

二国間交流事業 共同研究報告書

令和5年6月26日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]

東京工業大学・工学院

[職・氏名]

教授・間中 孝彰

[課題番号]

JPJSBP 120217705

1. 事業名 相手国: インド (振興会対応機関: DST) との共同研究

2. 研究課題名

(和文) 一軸性配向を有する狭バンドギャップ高分子半導体の配向メカニズムとキャリア輸送特性

(英文) Orientation mechanism of low band gap uniaxially-oriented polymer semiconductor and its carrier transport characteristics

3. 共同研究実施期間 令和3年 6月 1日 ~ 令和5年 5月 31日 (2年 0ヶ月)【延長前】 年 月 日 ~ 年 月 日 (年 ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

Indian Institute of Technology Varanasi・Professor・Rajiv Prakash

5. 委託費総額(返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		1,940,000 円
内訳	1年度目執行経費	950,000 円
	2年度目執行経費	950,000 円
	3年度目執行経費	40,000 円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	4名
相手国側参加者等	5名

* 参加者リスト(様式 B1(1))に表示される合計数を転記してください(途中で不参加となった方も含め、全ての期間で参加した通算の参加者数となります)。

7. 派遣・受入実績

	派遣		受入
	相手国	第三国	
1年度目	0		0(0)
2年度目	4		2(2)
3年度目	0		0(0)

* 派遣・受入実績(様式 B1(3))に表示される合計数を転記してください。

派遣:委託費を使用した日本側参加者等の相手国及び相手国以外への渡航実績(延べ人数)。
受入:相手国側参加者等の来日実績(延べ人数)。カッコ内は委託費で滞在費等を負担した内数。

8. 研究交流の概要・成果等

(1)研究交流概要(全期間を通じた研究交流の目的・実施状況)

研究の目的

高分子半導体は、製膜プロセスの簡便性や構造的な柔軟性から、ウェアラブルディスプレイなど、次世代の電子デバイス用半導体材料として注目されている。一方で、結晶性の低分子有機半導体材料と比較すると、依然として移動度が低く、高移動度化が課題である。高移動度を得るためには、新しい分子の開発だけでなく、分子間のキャリア輸送を最適化するための分子配向技術が重要であり、高分子半導体においては、主鎖を一方向に揃える一軸配向が有効とされる。その一方で、高分子の配向制御においては、最も重要となる配向メカニズムの理解が進んでいない。本研究の目的は、高度な高分子合成・プロセス技術を持つインド側研究機関と、分極イメージング技術を持つ日本側研究者が共同して、基板上に形成される主鎖配向メカニズムの解明を目指すものである。特に、本研究で用いる Floating Film Transfer Method (FTM 法)と呼ばれる高分子製膜法は、本申請に参画している日印研究者によるオリジナル技術であり、また日本側申請者の独自技術である分極可視化手法(EFISHG 法)を用いることで、配向プロセスのその場観察や、キャリア輸送の可視化が可能となる。このように、双方の独自技術を組み合わせることで、従来の高分子半導体研究に大きな学術的インパクトを与えることができると考えている。

1年度目の実施状況(*)

開始当初はコロナ禍で往来が困難だったため、適宜 Zoom で打合せ、議論をしながら、双方で実施できる研究を進めた。その後、渡航が可能となった段階で、双方の研究者が実際に往来して、実験および議論を行った。具体的には、インド側から Radhe Shyam 氏が約 60 日間、東京工業大学を訪問し、製膜条件の検討および、膜の基本的な光学物性および電気特性評価を行った。日本側から2名の参加者が訪印し、日本側での実験内容について報告するとともに、インド側のサンプル作成状況について議論した。また、訪日するインド側研究者と議論し、訪日時の研究内容について決定した。

(* コロナ禍による研究計画の遅延により、1 年間予算執行の延長が認められたため、実際の訪日・訪印時期は 2022 年となる。)

2年度目の実施状況

インド側にて1年度目に検討した成膜条件をもとに、引き続き、インド側および日本側でそれぞれ FTM 法による製膜と評価を行った。インド側から Nupur Kumari 氏が約 60 日間、九州工業大学を訪問し、評価用のデバイス作製(太陽電池、FET)および、基本的な電気特性評価を行った。日本側から2名の参加者(期間)が訪印し、日本側での実験内容について報告するとともに、今後の研究計画について議論した。また、訪日するインド側研究者と議論し、訪日時の研究内容について決定した。

(2)学術的価値(本研究交流により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

インド側で新規合成した高分子半導体材料について、温度や下地溶液、溶液濃度など FTM 法の成膜条件を最適化し、最適な特性が得られる条件を得た。特に、FTM 法における配向メカニズムに関する議論を進め、流体力学的な考察から、溶媒蒸発速度が重要であるという結論を得て、溶媒雰囲気化での FTM 成膜により、より高品質な膜を得ることに成功した。その結果として、高いキャリア移動度を得ることができた。FTM 法における

配向メカニズムに基づき、今年度は FTM に用いるサブフェーズを調整して、分子配向制御を試みた。サブフェーズにドデシルベンゼンスルホン酸(DBSA)を用いることで、DBSA の長い疎水基と P3HT の側鎖アルキル基との相互作用により、P3HT の配向制御に成功した。この方法は、溶媒可溶とするために、側鎖に疎水基を持つ多くの高分子半導体に対して有効な手法となる。作成した ITO/P3HT/AlO_x/Al サンドイッチ構造におけるショットキーバリアダイオード素子において、より高い整流比を得ることができた。これらの結果については、論文としてまとめた。

日本側では、インド側で検討した成膜条件を用いて、市販の高分子半導体材料を用いて成膜を行い、時間分解 SHG 法および蛍光イメージングによるキャリア輸送評価を通じて、成膜条件とキャリア輸送の異方性について議論した。また、インド側のサンプルを用いて、SHG のスペクトル評価を実施し、インド側が合成した分子を用いた評価が行える準備を整えた。その後、FTM で成膜したサンプルについては、EFISHG 測定および PL イメージング測定を実施し、キャリア輸送の異方性について評価を行った。その結果、FTM の成膜条件を調整することで、高いキャリア輸送異方性が得られることがわかった。

(3)相手国との交流(両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

有機材料の特徴はデバイス設計・材料設計の自由度の高さにあり、有機エレクトロニクス的发展には、分野をまたいだ様々な研究者の融合が欠かせない。今回の研究でも、有機薄膜やデバイスの評価法を研究する日本側研究者と、薄膜制御やデバイス化を得意とするインド側研究者の交流によって、多くの意義ある結果が得られた。そもそも共同研究のきっかけはインド側研究者が我々の EFISHG をはじめとする測定技術に興味を持ったこともあったが、日本側研究者もインド側が有していた新しい材料や、FTM による配向技術に強い関心を持っていたことも大きい。共同研究がスタートし、その過程で日本側研究者が実際にインド側研究室を訪問することで、成膜プロセスやデバイス作製過程の詳細を理解し、問題点の共有を図ることで、研究を加速することできた。また、共同研究では当初予定になかった新規材料やその機能性についても議論が大いに深まった。一方で、インド側研究者が訪日して日本側の評価装置を理解することで、デバイス動作に関する深い議論が可能となった。特に、お互いがこれまでにないアイデアを着想できたところは交流によって得られた大きな成果と言える。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の社会的貢献はどのようにあったか)

本研究で対象としている各種有機半導体デバイスは、柔軟性や軽量性など次世代の電子デバイスとして注目を集めている。特に、本研究で扱っているデバイス・材料は有機トランジスタや有機太陽電池であり、将来的には、エネルギー問題の解決に貢献できる期待されている。しかし、現状では移動度や変換効率、素子寿命などの課題も多く、これらの解決が喫緊の課題として挙げられている。本研究で得られた知見は、これらの有機デバイスの性能向上に不可欠な要素であり、現状での社会的貢献は限定的であるが、将来的にこれらの技術を活かすことで、重要な社会的貢献が可能であると考えている。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

インド側の対応機関であるインド工科大学に所属する学生は、インド最高の教育機関に属しているという自負もあり、研究に対する意識が非常に高い。しかしながら、外国(特に日本)の研究者と直接接する機会が多いとは言えないようである。また、インドにおいても有機エレクトロニクスへの関心は高いものの、日本と比較すると研

究者人口もそれほど多くない。このような理由からか、大学院学生を中心に積極的に議論をして、多くを吸収しようという強い姿勢が感じられた。我々の研究内容を紹介すると非常に多くの質問が飛び出し、有意義な議論を交わすことができた。インドにおいては日本に来ることができないでいる彼らの研究内容を紹介してもらい、これに対してこちらからも多くのコメント、質問をしたことで、大いに刺激になったようである。一方で、日本側についても、受け入れ機関である本学の学生に対して、国籍の違う研究者と一緒に議論できるような環境を整備したことで、日本人学生が大いに刺激を受け、現在の学術研究における国際協力の重要性を認識してくれたようである。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

本研究では、多くの部分が計画通りに遂行できたと考えている。ただし、共同研究期間中に明らかとなった共役系高分子への添加材効果は、現象としては非常に興味深いはまだ不明な点も残っており、本共同研究期間終了後も情報を交換しながらこの部分の研究を継続していく予定である。また、インド側が得意とする FTM によって作られる高移動度薄膜については、我々が有している配向膜における移動度異方性評価技術と合わせ、連絡を密にしながら引き続き検討することとなった。また、今後インド工科大学の学生を研究室で短期に受け入れるといった交流も可能な限り具体的に進めていくことで合意した。

(7)その他(上記(2)～(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

例:大学間協定の締結、他事業への展開、受賞など