

# 真空蒸着による不揮発性油中でのペンタセン単結晶の作製と電場印加による単結晶の配向制御

学籍番号: 47146093 複雑理工学専攻 斉木研究室修士2年 高山 大希

2016年3月修了 指導教員: 斉木 幸一郎 教授 キーワード: 有機半導体, ペンタセン, OFET

## 1. 研究背景・目的

近年, 有機半導体を利用したデバイスが注目されている. 有機デバイスの特徴は, 軽量・安価・フレキシブルなどが挙げられ, 実際に有機薄膜太陽電池や有機 EL テレビなどに応用されている.

代表的な有機デバイスの1つに有機電界効果トランジスタ(OFET)がある. OFETは, ゲート電極に電圧を印加することで有機半導体と絶縁体界面にキャリアが蓄積され電流が流れるという動作原理を持ち, 特性として移動度や安定性が重要である. 現状では, OFETは無機半導体のFETと比べ移動度が低く, 安定性に欠けるため, 広く実用化に至っていない. 本研究ではOFETに注目し, 高性能OFETの作製を目指した.

OFETの移動度が低い要因として有機半導体の結晶形態が影響していると考えられる. 結晶形態として多結晶(薄膜)と単結晶の2つの形態が存在するが, 多結晶はグレイン境界において, キャリアの散乱が生じるため, 単結晶に比べ移動度が低い. 高移動度OFETの作製に向け, 単結晶を対象とし, その位置や配向を制御するプロセスが必要である.

本研究は単結晶の作製法として, 溶液を塗布した基板に有機半導体を真空蒸着するというプロセスに着目した. 実際に, この方法により100 $\mu\text{m}$ 程度のサイズを持つ単結晶の作製が報告されている[1]. このプロセスは真空蒸着であるため, 蒸着条件を変化させて結晶の形状を制御することが可能である.

本研究では単結晶作製に向けて, ペンタセンを蒸着材料に用いた. ペンタセンはp型の有機半導体であり, 薄膜と単結晶の移動度の最高値は, それぞれ1 $\text{cm}^2/\text{Vs}$ , 40 $\text{cm}^2/\text{Vs}$ を示すなど, 高い移動度を示すことが知られている. しかし, ペンタセンの単結晶には移動度に強い異方性があることが分かっており[2], 高移動度方向に単結晶を配向させる必要がある.

そこで, ペンタセン単結晶の位置・配向の制御に向けて, 誘電泳動という現象に着目した. 誘電泳動とは, 電極間に不均一な電場が掛かることで, そこに浮遊してきた粒子に力が加わる

という現象である. これにより, 結晶の配置を制御できることが当研究室の先行研究で示されている[3].

以上を踏まえ, 本研究では, 溶液を塗布した基板に真空蒸着する結晶作製プロセスと誘電泳動の結晶配向制御という2つの手法を応用し, 高移動度ペンタセン単結晶FETの作製を試みた. 本研究では, この結晶作製プロセスを応用するため, B2EHS(bis(2-ethylhexyl)sebacate)[1]という不揮発性の油を基板に塗布し, そこにペンタセンを真空蒸着する実験を実際に行った. Fig.1に実験の概略図を示す. また, このとき誘電泳動を応用するため, 蒸着中もしくは蒸着後に基板上のAu電極間に電場を印加した.

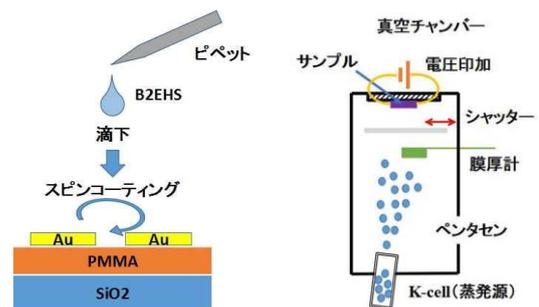


Fig.1 基板作製の様子(左図),  
真空蒸着の様子(右図)

## 2. 実験結果(直流電場印加下で真空蒸着)

Fig.1の様にB2EHSを塗布した基板にペンタセンを真空蒸着し, その最中に電極間に直流電場を印加する実験を実際に行い, 蒸着後のチャンネル上の様子を光学顕微鏡(OM)で観察した. Fig.2に蒸着レート: 0.6layer/min・蒸着時間: 2時間のペンタセン蒸着を行った後のチャンネル上の様子を示す. Fig.2の左図は, 蒸着中に直流電場を印加しなかった場合の実験結果, 右図は蒸着中に100Vの直流電圧を印加した場合の実験結果となっている.

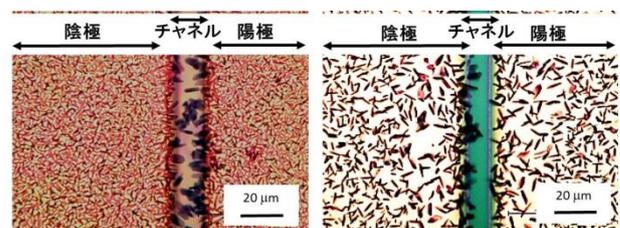


Fig.2 チャンネル上の様子(x1000)  
直流電場を印加せずに蒸着(左図),  
蒸着中に直流電場印加(右図)

これを見ると、Fig.2の左図においてチャンネル上の単結晶の位置は規則性がなく、ばらばらに配置されているのに対し、右図では陰極側に寄っていることが分かる。このことから、ペンタセンが直流電場に応答したことが分かる。次に、蒸着量を変化させる実験を行い、直流電場印加と蒸着量の依存性について調べた。Fig.3に、蒸着レート：0.6layer/minの蒸着中に100Vの直流電場を印加する実験を行う際、蒸着量を変化させた結果を示す。

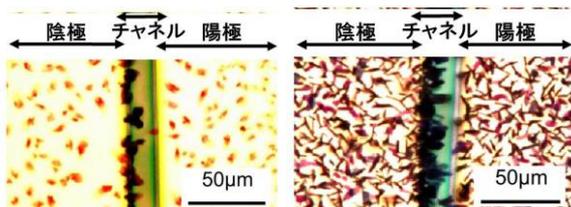


Fig.3 チャンネル上の様子(x1000)  
蒸着時間：1時間の蒸着後(左図)、  
蒸着時間：5時間の蒸着後(右図)

Fig.3の左図を見ると、蒸着時間：1時間の段階からチャンネル上の単結晶が陰極側に寄っていることが分かる。また右図から、蒸着量が増加するにつれ、陰極から陽極へ単結晶の成長が促進されていることが分かる。しかし、蒸着量を増加させた右図においても単結晶の位置が陰極側に偏ったことにより、電極間を橋渡しせず、このプロセスでは単結晶 FET の作製までには至らないことが分かる。また、位置が偏ってしまう要因として、単結晶が直流電場からクーロン力を受けている可能性が考えられる。

### 3. 実験結果(蒸着後に交流電場印加)

直流電場の実験結果を踏まえ、単結晶を電極間に橋渡しさせるために、今度は蒸着後、電極間に交流電場を印加する実験を実際に行い、単結晶の位置をチャンネルの中心に制御しようと考えた。Fig.4にB2EHSを塗布した基板に蒸着レート：0.3layer/min・蒸着時間：10時間のペンタセン蒸着を行い、周波数：100 Hz・実効値：85 Vの交流電圧を電極間に印加した後のチャンネル上の様子を示す。

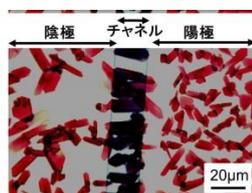


Fig.4 チャンネル上の様子(x2000)

これを見ると、単結晶の位置が、蒸着中に直流電場を印加した実験に比べてチャンネルの中心へシフトしていることが分かる。また、単結晶の長径がチャンネルの長軸に対し、垂直方向に配向していることが分かる。これらから、交流電場印加により、単結晶の位置・配向を制御することに成功したと考えることが出来る。また、Fig.4を見ると、単結晶が電極間を橋渡ししていることが分かる。

電極間を橋渡しした単結晶に対して、電気特性の計測を行うことが可能である。そこで交流電場を印加後、橋渡しした単結晶に対して、電気特性の計測を行った。Fig.5に、蒸着レート：0.3layer/min・蒸着時間：4時間の蒸着後、周波数：100 Hz・実効値：85 Vの交流電圧を印加した後のチャンネル上の様子とその特性計測の結果を示す。

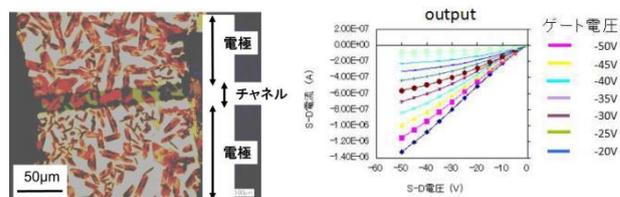


Fig.5 チャンネル上の様子(x1000)(左図)  
アウトプットグラフ(右図)

Fig.5のアウトプットグラフを見ると、ゲート電圧を印加するにつれ電極間の電流値が大きくなっていることが分かる。つまり、このチャンネルにおいてゲート依存性が示されたため、交流電場を印加したことで単結晶の位置・配向が制御され、単結晶 FET として機能したことが分かった。

### 4. まとめ

不揮発性の油を基板上に塗布し、そこへペンタセンを真空蒸着する実験を行い、直流電場印加下でペンタセンを真空蒸着するとチャンネル上の単結晶が電場に応答することが分かった。

また、蒸着後に交流電場を印加する実験を行い、交流電場により単結晶の位置・配向を制御し、単結晶 OFET を作製することに成功した。

[1] M.Voigt *et al.* *Phs.Rev.Lett.* 91 (2003)  
[2] J.Lee *et al.* *Appl.Phys.Lett.* 88 (2006)  
[3] K.Kotsuki *et al.* *Langmuir* 30 (2014)

