

2023 年度年次報告書

未踏探索空間における革新的物質の開発

2021 年度採択研究代表者

竹谷 純一

東京大学 大学院新領域創成科学研究科

教授

電子閉じ込め分子の二次元結晶と汎用量子デバイスの開発

主たる共同研究者:

岡本 敏宏 (東京工業大学 物質理工学院 教授)

小林 伸彦 (筑波大学 数理物質系 教授)

山下 侑 (物質・材料研究機構 ナノアーキテクトニクス材料研究センター 研究員)

研究成果の概要

有機単結晶二次元キャリア閉じ込め系(2DHG)の電子相制御開発において、有機半導体単結晶に高密度にドーピングする手法を新たに開発するとともに、1軸歪効果を低温磁場環境下で精密に測定する手法を確立した。高密度ドーピングされた 2DHG の数 K 程度の低温での磁気抵抗効果の精密測定に成功し、非弾性散乱長の見積もりから位相コヒーレンスの長さが数 100 nm になることを明らかにした。この結果は、本 CREST 研究の後半で実施する AB 効果などの量子干渉現象や量子デバイスを開発する基盤となる重要な成果である。また、プロトン共役電子移動反応を用いてホールとアニオンを導入するドーピング手法を独自に開発し、水溶液 pH によるドーピング量の精密制御に成功して、Nature 誌に掲載された。³ (Nature 622, 285-291 (2023))

電子閉じ込め分子の縦型デバイス開発において、電子閉じ込め分子の 2 次元結晶構造にて二次元バンド分散の大きな状態密度を反映した縦型トンネルデバイスで、二次元分散のないディスオーダー系とは比べ物にならないくらいの大電流が得られることを実験と理論において、明らかにした。

電子閉じ込め分子の結晶構造シミュレーション研究において、柔軟部とハードコアの共存する電子閉じ込め分子では、構造予測計算において、現実には得られない結晶構造が安定構造として提案される課題があった。柔軟部分のエントロピーを考慮して、有限温度で二次元構造が安定化する手法を見出し、未踏の物質開拓空間を構築するアルゴリズムを見出す成果を得た。

以上の有機半導体薄膜や金属表面の分子層コーティング成果により、電気二重層を安定に形成した無線給電デバイスを開発し有機半導体の実用集積回路の駆動に成功した。また、2022 年度に設立したスマートフィルムデバイス協会を拡充し、本 CREST 研究の成果を含め、様々な有機エレクトロニクスデバイスの製品開発や社会実装を進めている。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Z. Guo, T. Sato, Y. Han, N. Takamura, R. Ikeda, T. Miyamoto, N. Kida, M. Ogino, Y. Takahashi, N. Kasuya, S. Watanabe, J. Takeya, Q. Wei, M. Mukaida, and H. Okamoto, Band transport evidence in PEDOT:PSS films using broadband optical spectroscopy from terahertz to ultraviolet region, *Communications Materials volume 5, Article number: 26* (2024)
- 2) K. Watanabe, N. Miura, H. Taguchi, T. Komatsu, A. Aratake, T. Makita, M. Tanabe, T. Wakimoto, S. Kumagai, T. Okamoto, S. Watanabe, J. Takeya, All-Carbon-Based Complementary Integrated Circuits, *Adv. Mater. Technologies, Vol 9, P2301673-P2301684*, (2024)
- 3) Masaki Ishii, Yu Yamashita, Shun Watanabe, Katsuhiko Ariga and Jun Takeya, Doping of molecular semiconductors through proton-coupled electron transfer, *Nature, Vol 622, P285-P291*, (2023)
- 4) Yuzu Kobayashi, Yasuyuki Yokota*, Yasufumi Takahashi*, Jun Takeya, and Yousoo Kim*, Electrodeposited Gold Probe for Electrochemical Scanning Tunneling Microscopy, *The Journal of Physical Chemistry C Vol 127, P13929-P13935*, (2023)
- 5) Taehyun Won, Shohei Kumagai*, Naotaka Kasuya*, Yu Yamashita, Shun Watanabe, Toshihiro Okamoto and Jun Takeya*, Individual and synergetic charge transport properties at the solid

and electrolyte interfaces of a single ultrathin single crystal of organic semiconductors , *Physical Chemistry Chemical Physics* Vol 25, P14496-P14501, (2023)