

論文審査の結果の要旨

氏名 松井 弘之

近年、軽量・折り曲げ可能・大面積等の特徴を持った情報端末装置の開発を目指し、有機半導体を用いたエレクトロニクスの研究開発が活発に行われている。中でも有機薄膜電界効果トランジスタ（有機TFET）は、これらの装置の実現に不可欠なキーデバイスとして、その高度化が強く求められている。特に、最近の精力的な基礎研究により、新材料開発・電極技術・プロセス技術・プロトタイプ的な単結晶素子の開発等が進み、有機TFETの性能は着実に進歩してきている。しかしながら、デバイス動作の微視的な機構については、十分な理解が得られているとは言えない。これは有機半導体界面で生じるキャリア輸送が、界面に特有の様々な相互作用や乱れの影響を受けること、及び、これら相互作用と同程度の室温熱エネルギーのもとでの輸送現象が解明されていないことによる。このような特徴のため、デバイスの電気的特性にのみ頼った議論は全く不十分な一方で、半導体界面付近にのみ蓄積されたキャリアの微視的情報を捉えるのは容易ではなく、これまでその様相を理解する端緒すら得られていなかった。本論文では、ゲート電圧印加により有機半導体界面に蓄えられたキャリアによる電子スピン共鳴（ESR）スペクトルを用いて、有機TFET内のキャリア輸送機構を詳細に調べた研究成果がまとめられている。スピン軌道相互作用が弱い有機半導体では、電子スピンをキャリアの鋭敏なプローブとして用いることが可能である。本論文においては、いくつかの典型的な有機TFETについて、有機薄膜界面でキャリアが輸送される動的な様相と、これら輸送を主に阻害する要因となるグレイン境界・トラップ・不純物等の効果について、その全容を明らかにすることに成功している。

本論文は8章からなる。第1章では、序論として、有機半導体の紹介と有機TFET内のキャリア輸送に関する従来の研究の背景が述べられ、それに続いて研究目的と論文の概要が述べられている。第2章には、本研究で用いた実験方法、特に界面に蓄積したキャリアによるESR信号を高感度に検出する実験方法が述べられている。第3章には、有機半導体多結晶薄膜を構成するグレイン内のキャリア輸送によるスペクトル先鋭化効果が述べられている。ここでは、先鋭化効果の解析をもとにキャリアが一つのサイトに滞在する平均時間を見積り、キャリアがトラップによる捕捉と解放を繰り返しながら運動する機構が述べられている。第4章には、グレイン間をまたぐキャリアの運動によるスペクトル先鋭化効果が述べられている。ここでは、異方的gテンソルのためグレイン毎に異なるg値が観測される実験配置において、昇温とともに先鋭化効果によりスペクトルが一本に融合していく様子をもとに、グレイン間の障壁ポテンシャルを評価する新しい手法が述べられている。第5章には、低温でキャリアが全てトラップに凍結された

状態でのスペクトル解析から、トラップ状態を詳しく調べた結果が述べられている。ここでは、電子が分子内のプロトン等の核スピンの超微細相互作用のため、トラップ状態の広がりや各スペクトル成分の幅に相関があることを利用し、トラップの空間的な広がりに対する状態密度分布を得る新しい解析手法が述べられている。第6章には、意図的に異なる分子を混入させた有機半導体薄膜についてESRスペクトルを調べた結果が述べられている。ここでは、異なる分子が深いトラップ準位として作用する様子がデバイス特性と関連づけて述べられている。第7章には、上記の全ての解析を行う上での基礎となる孤立分子のESRスペクトル測定と、これを解析するための密度汎関数法を用いた孤立分子のスピン-スピン結合定数とg値の量子化学的な計算結果が述べられている。第8章には、本論文の結論が述べられている。

以上のように、本論文は有機半導体に優位性があるESR法を駆使することによって、多面的かつ詳細なキャリア輸送の微視的様相を明らかにした研究成果がまとめられている。これらの成果は、活発な研究開発が進む有機TFETの動作を理解する上で、また有機TFETの新しいデバイス評価技術として、今後重要になると考えられ、有機エレクトロニクスの進歩に大きな貢献をなすものである。また本研究成果は、グラフェンやカーボンナノチューブを初めとする各種の材料において、現在進展しつつある電界効果型デバイス構造を用いた新しい物性研究の開拓にも貢献すると考えられる。なお、本論文は、長谷川達生、平岡牧、山田寿一、十倉好紀、Andrei Mishchenko、高橋永次、瀧宮和男、熊木大介、時任静士各氏との共同研究によるが、論文提出者が主体となって実験・解析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。以上から、本論文は、博士（科学）の学位を授与できると認める。