

博士論文審査の結果の要旨

氏名	大山 惇郎
学位名	博士 (工学)
学位番号	甲 第 719 号
論文題目	Melt-printing technology based on fluid phase for organic thin-film transistors (流動相を利用した溶融印刷技術による有機トランジスタの開発)
論文審査委員	主査 後藤 康夫 乾 滋 小山 俊樹 市川 結 酒井 正俊 (千葉大学) Tung-Huei Ke (IMEC (Belgium))

(博士論文審査の結果の要旨)

本論文は、有機半導体を加熱し溶融させることで流動相へと転移させ、流動相を用いて薄膜を形成する技術を提案し、メルトプリントと呼称するこの技術を詳細に検討している。すなわち、メルトプリントのプロセス条件を詳細に検討することで良質な薄膜を作製可能とし、併せて、成膜メカニズムの解明を行っている。また、作製膜のキャラクタリゼーションを入念に行い、単結晶性に近い優れた結晶性膜が得られることを明らかにし、作製膜をデバイスへ応用することで、従来の成膜方法に匹敵する特性を示すデバイスの作製に成功している。本論文は全5章で構成され、次世代エレクトロニクスと目される有機半導体エレクトロニクスにおける成膜技術としてのメルトプリントを詳細に研究している。

第1章では、有機エレクトロニクスに関する一般的な背景と本研究の着想につながる経緯が説明され、従来手法が抱える課題をコスト、エネルギー消費、環境負荷などの観点から述べ、有機エレクトロニクスにおけるメルトプリントの優位性をつまびらかにしている。

第2章では、実験手法と材料に関する詳細を述べ、メルトプリント膜の応用として、n型有機トランジスタを取り上げる意義を明確にしている。

第3章では、メルトプリントを有機トランジスタ作製に試行をすることによって明らかとなっていたメルトプリントのプロセス条件などを、トランジスタ特性の観点から整理している。メルトプリントによって従来法である真空蒸着法で作製された薄膜よりも結晶品質の高い薄膜が得られること、蒸着膜とは異なる結晶相が成長することを見出している。さらに、アルキル鎖長依存性などを含めた詳細な比較検討も行われている。

第4章では、スペーサーの重要性を明らかにしている。スペーサー高さがプリント膜の厚さの制御因子であることを明らかにし、ナノメートルスケールでの厚さ制御が可能であることを明らかにしている。また、メルトプリントの無溶媒化について記述されている。有機半導体微粒子分散インクを用いた前章の結果と無溶媒プロセスを比較することで無溶媒作製のアドバンテージを、プリント膜の結晶性の観点から明らかにしている。これらの検討を通して、メルトプリントを膜作製技術として洗練させている。

第5章では、メルトプリントにメニスカスガイドを組み合わせることで、パターンニングされた高品質薄膜結晶の成長条件を検討している。非常にユニーク方法であり、標準的な半導体微細加工技術の技術であるフォトリソグラフィを、メルトプリントに巧みに組み合わせている。メルトプリントのメカニズム検討から得られた知見がこの組み合わせを可能なものになっていることから、系統的で丁寧な研究が結実したものと言える。

以上のように、本論文は、有機半導体が次世代エレクトロニクスにおいて果たすべき役割を見据え、成膜手法としてのメルトプリントを詳細に研究している。各章で明らかにされた内容は学術的のみならず工学的にも価値のあるものである。以上のことから、本論文は学位論文に値するものと判断する。

(公表主要論文名)

[1] Atsuro Ohyama, Jun Miyazawa, Yoichiro Yokota, Naoki Hirata, Naomi Oguma, Musubu Ichikawa
Printing technology based on isotropic liquid phase of naphthalene diimide derivatives for
n-type organic transistors
Organic Electronics, **58**, 231-237 (2018).

[2] Atsuro Ohyama, Naoki Hirata, Naomi Oguma, Musubu Ichikawa
Solvent-free printing process for organic transistors using a naphthalene diimide bearing
long alkyl chains
Organic Electronics, **63**, 300-304 (2018).