

実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新
2018年度採択研究代表者

2018年度
実績報告書

長谷川 達生

東京大学大学院工学系研究科
教授

実験・計算・データ科学融合による 塗布型電子材料の開発

§ 1. 研究成果の概要

① データ科学による材料探索では、結晶構造データベースから高機能材料を発掘するためのスクリーニングに着手した。塗布型強誘電体として有望な分子を選定するため、水素原子の有無により対称性が変化することを条件とする網羅的な探索手法の検討を行った。また p 型/n 型の塗布型半導体として有望な分子の選定条件を考案し、候補物質を抽出する手法の検討を行った。さらに、新規有機化合物の結晶構造を合成前に予測することを目的に、従来無視されていたフォノンの影響を考慮し、有限温度における固体中の結晶構造を予測するための基本アルゴリズムを考案した。

② 計算科学による機能予測では、塗布型半導体に関して、結晶構造と分子間相互作用の相関を検討する塗布型半導体の候補物質として、アルキル鎖長により結晶内の分子配列構造が僅かに変化するチエノアセン誘導体を選定し、まずは結晶中の水素原子の位置の精密化に着手した。またこれら含硫黄芳香族分子系について、高精度の *ab initio* 分子軌道法 (CCSD(T)法) で計算したポテンシャルと比較することにより、分子間相互作用 (分子間引力) を精度よく見積もることができる汎関数と分散力補正法の組み合わせの検討を行った。また塗布型強誘電体に関して、新たに開発した材料 BI2P で見られた電場誘起強誘電相について、実験で得られた原子位置を初期構造とし理論計算で最適化し、さらに Berry 位相の手法を用いて電子分極の予測計算を行うことにより、構造モデルの妥当性を確認するとともに、実験で得られた分極値を概ね再現することができた。

③ 実材料開発では、塗布型半導体について、高い層状結晶性と高いデバイス性能が期待できる 2 分子膜ヘリンボーン型結晶構造に焦点をあて、この分子配列構造に凝集する系統的な分子材料開発に着手した。 π 骨格の拡張と置換位置制御によって、2 分子膜型ヘリンボーン構造による高い層状結晶性を保ちつつ、溶解性と熱安定性を強化した実用性の高い分子材料の開発に一部成功するとともに、その詳細な構造解析結果をもとに 2 分子膜ヘリンボーン型分子配列構造の起源を考察した。また塗布型強誘電体について、高分極発生ユニットであるイミダゾールに焦点を当てた材料開発を行い、縮合多環化や架橋連結化により耐熱性と溶解性を併せ持つ強誘電・反強誘電体材料の開発に成功した。このうちフェニレン架橋化合物 BI2P では、プロトン位置が電場下で秩序化することによる反強誘電的な分極スイッチ現象が見られることを明らかにした。

④ 結晶構造解析では、層状結晶性の高い数種類の典型的な塗布型半導体薄膜の放射光 X 線回折実験を行うことにより、高品質な一軸配向性薄膜であることを示す明瞭なラウエフリングを伴う回折を観測した。また GIXD による面内の回折パターンから単位胞を決定し、バルク単結晶とはやや異なる格子定数を有することを見出し、分子長軸方向の変調の可能性を検討した。さらに高い層状結晶性のため構造解析が困難な材料系について、単位胞内の詳細な構造情報を得るための今後の方策について検討を行った。

⑤ 薄膜デバイス開発では、多数の塗布型半導体、及び塗布型強誘電体の塗布製膜とデバイス構築による性能評価を行った。特に本プロジェクトで主眼とする高精細電極配線印刷との統合に向けて、高撥水性の基材表面上に、低分子系の塗布型半導体の高均質な塗布製膜が可能な新たな製膜法の開発に着手した。電極部位における表面エネルギー制御によりこれが可能なことを確認するとともに、良好な半導体-絶縁体界面の形成により非常に鋭いスイッチング特性を示すデバイス動作の確認に成功した。さらに塗布型強誘電体については、塗布により形成した強誘電薄膜内の 3 次元的な強誘電ドメイン壁の構造を、電圧印加に伴う光透過率変化を用いて、高速・大面積・

非接触に可視化する新たな手法(強誘電体電界変調イメージング法)の開発に成功した。

【代表的な原著論文】

1. Yohei Uemura, Shunto Arai, Jun'ya Tsutsumi, Satoshi Matsuoka, Hiroyuki Yamada, Reiji Kumai, Sachio Horiuchi, Akihito Sawa, and Tatsuo Hasegawa, “Field-Modulation Imaging of Ferroelectric Domains in Molecular Single-Crystal Films”, Phys. Rev. Applied vol. 11, No. 1, 014046 (1-9), 2019.

§ 2. 研究実施体制

(1)「長谷川」グループ

① 研究代表者:長谷川 達生 (東京大学大学院工学系研究科 教授)

② 研究項目

・実験科学による塗布型電子材料の開発

(2)「堀内」グループ

① 主たる共同研究者:堀内 佐智雄

(産業技術総合研究所電子光技術研究部門 上級主任研究員)

② 研究項目

・塗布型有機強誘電体材料の開発

(3)「松井」グループ

① 主たる共同研究者:松井 弘之 (山形大学大学院有機材料システム研究科 准教授)

② 研究項目

・機械学習と計算科学による塗布型電子材料の構造・機能予測

(4)「都築」グループ

① 主たる共同研究者:都築 誠二

(産業技術総合研究所機能材料コンピュータショナルデザイン研究センター
上級主任研究員)

② 研究項目

・計算科学による塗布型電子材料の精密電子構造解析

(5) 熊井グループ

① 主たる共同研究者:熊井 玲児

(高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 教授)

② 研究項目

・塗布型電子材料の高度結晶構造解析