

# 論文審査の結果の要旨

氏名 金森 由男

本論文は 6 章からなる。

第 1 章ではイントロダクションであり、有機デバイスにおける有機薄膜成長制御の意義が述べられた後、有機薄膜の面内結晶方位の制御に関する近年の研究および基板表面の自己組織化単分子膜による表面修飾とその上の有機薄膜成長の研究についてレビューを行っている。

第 2 章では基板表面の物理的構造を利用した有機薄膜の結晶方位の制御（グラフォエピタキシー）について述べられている。電子線リソグラフィで  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  上に作製した溝基板上に分子性有機半導体である  $\alpha$ -sexithiophene (6T) を蒸着し、その薄膜成長過程を観察している。人工的に作製した溝上での伸長グレインの成長を初めて観測し、その結晶方位解析から、溝基板上における核生成・成長機構について考察している。伸長成長したグレインの生成に最適な溝周期を求め、薄膜成長が Capture Zone モデルで説明できることを示している。物理的な溝パターン上の有機半導体の伸長グレインの作製およびその成長機構から成長制御まで一貫した議論がなされており、グラフォエピタキシーを有機薄膜の面内方位制御の手法として応用するために重要な先進的な結果が得られている。

第 3 章では、基板表面の自己組織化単分子膜 (SAM) 修飾による有機薄膜の結晶性と電界効果トランジスタの特性に及ぼす効果について述べられている。チオールによる SAM 処理は金電極上の分子配向を変化させるのみならず、電極近傍領域 (transition region) の薄膜の結晶性を向上させグレインサイズの拡大が起きることを明らかにした。独自に開発した周波数応答解析法を用いて SAM 処理基板を用いて作製した電界効果トランジスタ (FET) の接触抵抗の減少および transition region における off-current キャリアの減少を明らかにした。SAM による有機デバイスの特性向上には transition region の存在が多大な影響を与えることを見出した独自性に富む結果である。

第 4 章ではグラフェンの化学的合成法の間接物質である酸化グラフェンの絶縁特性を、原子間力顕微鏡のプローブ電流を用いて評価している。原子間力顕微鏡と電流像の同時測定から、電流像が局所的な面間伝導を反映することを明らかにしている。また、詳細な電流・電圧特性の測定から、伝導の電流・電圧特性は Poole-Frenkel 依存性を示すことを見出し、その特性から酸化グラフェンの誘電率を求めた。現在までに酸化グラフェン自体の構造は多数の報告例があるが、その伝導特性・誘電体特性などの物性は解明されておらず、本結果はその基礎的な知見を与える重要な成果と言える。

第 5 章では還元されたグラフェン上のペンタセン薄膜成長について議論している。基板グラフェンの還元程度により形成されるペンタセン薄膜の形態が異なることを原子間力顕微鏡観察から明らかにした。さらに、その分子配向を反射高速電子回折 (RHEED) から決定した。ペンタセン分子の配向からペンタセン-グラフェン界面構造を考察し、これらが強い  $\pi$ - $\pi$  相互作用に由来することを指摘した。これらの結果は、炭素系材料間のエピタキシャル成長の例としての知見を与えると同時に、化学的に合成したグラフェンの有機薄膜デバイスへの電極応用の観点からも、重要な成果である。

第 6 章では第 2-5 章の総括を行い、主要な結果を要約している。

なお、本論文は池田進氏（第 2 章）、和田恭雄氏（第 2 章）、小幡誠司氏（第 4-5 章）、齊木幸一朗氏（第 2-5 章）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。

以上のように、本論文では有機薄膜の成長制御として基板表面を物理的・化学的に修飾による手法（グラフォエピタキシー・SAM）および新たな基板材料（グラフェン）を利用する方法が検討されており、それぞれについて有機薄膜成長過程を詳細に解析している。これらの結果は、今後更なる発展が見込まれる有機デバイスの応用研究において基礎的な知見を与える。また、その新規な薄膜成長機構の発見やその成長機構の探索は、結晶成長の観点からも学術的価値に富むものである。これら研究成果のオリジナリティを審査委員会一同で高く評価した。

したがって、博士（理学）の学位を授けるのに十分な資格を有すると認める。