

氏 名	張 妍 亭		
授与した学位	博 士		
専攻分野の名称	理 学		
学位授与番号	博甲第	6 7 1 4	号
学位授与の日付	2 0 2 2 年 9 月 2 2 日		
学位授与の要件	自然科学研究科 学際基礎科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)		
学位論文の題目	Study on transistor application of new phenacene-type molecules: characterization of molecules, device fabrication and operation properties (新しいフェナセン型分子のトランジスタへの応用に関する研究：分子のキャラクタリゼーション，デバイス作製ならびに動作特性)		
論文審査委員	教授 久保園 芳博	准教授 岡本 秀毅	准教授 後藤 秀徳 講師 江口 律子
学位論文内容の要旨			
<p>Field-effect transistors (FETs) using organic molecules as active layers have attracted much attention owing to the expectation of future ubiquitous and sustainable devices during the past thirty years. In this doctoral thesis, the author pursued the realization of high-performance FETs using phenacene derivatives. The concept of this study is to realize the close packing between molecules through strong π-π interaction and fastener effect. For this purpose, the dibenzo[n]phenacenes (DBnPs: $n = 5 - 7$) and alkyl-phenyl[n]phenacenes (PhCn'-[n]phenacenes: $n = 4 - 6$) were synthesized, and their molecules were employed for active layers of FETs. Moreover, the distribution of trap states in channel region of FET was investigated from temperature dependence of field-effect mobility μ and conductance G. The re-evaluation of μ of FETs using various phenacene molecules was conducted with effective field-effect mobility μ_{eff} as a new indicator.</p> <p>In chapters 4 and 6, the transport properties of FETs using DBnPs ($n = 5 - 7$) and PhCn'-[n]phenacenes ($n = 4 - 6$) were reported. DB6P showed the excellent FET properties with the averaged μ value of $2.0(7) \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. It has been found that C_{2h}-symmetrical DB6P shows higher FET performance than C_{2v}-symmetrical DB5P and DB7P molecules, because C_{2h}-symmetrical molecule can probably form the close packing in the crystal lattice. The molecules of PhCn'-[n]phenacenes ($n = 4 - 6$) were employed for the active layers of FETs. The concept of design of the molecules is that the introduction of alkyl and phenyl groups to phenacene cores would lead to close packing <i>via</i> fastener effect to provide large transfer integral between molecules. As a consequence, the high μ value ($= 1.66 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$) was recorded in the FET with thin films of 3-decyl-10-phenyl[5]phenacene (PhC10-PIC). In chapter 5, the author explores the trap states in channel region of DBnPs from the temperature dependence of μ and conductance G of DBnPs, and the multiple trap and release (MTR) model [1] and Lang's method [2] were used to obtain the information on trap states. DB6P showed narrower trap distribution and larger transfer integrals between molecules than DB5P and DB7P. These results reasonably explain the high μ of DB6P. In chapter 7, the FET properties of phenacene molecules are re-evaluated using a new indicator μ_{eff} [3], suggesting some phenacene and phenacene derivatives are promising for active layers in organic FETs. In summary, the author has attempted to seek the strategy for realizing high-performance FET devices from (1) design of molecule and (2) deep understanding of trap states and molecular packing of active layer.</p> <p>[1] D. Knipp <i>et al.</i>, <i>Appl. Phys. Lett.</i> 82, 3907-3909 (2003); [2] D. V. Lang <i>et al.</i>, <i>Phys. Rev. Lett.</i> 93, 086802 (2004); [3] H. H. Choi <i>et al.</i>, <i>Nat. Mater.</i> 17, 2-7 (2018).</p>			

論文審査結果の要旨

ZHANG Yanting 氏の学位論文では、有機電界効果トランジスタ (FET) の性能を向上させるために、「(1) 有機 FET の活性層として最適な物質を探索する、(2) 高性能な特性を示す FET の起源を解明する、(3) FET の評価指標である電界効果移動度を、理想的な FET 特性から捉えなおして、本質的に高い FET 特性かを考察する」の 3 つのアプローチを追求している。(1) に関しては、基本戦略として、アセンとフェナセンの混成型物質と、ファスナー効果を念頭にしたフェニル基とアルキル基をフェナセンに導入した物質を対象として研究を展開している。まず、アセン-フェナセン混成型物質である dibenzo[n]phenacenes (DBnPs: $n = 5 - 7$) は、いずれも $1.7 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 以上の移動度を示しているが、その中でも C_{2h} 分子対称性を有する DB6P が特に優れた性能を有することがわかった。アプローチ (2) として、高い移動度の起源を探るために、分子間の電荷トランスファー積分と、バンドギャップ内のトラップ状態密度に着目して研究を進め、FET の輸送特性の温度依存性と、移動度の温度依存性から、DB6P はバンド内に浅いトラップ準位が存在すること、またトラップのない場合を想定した移動度 (分子のトランスファー積分を直接反映) が DB5P や DB7P に比べて高いことを見いだした。実際に X 線単結晶構造解析の結果をもとにしたトランスファー積分の計算値は DB6P が一番高い。これは、DB6P 分子の対称性が C_{2h} であって、 C_{2v} の DB5P や DB7P よりもトランスファー積分が高くなる分子パッキングをすることに由来しており、それが高い結晶性と浅いトラップ準位の起源になっているものと結論した。alkyl-phenyl[n]phenacenes ($n = 4 - 6$) についても効率的なファスナー効果によって高い移動度が実現している。(3) については真に高い FET 特性を示すものを探り当てるために、通常の電界効果移動度を、理想的なショックレー型伝達特性の場合の移動度に還元した「有効電界効果移動度」という指標を使って、フェナセン系 FET を再評価して、[9]フェナセン単結晶 FET の優れた特性を確認した。これはベンゼンリングを拡張したフェナセン分子の FET の活性層としての有用性を示したものである。このように、ZHANG 氏の学位論文では、3 つのアプローチをもとに FET 特性向上の方針が探求され、基本的な特性向上戦略が示されており、博士の学位論文として十分に合格のレベルに達している。