

富士フイルム・機能性材料化学賞

岡本 敏宏 氏(東京大学大学院新領域科学研究科・准教授)

Toshihiro Okamoto

(業績)「高性能かつロバストな p 型および n 型有機半導体の開発」

Development of High-performance, Robust p- and n-Type Organic Semiconductors



次世代電子デバイス産業の基盤として期待される有機エレクトロニクスの研究において、集積回路などの実デバイス応用による巨大な市場形成の実現にはキャリア移動度等の半導体性能に加えて、製作工程や使用環境を考慮にいたった一段高いレベルでの有機半導体材料の分子設計が求められている。産業応用を見据えると、有機半導体には(1)化学的かつ熱的に高い安定性を有すること、(2)塗布プロセス可能な溶解性を有すること、(3)高移動度かつデバイス駆動時における熱、環境、バイアスストレス耐久性を有すること、(4)数 10 g スケールで簡便に合成できることなどが求められる。以下に、岡本敏宏氏の代表的な研究業績の概要をまとめる。

1. 高性能かつロバストな p 型有機半導体材料の開発

同氏が設計した有機半導体分子である第 1 世代(G1) 典型元素架橋屈曲型 π 電子系コア (以下、 π コアと略す)、V 字型 dinaphtho[2,3-*b*:2',3'-*d*]thiophene (DNT-V)群および N 字型 dinaphtho[2,3-*d*:2',3'-*d'*]benzo [1,2-*b*:4,5-*b'*]dithiophene (DNBDT-N)群は、分子形状にこだわり、伝導を担う π コアに「分子屈曲」という新たな概念を導入し、大きな軌道係数を有する張り出した典型元素間の有効的な軌道の重なり増大と積極的な分子間相互作用による高移動度化および集合体構造の安定化を指向した分子群である。一連の G1 屈曲型 π コアは、新たに開発した合成法により簡便かつ効率的に合成可能であった。得られた G1 誘導体は、ヘリンボーン型集合体構造を形成し、集合体構造データを用いた理論計算から異方性の小さい二次元伝導システムであることがわかった。塗布単結晶化法で作製した単結晶薄膜を用いたトランジスタにおいて、代表的な G1 誘導体であるアルキル置換 DNBDT-NW は大気下で $16 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の世界最高レベルの正孔移動度を示した。また、一連の G1 誘導体は、従来の有機半導体に見られる棒状 π コアでは実現困難な $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 以上の結晶安定性を示し、環境ストレス耐性に加えて、デバイス熱・バイアスストレス耐性も実現した。さらに、第 2 世代 (G2) 屈曲型 π コア群として開発した Zig-zag 型分子群は、分子形状に加えて、分子長軸方向にひろがった特異的な「分子軌道形態」を有する分子群である。実際、G1 誘導体と同程度の高い正孔移動度、結晶安定性およびデバイス耐性を達成した。

2. 高性能かつロバストな n 型有機半導体材料の開発

正孔輸送性の p 型有機半導体に比べ、電子輸送性の n 型有機半導体は極端に報告例が少なく、性能も低い。これまでに塗布結晶膜で電子移動度が $1 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ を超える材料がいくつか報告されているが、産業応用を見据えた要件を満たす n 型半導体材料の前例はない。同氏は、分子間相互作用と軌道の重なり増大を指向し、適切な位置に窒素元素を導入した 3,4,9,10-benzo[*de*]isoquinolino[1,8-*gh*]quinolinetetracarboxylic diimide (BQQDI) 骨格を新たに設計した。窒素元素の導入によって、(1) benzo[*de*]isoquinolino[1,8-*gh*]quinoline (BQQ) 骨格による積極的な分子間相互作用と有効的な軌道の重なり増大、(2)効率的な LUMO 準位の低下 (-4.17 eV) に由来するデバイス大気安定性の向上が期待された。有機合成技術を駆使し、1,5-ジニトロアントラキノンから 7 ステップで鍵前駆体である酸無水物を合成し、続く各種アミンとの反応により BQQDI 誘導体を良好な収率で得た。一連の誘導体のうち、フェネチル基置換 $\text{PhC}_2\text{-BQQDI}$ は、BQQDI 骨格間の多点の水素結合による引力的相互作用に加えて、末端のフェニル基間の $\text{CH}-\pi$ 相互作用により、異方性の小さな二次元伝導システムであるブリックワーク型集合体構造を形成し、高い電子移動度と構造安定性が示唆された。実際に、 $\text{PhC}_2\text{-BQQDI}$ は大気下で安定駆動し、n 型有機半導体材料として世界最高レベルの $3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ の電子移動度を示し、半年以上の大気安定性と $150 \text{ }^\circ\text{C}$ を超える高熱ストレス耐性とバイアスストレス耐性を有する世界初のロバストな n 型有機半導体であることも明らかになった。

以上のように、岡本氏は、有機合成化学、物理有機化学、有機材料化学、デバイス工学など、化学およびデバイス双方の観点から研究に取り組み、高性能かつロバストな産業応用に適した p 型および n 型有機半導体の開発に世界にさきがけて成功した。一連の化合物は最先端の有機合成技術をもって達成されたものであり、有機合成化学研究の重要性を示すものである。また、本成果は材料分野の最高峰の学術雑誌や著名な国際学会での招待講演等で多数発表され、国内外で独創性の高い研究アプローチとして高い評価を得ている。以上のことから、有機合成化学協会富士フイルム・機能性材料化学賞に値するものと認め、ここに選定した次第である。