

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

2021 年度 年次報告書
------------------

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

第四年次の本年度も昨年度に続き、計算・データ科学により塗布型電子材料の分子配列構造・電子機能を予測する手法開発、デバイス製造に最適な実材料開発、及び製膜プロセス高度化を一体化した研究を進展させた。

高精度量子化学計算を用いた結晶構造予測については、拡張  $\pi$  電子骨格とアルキル鎖が連結し高い層状結晶性を示す非対称有機半導体を対象とする構造予測を本格的に進めた。モデルとなるモノアルキル-BTBT 系について、昨年度までに開発した段階的構造予測法による構造予測に成功した。また結晶構造DBを用いた有望物質探索・転移学習による溶解度予測、及び結晶構造から強誘電体特性・移動度等を予測する手法開発を進めた。

実材料開発では、高性能が期待される上記非対称有機半導体の系統的開発を進め、 $\pi$  骨格の構造異性効果・置換基による積層構造制御効果・分子混合による配列制御効果等の発現を見出した。また新たな置換基を付与した材料において、分子配列の秩序と乱れが共存した高性能な液晶性有機半導体を開発し、その極薄膜が液晶凍結状態にあることを見出した。またスピナー型の塗布型強誘電体も新たに4例見出した。

高度結晶構造解析手法開発では、極薄のため通常手法では解析困難な上記の液晶性有機半導体について、クライオ電子顕微鏡を用いた電子回折による構造解析に成功した。さらに放射光や X 線自由電子レーザーを駆使し、解析困難な試料の解析手法開発を進展させた。

デバイス開発では、昨年度開発した高急峻スイッチング TFT の性能を律速する原因が、電極-半導体-絶縁層による3元界面のキャリア輸送に由来することを突き止めた。さらに塗布型半導体の簡易製膜手法開発を進め、本研究で開発した *mono-C<sub>n</sub>-BTNT* に絶縁ポリマーブレンド法を適用し、 $3 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  を超える移動度と  $180 \text{ mV}/\text{dec}$  の優れた SS 値を確認するとともに、ブレンド層内部の半導体相/ポリマー相の相分離構造を高分子ナノメカニクス法により明らかにした。

## § 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 電子光基礎技術研究部門 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) 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

### (5) 米倉グループ

- ① 主たる共同研究者: 米倉 功治 (理化学研究所 放射光科学研究センター グループディレクター / 東北大学 多元物質科学研究所 教授)
- ② 研究項目
  - ・塗布型電子材料の電子線結晶構造解析

### 【代表的な原著論文情報】

- 1) Koji Yonekura, Saori Maki-Yonekura, Hisashi Naitow, Tasuku Hamaguchi, and Kiyofumi Takaba, “Machine Learning-based Real-time Object Locator/evaluator for Cryo-EM Data Collection”, *Communications Biology* Vol. 4, 1044:1-8 (2021).
- 2) Sachio Horiuchi and Shoji Ishibashi, “Large Polarization and Record-High Performance of Energy-Storage Induced by a Phase Change in Organic Molecular Crystals”, *Chemical Science* Vol. 12, No. 42, 14198-14206 (2021).

- 3) Gyo Kitahara, Mitsuhiro Ikawa, Satoshi Matsuoka, Shunto Arai, and Tatsuo Hasegawa, “Approaching Trap-Minimized Polymer Thin-Film Transistors”, *Advanced Functional Materials* Vol.31, No. 52, 2105933:1–11 (2021).
- 4) Satoru Inoue, Kiyoshi Nikaido, Toshiki Higashino, Shunto Arai, Mutsuo Tanaka, Reiji Kumai, Seiji Tsuzuki, Sachio Horiuchi, Haruki Sugiyama, Yasutomo Segawa, Kiyofumi Takaba, Saori Maki-Yonekura, Koji Yonekura, and Tatsuo Hasegawa, “Emerging Disordered Layered-Herringbone Phase in Organic Semiconductors Unveiled by Electron Crystallography”, *Chemistry of Materials* Vol. 34, No. 1, 72–83 (2022).
- 5) Ryo Miyata, Satoru Inoue, Ken Nakajima, and Tatsuo Hasegawa, “Insulating Polymer Blend Organic Thin-Film Transistors Based on Bilayer-Type Alkylated Benzothieno[3,2-b]naphtho[2,3-b]thiophene”, *ACS Applied Materials Interfaces* Vol. 14, No. 15, 17719–17726 (2022).