

論文審査の結果の要旨

氏名 霍間 勇輝

本論文は6章からなる。第1章は序論であり、本論文の題目である「ペンタセン超薄膜の成長機構と構造安定性に関する研究」についての意義が述べられている。また、ペンタセン超薄膜の応用方法として有機トランジスタに着目し、その歴史、動作原理について紹介している。さらに、ペンタセンの薄膜形態や結晶構造など本論文を理解する上で必要な基礎事項を明記している。また、本研究で用いられた実験手法の原理について述べており、各手法によって得られる情報などについて、その基となる理論とともに述べている。

第2章では、本研究で実際に測定を行う際の詳細な実験手順や、用いた装置について述べている。具体的には、in-situ AFM-FET 測定、LEEM 測定、試料作製に関する記述である。

第3章では、ペンタセン超薄膜に内在する形態不安定性について述べている。新たに製作した in-situ AFM-FET 測定装置を用いることで、いったん基板上に成膜されたペンタセン分子が、時間とともに室温・真空化という安定な条件にも関わらず、凝集することを見出している。元来、有機分子は金属と比較して凝集エネルギーが低いために、蒸着後の基板露出を伴うような大きな形態変化は考慮されてこなかったが、この発見により、有機分子の形態不安定性を周知の事実とし、有機デバイスにおいて形態変化が特性劣化の要因となりうることを示した。さらに、この不安定性の要因を、基板・雰囲気・膜厚を変化させた系統的な実験により、基板表面エネルギー・吸着分子・層間の結晶構造の違いによって説明できることを明らかにしている。また、この形態変化を利用したペンタセン FET の特性劣化の様子を観察することで、これまで不明瞭であった伝導経路に関するモデルを提案している。

第4章では、ペンタセン薄膜における第2層目の成長メカニズムについて述べている。これまでの有機薄膜成長に関する議論では、基板の影響を強く受ける第1層目、または最終的な状態である厚膜に関しての報告がほとんどであった。しかしながら、有機薄膜成長の根本を理解するためには、有機-有機相互作用が重要になる同一分子間の成長過程の解明が必須である。ペンタセン薄膜の第1層目は層状成長をするために、その2層目における成長過程解析は、有機ホモエピタキシャル成長を議論する上での好例といえる。LEEM による連続成長観察及び AFM による統計的な解析より、第2層目に関する核発生サイト・優先成長方位に関する知見の取得に成功している。さらに、1層目の粒界が上層の成長に与える影響を考察し、層状成長から島上成長に移行する理由、分子の表面拡散に関するパラメーターの導出にも成功しており、同一分子間における薄膜成長機構の詳細が明らかとなった。

第5章では、面内ヘテロ接合上での有機薄膜成長という新たな概念を導入し、そこでどのような現象が発現し、いかなるメカニズムが働くのかをペンタセン-ボトムコンタクト(BC)型トランジスタ構造を例にとり解明している。単一基板上での有機薄膜の成長機構は、これまでに多くの報告がなされている。しかしながら、OTFT の BC 構造に代表される、絶縁膜と電極の異種表面が同一平面内で接するような面内ヘテロ接合上では、有機分子が2種表面からの影響を受けるために、通常の単一基板上における成長機構とは異なることが予想される。実際に BC 構造の OTFT では、絶縁膜-電極界面付近での有機薄膜の乱れと、それに起因するトランジスタ特性の低下が周知の事実となっていたが、その理由は明らかとなっていなかった。本実験では、光電子顕微鏡(PEEM)を用い、Au 電極-絶縁膜界

面でのペンタセン超薄膜の成長を連続的に観察した結果、有機分子の配向の違いによって生じる、表面エネルギーの差が界面での特異的な薄膜成長を引き起こすことを解明した。また、電極の自己組織化単分子膜による修飾を行うことで、有機薄膜の配向が両基板上で一致し、電極との良好な接合が得られることを示している。

第6章では、各章の概要が簡潔に示され、本論文を総括している。

以上述べたように、本論文では、有機薄膜の成長過程に新たな視点、手法から重要な知見をもたらした。これらの成果は当該分野の基礎・応用の両方面に貢献しており、物質科学、デバイス応用に重要な寄与を与えている。

なお、本論文のうち第3章は、齊木幸一朗氏、池田進氏、吉川元起氏、Abdullah Al-Mahboob氏、Jerzy T. Sadowski氏、藤川安仁氏、櫻井利夫氏との共同研究、第4章は、齊木幸一朗氏、山田拓氏、Abdullah Al-Mahboob氏、藤川安仁氏、櫻井利夫氏との共同研究、5章は齊木幸一朗氏、池田進氏、吉川元起氏、Abdullah Al-Mahboob氏、Jerzy T. Sadowski氏、藤川安仁氏、櫻井利夫氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験、解析、考察を行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。したがって、博士(科学)の学位を受けるのに十分な資格を有すると認める。