

審査の結果の要旨

氏名 山村 祥史

本博士論文は6章からなり、僅か数分子層の厚みからなる2次元単結晶有機半導体における集合体構造と物性について理解を深め、実用デバイスへの応用を行った研究である。

第1章は、有機トランジスタに関する近年の研究を通じて、単結晶有機半導体の利点と産業応用に向けた課題がまとめられている。高移動度有機半導体材料の単結晶を活性層に用いた有機トランジスタは、IGZOなどの酸化物半導体に匹敵する $10\text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の高い移動度を示す。一方で、高移動度の単結晶有機半導体を実用的な周波数で動作するデバイスへと応用するためには、移動度の向上だけでなく接触抵抗の低減が不可欠である。提出者は、有機トランジスタの接触抵抗を低減するための手法について先行研究の具体例を挙げつつ、僅か数分子層の厚みからなる2次元単結晶薄膜が接触抵抗を低減する上で有用であることを述べている。

第2章では、分子層数が精密に制御された大面積の2次元単結晶有機半導体の作製手法について述べられている。製膜温度を制御することで結晶の厚みがコントロールできることを見出し、90 mm角のウェハスケールにわたって均一に2次元単結晶薄膜を作製することに成功した。僅か数分子層の厚みしかない2次元単結晶有機半導体は、材料のほとんどがFETのスイッチング機能を担うという究極の材料利用効率を有しており、IoT社会で求められる低コストな集積回路への応用に適した材料である。

第3章では、分子層数が精密に制御された2次元単結晶有機半導体のキャリア伝導特性について評価を行ったものである。提出者は移動度の温度依存性の評価とHall効果測定の結果から、結晶の厚みを究極まで薄くした1分子層の単結晶であってもバンド伝導性を示すことを明らかにした。これは積層方向に周期性を持たない1分子層であっても、面内方向の分子の周期配列が維持されており、コヒーレントな電子状態が実現していることを示す極めて重要な結果である。また、提出者は2分子層と3分子層の単結晶OFETの接触抵抗の比較から、僅か1分子層の厚みの違いが接触抵抗に大きな影響を与えており、2分子層単結晶において有機トランジスタとして最小の接触抵抗が得られることを報告している。提出者が確立した手法によって、分子層数が制御された高品質な2次元単結晶が再現良く得られるようになったことで、このような極めて薄い単結晶のキャリア伝導特性の精密な評価が初めて可能になった。

第4章では、1分子層と2分子層の単結晶の構造を詳細に調査し、構造とキャリア伝導特性の関係について議論している。積層方向に周期構造を持たない1分子層単結晶において基板界面で特異的な分子変形が生じることを見出し、その構造変化がキャリア輸送性能に影響を及ぼしていることを明らかにした。本研究で観測された基板への物理吸着過程で生じる分子形状の変化は、有機半導体が持つ分子自体の柔らかさに起因したユニークなものであり、OFETの高性能化を実現する上で分子形状の変化までも含めた異種材料界面の構造を適切に制御することの重要性を示すものである。

第5章では、第3章と第4章の結果から高移動度と低接触抵抗を両立できることが確かめら

れた 2 分子層単結晶を用いて短チャネルの OFET を作製し、その高周波特性を評価した結果について述べている。作製したデバイスは OFET として最高の遮断周波数を示し、RFID タグへの無線給電が十分可能な整流素子へと応用することに成功している。本成果は、2 次元単結晶有機半導体の実デバイスとしての有用性を示すものであり、IoT 社会を支える低コストな集積回路を作製する上での基盤材料となることが期待される。

第 6 章では、本研究の総括が述べられている。本研究で得られた 2 次元単結晶有機半導体の集合体構造とキャリア伝導特性に関する知見は、今後有機トランジスタの更なる高性能化を実現する上で重要な指針を与えるものである。

本論文のうち、第 2 章は東京大学新領域創成科学研究科熊谷翔平特任助教らとの共同研究として実施したものであるが、2 次元単結晶有機半導体の作製に関するコア技術は提出者本人が確立したものであり、十分な寄与が認められる。また、第 4 章は東北大学若林裕助教授・筑波大学小林伸彦教授・SLAC 国立加速器研究所小笠原寛人博士・広島大学高橋修准教授らとの共同研究として実施したものであるが、2 次元単結晶有機半導体の作製・論文執筆は提出者本人が行ったものである。第 3 章・第 5 章のキャリア伝導特性の測定と解析・デバイスの開発と高周波測定は提出者本人が主体となって行ったものであり、十分な寄与があったといえる。

よって本論文は博士（科学）の学位請求論文として合格と認められる。

以上 1 9 4 9 字