

最先端・次世代研究開発支援プログラム
事後評価書

研究課題名	全有機分子サイリスタ・ソレノイドのデザインと実証
研究機関・部局・職名	大阪大学・大学院工学研究科・教授
氏名	関 修平

【研究目的】

近年、多くの有機・無機電子材料(Organic Photovoltaic Cells: OPC・Organic Field Effect Transistor: OFET・Organic Light Emitting Diode: OLED)の提案が活発になされており、それら無定形固体・結晶・超分子集合体など、さまざまな状態において電荷輸送特性の評価がなされている。既にアモルファスシリコン材料に匹敵する電荷移動度を示す有機材料の報告が何例かなされており、有機材料をベースとした上記素子の実用化も視野に入りつつあるが、対象となっている有機分子はきわめて多様であると同時に、Try and Errorsによる特性評価が行われているのが現状である。たとえば、半導体としてのもっとも基礎的な特性である支配的キャリア種(p型・n型)を考えてみても、分子論的なHOMO・LUMOの準位を基礎とした議論の限界が指摘されている。分子積層の構造・様式によって価電子・伝導バンドは大きく影響を受け、電荷キャリアの有効質量が大きく変化することから、従来p型と思われてきた有機半導体でも、分子構造・積層構造によっては、ある程度の電子移動度が期待できることが明らかとなってきた。これは、発達した共役系を有する有機分子が、構造的に高い自由度を有し、かつ制御可能な真性半導体となりうることを意味しており、①分子骨格の化学構造に依存した本質的な特性の理解、②分子積層構造と電子輸送特性の定量的な相関、の解明が強く望まれている。一方で、数多くの発達共役系を有する有機分子及びその集合体材料において、その設計・合成の後、煩雑な精製・素子形成・評価法そのものなど、最適化プロセスを徹底的に詰めた評価は極めてハードルが高く、既に現存している有機・無機材料の中でも“見逃されている”材料はきわめて多い。

「材料を作った後、すぐにその材料の潜在能力を知る」ことができる手法の意義は大きく、研究代表者は多くの合成化学者・材料研究者が「これぞ」というアイデアに基づいて提案する材料を、「特段の前処理無しに」、「きわめて迅速に」、「完全に実験的に」、「どんな材料でも」、その内部における電荷輸送性能(電荷移動度)を明らかにする手法である光分解時間分解マイクロ波吸収伝導度測定法(FP-TRMC法)の開発を行ってきた。この過程で、今一度共役分子材料の積層構造の徹底的な探索・制御を行う必要性が示唆されたことから、「分子の積層構造・外部磁場によって、電子輸送特性を制御できる有機分子で構成された材料を探し出す」ことを本研究の主目的と設定した。本研究の展開において、上述の①および②に対応した手法として次の計測・解析目標を挙げている。

(1)位相変調型マイクロ波伝導度測定法の開発、

(2) 分子の積層構造制御のための環境制御下における非接触伝導度測定法の開発制御対象因子として、温度・圧力・磁場を設定、これらの開発対象となる計測・解析手法を駆使し、本研究の終了時の目標として次の項目を挙げる：

(A) 高い1軸電子輸送異方性を有する有機分子の積層構造のうち、「行き」と「帰り」で異なる電子輸送特性を示す全有機素子の実証

(B) すべて有機分子のみで構成された伝導性らせん軸に沿った電子伝導に伴う磁気応答特性の実証

【総合評価】

○ 特に優れた成果が得られている

優れた成果が得られている

一定の成果が得られている

十分な成果が得られていない

【所見】

① 総合所見

本研究で開発を進めている位相変調マイクロ波伝導度測定法と環境制御下非接触伝導度測定法は、いずれも本研究代表者のみが、現在所有している世界的にも稀有な材料物性評価法である。

前者はマイクロ波による伝導度測定法を利用し、材料の伝導特性評価技術の高度化と迅速化にきわめて有効であり、研究開始時から研究終了時まで400を超える材料の本質的移動度を明らかにした。

後者は、雰囲気・温度・圧力・界面構造など、電子輸送材料においてきわめて重要な因子を現時点までにはほぼ制御下に置くことに成功し、電子伝導を支配する機構の遷移を実験的に明らかにし、熱を有効に利用するための分子設計指針を初めて明らかにするなど、その先進性・革新性は高い。

本研究課題で上げられた所期の目的は、ほぼすべて達成された。

本研究の最大の優位性は、そのスピードはもとより、「全実験的」なことにある。材料中の電荷輸送を明らかにする手法には、FET法やtime-of-flight(TOF)法など、多くの手法が存在する。本研究で得られた電荷輸送特性と分子構造の相関に関する知見は全実験的に得られるがゆえに、これら従来の手法によって得られたデータと比較することで、測定法の問題点を明らかにすることができる。材料中の電子輸送の律速段階(材料そのものの特性ではなく、固体構造や不純物、界面などに律速される場合)を指摘し、材料の持つ潜在能力を明らかにできる手法として、圧倒的に高い優位性を有している。

共役高分子材料、共役材料組織体についてのスクリーニングの結果、最大2ケタの非等方伝導特性を示す材料、ならびに高い輸送特性と一次元非等方特性の両立が可能な材料を見つけたことは、特記すべきことである。

有機電子材料の分野において、電荷移動輸送最適化のための共役骨格構造・分子積層構造と局所電荷移動度の相関に関する知見は、電荷輸送に最適な分子積層構造の探索を行う上で有用であり、今後の同分野の研究の進展へ大きく寄与する。また、研究代表者が開発した圧力印加下非接触伝導度測定システムを用いた材料の評価法は、他

の研究者が使えるように進化すれば、それによって目的とする分野が大きく進展すると期待できる。

本研究課題の成果によって、レアメタルを使わずに、半導体、太陽電池、電界発光材料等を作り出せる有機エレクトロニクス材料を、最終的に創製することができれば、社会的、政治的、経済的な面からのインパクトは、極めて大きい。有機材料によるシリコン系半導体の部分的置換に向けて、多くの候補材料が、すでに提案されつつある。

本研究の成果は、グリーン・イノベーションへの貢献が、直接的ではないが、大いに見込まれる。

研究計画、研究実施体制は、適切であった。指摘事項にも適切に対応した。共同研究者の教育にも尽力し、多くの優秀な研究者を育て、学会へ送り込んだ。研究助成金は、研究開始時点での計画に基づいて適切に使用した。

インパクトファクターの高い学術誌へ、数多くの論文を発表した。さらに 2011～2014 年の間の論文引用回数は 2,500 回を超え、直近 1 年間において 1,500 回を超えており、論文発表による成果への反響は甚大である。積極的に知的財産権の取得に努力した。

新聞・雑誌等へ、その他の一般向けに各種メディアを積極的に活用して研究成果の発信に努めた。

国民との科学技術対話は、サイエンスカフェなどを利用して適切に実施された。

② 目的の達成状況

・所期の目的が

(全て達成された ・ 一部達成された ・ 達成されなかった)

所期の目的は、ほぼすべて達成された。

前項に記載した本研究の展開において開発を行う計測・解析目標として挙げた項目、「位相変調型マイクロ波伝導度測定法」「環境制御下における非接触伝導度測定法」はいずれも、平成 24 年度中にその開発と実証を終え、1 軸非等方伝導性材料・サイリスタ特性を示すナノ構造 p/n ジャンクション構造の提案についてはすでに報告・公表を行った。

これらの研究課題の遂行から派生した、①高効率・高安定光電変換材料評価手法としての提案、②高感度爆発物検出システムの提案、③界面選択的な電子輸送の非接触定量評価システムの構築、についてすでに発表を行った。

環境制御下、特に磁場印可下の非接触伝導度測定法は、残されている課題であるが、磁場印可下の非接触伝導度測定法そのものはすでに開発を終えている。現在までに設計・合成・スクリーニングを行っているらせん軸を有する有機材料群は、すべて検出可能な磁場応答特性に至る高い電子輸送能を有していないことが明らかとなっている。

平成 24 年度に、電荷輸送効率（電荷移動度）が、室温下 Hopping 機構のほぼ上限に達する有機共役材料が存在することを示し、同時にこれ以上の電荷移動度を達成するための分子設計指針を得た。したがって、本研究課題提案時の目標である「デザイン」は達成されたが、研究遂行により新たに生まれた課題、「静的な分子構造デザインから、実証にあたっては、熱・動的な運動を考慮すべき」という課題について、今後検討する必要がある。

③ 研究の成果

・これまでの研究成果により判明した事実や開発した技術等に先進性・優位性が
(ある ・ ない)

・ブレークスルーと呼べるような特筆すべき研究成果が
(創出された ・ 創出されなかった)

・当初の目的の他に得られた成果が (ある ・ ない)

・本研究で得られた研究成果の先進性・革新性・優位性はある。
本研究で開発を進めている位相変調マイクロ波伝導度測定法・環境制御下非接触伝導度測定法はいずれも現在、本研究代表者のみが有している世界的にも稀有な材料物性評価法である。前者はマイクロ波による伝導度測定法を利用した材料の伝導特性評価技術の高度化と迅速化にきわめて有効であり、研究開始時から研究終了時まで、400 を超える材料の本質的移動度を明らかにした。後者は雰囲気・温度・圧力・界面構造と言って電子輸送材料においてきわめて重要な因子を現時点までにはほぼ制御下に置くことに成功し、電子伝導を支配する機構の遷移を実験的に明らかにして、熱を有効に利用するための分子設計指針を初めて明らかにするなど、その先進性・革新性は高い。

本研究の最大の優位性はそのスピードはもとより、「全実験的」な点にある。材料中の電荷輸送を明らかにする手法は、前述の FET 法や time-of-flight (TOF) 法など、多くの手法が存在する。本研究で得られた電荷輸送特性と分子構造の相関に関する知見は全実験的に得られるがゆえに、これら従来の手法によって得られたデータと比較することで、従来の測定法の問題点を明らかにすることができる。材料中の電子輸送の律速段階（材料そのものの特性ではなく、固体構造や不純物、界面などに律速される場合）を指摘し、材料の持つ潜在能力を明らかにできる手法として、圧倒的に高い優位性を有している。

・本研究で得られた研究成果で特筆すべきものはある。

共役高分子材料、共役材料組織体についてのスクリーニングの結果、最大 2 ケタの非等方伝導特性を示す材料、ならびに高い輸送特性と一次元非等方特性の両立が可能な材料を見つけたことは、特記すべきことである。

・当初の目的の他に得られた成果はない。

④ 研究成果の効果

・研究成果は、関連する研究分野への波及効果が
(見込まれる ・ 見込まれない)

・社会的・経済的な課題の解決への波及効果が
(見込まれる ・ 見込まれない)

・本研究の成果は、関連する研究分野の進展に寄与が見込まれる。

有機電子材料の分野において、電荷移動輸送最適化のための共役骨格構造・分子積層構造と局所電荷移動度の相関に関する知見は、電荷輸送に最適な分子積層構造の探索を行う上で有用であり、今後の同分野の研究の進展へ大きく寄与する。また、研究

代表者が開発してきた圧力印加下非接触伝導度測定システムを用いた材料の評価法は、他の研究者が使えるように進化すれば、それによって目的とする分野が大きく進展すると期待できる。

本研究課題の成果によって、レアメタルを使わずに、半導体、太陽電池、電界発光材料等を作り出せる有機エレクトロニクス材料を、最終的に創製することができれば、社会的、政治的、経済的な面からのインパクトは、極めて大きい。有機材料によるシリコン系半導体の部分的置換に向けて、多くの候補材料が、すでに提案されつつある。

- ・ 本研究の成果は、グリーン・イノベーションへの貢献が見込まれる。
直接的ではないが、貢献は大いに見込まれる。

⑤ 研究実施マネジメントの状況

- ・ 適切なマネジメントが (行われた ・ 行われなかった)

- ・ 研究目的達成に向けての研究計画の適切性、研究実施体制の適切性、マネジメントの適切性は高い。助成金の有効な利活用、指摘事項への対応状況は適切であった。

これらすべての点において対応は、適切であった。共同研究者の教育にも尽力し、多くの優秀な研究者を育て、学会へ送り込んだ。研究助成金は、研究開始時点での計画に基づいて適切に使用した。指摘事項に真摯に対応した。

- ・ 論文発表、会議発表、知的財産権の出願・取得状況、その他への研究成果の積極的な公表や発信が適切に行われた

インパクトファクターの高い学術誌へ、数多くの論文を発表した。さらに 2011～2014 年間の論文引用回数は 2500 回を超え、直近 1 年間において 1500 回を超えており、論文発表の反響は甚大である。積極的に知的財産権の取得に努力した。

新聞・雑誌等へ、その他の一般向けに各種メディアを積極的に活用して研究成果の発信に努めた。これらのうち主なものは、

- 1) 「有機薄膜太陽電池の発電効率を向上」日本経済新聞 2012/8/28 朝刊、
- 2) 「分子つないで細～いひも」朝日新聞 2012/8/30 朝刊 16 面、
- 3) 「ジグザグ型の伝導性高分子材料」日刊工業新聞 2013/4/10 朝刊 23 面、
- 4) 「電荷の移動速度向上」日経産業新聞 2013/4/10 朝刊 6 面、
- 5) 「電気抵抗 非接触で計測 阪大、太陽電池の性能向上」日経産業新聞 2013/11/14 朝刊 11 面、

などである。

- ・ 国民との科学技術対話が適切に実施された。

一般向け研究成果の発信としてのサイエンスカフェの実施は以下のとおりである。

- 1) 京阪電車なにわ橋駅地下 1F コンコース、参加型プログラム～ラボカフェ、カフェ・オンザエッジ・ネクスト「プラスチックで磁石、できるでしょうか？」。
- 2) 大阪大学中之島センター サイエンスカフェ 「物質が隠し持った機能の引き出しを開けるには」、サブタイトル: 「触らないで 電気の流れやすさを測れるでしょうか？」。