

# 論文審査の結果の要旨

氏名 鶴見 淳人

本論文は6章からなり、単結晶有機半導体の「柔らかさ」に着目し、電荷・スピン・フォノンの相関を研究したものである。

第1章は、有機半導体材料を電子素子として利用する際に最も重要となる電子電荷の輸送機構について包括的にまとめられている。特に、有機半導体材料の弱い分子間力が電気伝導特性にもたらす効果が整理されている。分子の「柔らかさ」は、マクロスコピックな機械的柔軟性に与するだけでなく、ミクロスコピックな分子の熱的揺らぎとして電子伝導特性に多大なる影響を及ぼす。したがって、無機半導体で恒常的に使用されているモデルは、「柔らかい」固体である有機半導体材料に適応することはできない。第1章では、有機半導体の伝導機構を理解する上で重要となる相互作用・物理量・モデルに着目し、先行研究の具体例を挙げつつ、論文提出者の独自のアイデアにより、これらの問題にアプローチできる手法がまとめられている。

第2章は、有機半導体を持つ「柔らかい」という性質を利用し、結晶に圧力を印可した際の分子の相対位置及び、分子形状の変化について述べられている。提出者自身が放射光を用いた X 線構造解析を実施し、高いレベルで詳細な結晶構造解析と量子化学計算を主体的に行った。その結果、圧力印可による分子の相対位置の変化だけではなく、分子そのものの形状変化を世界で初めて実証した。この個々の分子自体の変化は共有結合性の無機半導体では決して見られないユニークな現象である。また、分子形状の変化は、電気伝導特性を支配するトランスファー積分と大きく関連していることもわかった。本研究で得られた知見は、ミクロな分子の「柔らかさ」をベースにした電気伝導特性の理解につながると同時に、圧力印可に伴う機能性の創出の観点からも非常に重要である。

第3章は、以降の章で取り扱う高移動度有機単結晶材料のデバイス評価を行ったものであり、ドイツFriedrich-Alexander-Universitat Erlangen-NurnbergのMarcus Halik教授との共同研究の下で実施されたものである。デバイス作製・解析・論文執筆を提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。デバイス界面の表面エネルギー制御やゲート誘電体との相互作用を最適化した結果、次章以降で扱う高移動度有機単結晶材料が成膜性・デバイス性能に優れ、さらにバンド伝導性に伴う高移動度が実現できることが分かり、基礎物性を評価する上で最適な材料であるという知見が得られている。

第4章は、バンド伝導性を示す高移動度の有機単結晶半導体の電気伝導特性を明らかにするべく、電子の持つもう一つの自由度スピンに着目し、スピンドYNAMICSを介して、電荷とスピン、及びフォノンの相関を明らかにしたものである。デバイス動作下における磁気輸送、及び電子スピン共鳴測定を組み合わせることで、電荷とスピンの緩和時間に相

関係があることを世界で初めて見出し、有機単結晶半導体のフォノンに存在するスピン軌道相互作用を介して、スピン緩和が生じることを明らかにした。スピン緩和機構を明らかにすることで、これまで予想できなかった極低温における電気伝導特性を推察することができた。また、有機半導体単結晶材料において、スピントロニクスデバイスのデバイス性能を決めるスピン拡散長及びスピン寿命を実験的に決めることに成功し、有機半導体単結晶がロバストなスピン輸送を可能とする理想的なスピン媒体であることを世界に先駆けて報告した。

第5章は、有機材料の「柔らかさ」が寄与する分子の熱揺らぎに再度着目し、熱揺らぎを直接観測手法の開発と分子振動と電気伝導特性の相関を議論している。提出者独自のアイデアで、低周波ラマン分光測定が分子の熱揺らぎの良いプローブとなることを見出し、高移動度有機単結晶における分子間振動モードとその圧力依存性を実験・量子化学及び分子動力学シミュレーションの両側面からアプローチした結果、室温程度の熱エネルギーで複数の分子間振動が励起されており、いくつかのモードは電子格子相互作用が大きく電気伝導特性に多大な影響を及ぼすことがわかった。

第6章は、高移動度有機半導体単結晶における電荷・スピン・フォノンの相関について総括されている。有機半導体においては、分子の「柔らかさ」という従来の固体物理学では取り入れなかった効果の重要性を実験的に明らかにし、バンド伝導性の有機半導体において電荷・スピン・フォノンの関係を世界に先駆けて明らかとした。

なお、本論文は、渡邊峻一郎、松井弘之、Markus Halik らとの共同研究を含むが、デバイス作製・物性測定・解析を提出者本人が主体となって行ったことにより、十分な寄与があったといえる。

したがって、博士（ 科学 ）の学位を授与できると認める。

以上 1990 字