な薄膜を作製するかが大きな焦点となっている。多結晶薄膜における移動度向上の基本原則は粒径を増大させることであり、有機 TFT においてもその原理は適応できることが報告されてきた。

有機半導体製膜には真空蒸着法が用いられることが多く、粒径の増大は蒸着レートの低減と基板温度の増加により実現されてきた。しかし、粒径を大きくさせる蒸着条件は、核形成頻度を増加させる、あるいは基板から分子の再蒸発も増えるため、結晶成長の観点からは不安定となる。

そこで、本研究では安定に粒径の大きな多結晶有機半導体薄膜の成長を実現させることを目的とし、有機半導体材料としては現在最も研究されているペンタセンを用い、蒸着法に雰囲気ガスを導入するという新しい手法を提案している。真空蒸着法による結晶成長において、固相/気相の平衡状態を考えた場合、圧力は有機分子の気相の分圧、すなわち蒸着レートであるが、これを上げると核生成の頻度は増大するため粒径は小さくなる方向へと進む。本研究では、外部よりガスを導入し全圧を上げた雰囲気蒸着することで再蒸発までの時間を遅くすることを試みている。特に、雰囲気ガスが多結晶粒径、TFT 移動度に及ぼす影響を詳細に調べている。

本論文は7章からなる。第1章は序論であり、有機半導体の特徴、ペンタセンという材料の選択に関して述べた後に、本研究の目的と位置づけを明確化している。

第2章は本研究を進めるにあたっての、ペンタセン薄膜材料の形成手法およびTFTの作製手法、評価手法について詳述している。製膜には熱蒸着法を用い、また膜の結晶性に関してX線回折、膜中のグレインの大きさの評価に対して原子間力顕微鏡(AFM)を用いている。

第3章は、有機半導体の特徴である外部雰囲気によって特性が劣化するという現象に関して、特にその傾向の強い電子伝導型有機半導体であるフッ素化ペンタセンを用いて酸素の影響について調べた結果を議論している。そこでは酸素に晒すことが劣化を引き起こすというよりも酸素雰囲気下での素子の動作、つまり酸素が存在するもとの電子の存在が特性を大きく劣化させていることを実験的に明確化しており、さらにそのメカニズムにつ

いて議論している。

第4章はペンタセン膜の成長とTFT移動度の関係を調べている。粒径を大きくするために高温で膜成長を行うと、クラック成長は促進される結果、ある程度以上になると移動度が急激に劣化してしまう。それを抑制するための手段として、意図的に真空度を落として製膜することでクラック形成を抑制し移動度の急激な劣化を抑制できることを確認している。また本論文の主題である真空度を下げて蒸着という研究から、移動度を決定しているのは第一層目の粒径を大きくすることが重要であることを実験的に示している。

第5章では第4章で行った低真空蒸着における移動度向上に基づき、ガス種による効果を調べた結果を詳細に述べている。特に、 H_2 、 O_2 、 N_2 および真空を比較し、 H_2 中における蒸着は他の場合に比べて第一層目の粒径が倍以上に増加することを発見した。このことによつて、 H_2 中での製膜をしたTFTにおける移動度は倍程度向上することが示されている。上記のような事実に関する報告例は無く、きわめて新しい実験結果である。さらに、粒径増大メカニズムを解明するために、 D_2 あるいはHe中での蒸着も行い、いずれの場合も粒径の増加が認められ、メカニズムがケミカルなものではなく軽い分子量による物理的なものであることを明らかにしている。この事実はペンタセンに限らず、ガス分子支援の粒成長という観点で極めて斬新であり、工学的にも重要な発見であるといえる。さらに本手法をオクタデシルトリクロロシラン処理した SiO_2 上への蒸着に適用して、室温で移動度が $1.27\text{cm}^2/\text{Vsec}$ という高い値を得ている。さらに水素雰囲気下でかつ基板温度を上げた状態で蒸着を行うことで、移動度は $5\text{cm}^2/\text{Vsec}$ を超える非常に高い値を得ることを示している。

第6章は移動度とともにTFT特性として最も重要な特性量であるしきい電圧の制御手法に関して、新たな方法を提案しその実証結果について述べている。

第7章は以上の総括である。

以上を要するに、本研究は有機薄膜の成長過程に遡って調べることによつて、有機TFTの最も重要な量としての移動度としきい電圧を大きく改善できることを示したものである。特に水素雰囲気下での蒸着という新しく提案された手法によつて、界面での粒径を飛躍的に増大させ、その結果移動度を飛躍的に向上できることを実験的に示したものであり、有機半導体エレクトロニクス分野だけでなく材料工学の観点からも意義は大きい。

よつて本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。