

Summary of Doctoral Thesis

Title of Doctoral Thesis: Aggregation and charge transport in thin films of conjugated polymers (共役高分子の薄膜における凝集と電荷輸送)

Name: Anjar Taufik Hidayat

Summary of Doctoral Thesis:

Charge transport is a physical process that dictates overall performance of the electronic devices made by semiconducting polymers. Recently, weakly-ordered conjugated polymers that are featured with a few π -stacking of chains have been applied in the development of efficient field-effect transistors and solar cells. However, the microstructure of this class of conjugated polymers film and its contribution to the macroscopic charge transport have not been cleared sufficiently. The aim of thesis is to clarify the relationship between microstructure and charge transport in thin films of the weakly-ordered conjugated polymers. This thesis consists of five chapters. In chapter 1, background and motivation of this research, and experimental approaches for the film characterization have been described. In chapter 2, the film microstructure and hole mobility of a weakly-ordered conjugated polymer have been characterized by UV-vis absorption spectra and space-charge-limited current measurement, respectively. The increase in the fraction of aggregated chains led to an increase in hole mobility. The positive correlation proves that aggregates are an important for charge transport in the film of weakly-ordered conjugated polymers. In chapter 3, the aggregation of conjugated polymers in a polymer/polymer blend film has been studied. UV-vis absorption spectra and grazing-incidence wide-angle X-ray scattering (GIWAXS) measurements showed that the fraction and the size of aggregates increase by blending with other polymers. The matrix-assisted ordering has been explained in terms of suppression of both undesired overlap and interpenetration of ordered conjugated polymer chains. In chapter 4, electron transport property of a weakly-ordered conjugated polymer was investigated by conductive atomic force microscopy (C-AFM) and GIWAXS measurements. The C-AFM characterization combined with GIWAXS analysis suggested that not only aggregate formation but also the planarity of monomer units and closed stacking of polymer chains are necessary for efficient charge transport. In chapter 5, the knowledge on the correlation between microstructure and charge transport of a weakly-ordered conjugated polymer has been summarized.

(論文審査結果の要旨)

π 共役系高分子(共役高分子)は、巨大な鎖状分子であるがゆえの大きな形態エントロピーと高分子鎖間に働く π - π 相互作用によって、固体薄膜中において多様な形態・集合構造を形成する。共役高分子材料の電荷輸送はこれら構造の違いが著しく支配していると考えられており、薄膜の微細構造とマクロスケールでの電荷輸送特性とのかかわりを理解することが、高性能・高機能な高分子半導体材料の開発にとって重要になっている。近年、高分子鎖間の凝集と短距離秩序構造の形成を特徴とする共役高分子を用いた高性能薄膜デバイスの開発が進んでいる。本論文ではこのような共役高分子を研究対象に位置づけ、薄膜の微細構造、電荷移動度、さらにナノスケールでの局所導電特性の評価・解析を通じて、高効率電荷輸送に必要な薄膜の構造的要件を明らかにしている。

本論文は5章から構成されている。第1章では、研究の背景と目的、実験手法の概要について述べられている。第2章では、ニート薄膜における共役高分子鎖の無秩序形態と凝集秩序形態の割合を紫外・可視吸収スペクトルを用いて評価し、マクロスケールでの電荷移動度との相関を議論している。凝集秩序形態の割合増加により薄膜の電荷移動度が増加することが示されている。第3章では、ブレンド薄膜における共役高分子鎖の凝集秩序化について議論されている。ブレンドにより凝集秩序化構造の形成が促進される現象を見出し、その機構を製膜溶液中における高分子鎖の重なり・絡み合いの観点から説明している。第2章、第3章では正孔輸送性の共役高分子を研究しているのに対し、第4章では電子輸送性の共役高分子について調べられている。共役高分子の電子輸送特性評価を可能にする電子注入電極を設計し、電流計測原子間力顕微鏡(C-AFM)を用いて薄膜の局所導電特性が明らかにされている。C-AFM測定、電荷移動度測定、微小角入射広角X線散乱測定の解析結果を基に、高効率電子輸送を担う凝集秩序構造の形成にはモノマーユニットの平面性を高くする必要があること、共役高分子鎖の π - π スタッキング距離を短くする必要があることを結論付けている。

このように、本論文は薄膜における共役高分子の微細構造と電荷輸送特性とのつながりを議論し、高効率電荷輸送に求められる薄膜の構造的特徴を明らかにしたものであり、審査員一同は、本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。