

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 25 日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656009

研究課題名(和文) 万能性基幹(P S)分子で構成された再生型エレクトロニクスの創生

研究課題名(英文) Reusable electronics composed of pluripotent stem (PS) molecules

研究代表者

青木 伸之(AOKI, Nobuyuki)

千葉大学・融合科学研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60312930

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、フラーレン分子を「万能性基幹分子：P S分子」として利用する再生型エレクトロニクスの構築をめざし、トポロジカル光波である光渦レーザー照射による金属的重合相の形成を目的として研究を進めた。光渦の効果により、ビームの円周方向に生じる散乱力と、中心方向に働く勾配力の影響を受けた状態で光重合が進行すると考えられ、これにより得られた光重合体は、表面において金属的な伝導性を示し、かつ2次元的な結合を有する重合相の形成を示唆する結果が得られた。これは、フラーレン分子をPS分子として利用することが可能であることを支持する結果であり、今後のグリーンエレクトロニクス回路形成に向けた指針が得られた。

研究成果の概要(英文)：In this study, fullerene molecules are used as pluripotent stem (PS) molecule which can provide reusable electronics. Using an irradiation of a topological laser light namely optical vortex, we tried to establish a technique how to form a fullerene photo-polymer showing a metallic phase. In the optical vortex, a unique photo-polymerization can be expected under the scattering and gradient force of the beam. Consequently, the photo-polymer shows metallic transport properties and a 2-dimensional polymerized structure at the surface.

研究分野：応用物理学・工学基礎

科研費の分科・細目：応用物性・結晶工学

キーワード：フラーレン C60 万能性基幹分子 光重合 光渦 金属的伝導特性 グリーンエレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

昨今のエネルギー問題やレアメタルの枯渇問題を鑑み、自然利用や再利用といった技術が急務の課題となっている。研究代表者等も、エレクトロニクスの分野における再利用に注目し、分子性結晶であるフラレン分子で構成した電界効果トランジスタ素子の研究を行ってきた。その中で、フラレン分子は、分子間の結合状態の違いによって特性を大きく変化できることに着目し、如何なる素子でも作ることができる「万能性基幹分子：PS分子」として利用することを発想した。1種類のPS分子で電子回路を構成することで、分解・再生が容易な構造へ変革できると期待される。しかし、従来の光源による光重合では半導体的特性を示すフラレン重合体しか実現できておらず、回路の構成までには至っていなかった。最近、研究代表者等は、らせん状の波面を持つ「光渦」といったトポロジカルレーザー光の効果に着目し、光渦の持つ軌道角運動量とフラレンとの相互作用による新しい光重合法の探索を開始した。その結果、光渦照射によって得られた光重合体は金属的な伝導特性を示すことが見いだされ、これにより照射する光の種類によって金属/半導体の領域を作り分けられる可能性が得られた。

2. 研究の目的

光重合によってフラレン分子の金属的重合化を初めて実現した成果を踏まえ、フラレン分子を「万能性基幹分子：PS分子」として利用する、再生型エレクトロニクスの構築に挑戦する。本研究の特徴は、一切のドーピングをすることなく、フラレン分子間の結合状態の違いにだけで「金属」「半導体」「絶縁体」の機能を創発させる点にある。トポロジカルレーザー光の照射で期待される特異な分子間結合に着目し、その重合過程を解明する。この照射光の制御により、フラレン薄膜上に金属的/半導体的特性をもつ光重合領域を選択的に形成する技術を確立する。これにより、PS分子によって構成された、高性能な電界効果トランジスタやコイル、コンデンサを形成し、多段の集積回路へと発展させる。さらに、フラレン重合体の効率的な分解・再利用に関して検討し、再生型エレクトロニクスの実現をめざす。

3. 研究の方法

本研究で提案するフラレン分子のPS分子としての利用を実現するため、以下に示す研究計画および方法に沿って研究を進めた。すなわち、光渦レーザー照射による金属相の発現メカニズムの解明、金属相の低抵抗化と配線技術の確立、非光渦レーザー照射による耐大気性・高移動度半導体チャネル形成技術の確立、PS分子を用いた構成・分解・回収・再構成が可能な循環型エコプロセスの確立、これら4つの研究を通して

PS分子としての可能性を議論する。とくに金属相発現メカニズムの解明には、顕微鏡分光法や透過型電子顕微鏡観察に加え、電子構造の分布のマッピングが可能な光電子顕微法や走査ゲート顕微法を用いて解析を行い、光渦照射による重合体のバンド構造の決定に結びつける。最終的には、金属/半導体領域を選択的に形成し、集積回路の形成を目標として研究を推進した。

4. 研究成果

C₆₀分子に可視域(例えば緑色:波長532nm)の光を当てると、C₆₀分子が励起されて分子間に[2+2]環化付加反応が生じて直鎖状の重合体が形成されるが、その結合は2量体~3量体程度の結合までで止まってしまう。また、そのときの電気伝導特性は半導体的であることが知られている。一方で、我々の研究によれば、緑色の光渦レーザー光の照射により形成された重合体では、ゲート電圧の印加に対して電流量が変化しない金属的な特性を示す重合体が形成されることが示された。そのような伝導特性が観測される条件としては、真空中でC₆₀薄膜上に高ドーズの光(10MJ/cm²以上)を照射し、かつその照射した領域に対して照射後に金属電極を取り付けることが必要であることが示された。さらに、照射後の原子間力顕微鏡による観察により、照射領域においてはC₆₀薄膜表面では、C₆₀グレインの上を数nm程度の厚さを持つ付加的な膜が覆っていることが原子間力顕微鏡ならびに透過電子顕微鏡によって観察された。これらの結果から、光渦照射によって形成される金属的な特性を示す重合体は、光照射によってC₆₀薄膜表面に選択的に形成されると結論づけられた。また、C₆₀薄膜に光渦の照射によって重合化が生じた領域は、分子間の共有結合が形成され、トルエン等の良溶媒に不要になるが、160のメチシレンに対しても耐溶解性があることが確認され、これまで報告されている光重合体とは異なる性質を持つことが示唆された。光渦照射後の結晶構造に関しては、従来の一次元鎖状とは異なる二次元的な結晶構造を示す結果がラマン散乱分光から得られてきており、その結合の同定に関しては現在調査中である。

以上のように、本研究によれば、緑色光渦レーザーを用いたC₆₀フラレン分子の光重合では、十分なドーズを行うことによりC₆₀薄膜表面に金属的な伝導特性を有する特別な光重合膜を形成することが可能となることが示された。これは、フラレン分子をPS分子として利用することが可能であることを支持する結果であり、今後のエレクトロニクス回路形成に向けた指針が得られたといえる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 16 件)

Xiaojun Wei, Masahiro Matsunaga, Tatsuro Yahagi, Kenji Maeda, Jonathan P. Bird, Koji Ishibashi, Yuichi Ochiai and Nobuyuki Aoki: Difference of operation mechanisms in SWNTs network FETs studied via scanning gate microscopy, AIP Conf. Proc., 査読有, Vol.125, pp.125-126, 2013.

R. Somphonsane, H. Ramamoorthy, G. Bohra, G. He, D. K. Ferry, Y. Ochiai, N. Aoki, and J. P. Bird: Fast Energy Relaxation of Hot Carriers Near the Dirac Point of Graphene, Nano Lett. 査読有, Vol.13, pp.4305-4310, 2013.

Chiashain Chuang, Li-Hung Lin, Nobuyuki Aoki, Takahiro Ouchi, Akram M. Mahjoub, Tak-Pong Woo, Reuben K. Puddy, Yuichi Ochiai, C. G. Smith, and Chi-Te Liang: Mesoscopic conductance fluctuations in multi-layer graphene, Appl. Phys. Lett., 査読有, Vol.103, pp.043117-1-4, 2013.

青木伸之, 落合勇一: 走査ゲート顕微法を用いた新規 FET デバイスのナノスケール局所電気伝導特性評価, 応用物理, 査読有, Vol.81, pp.1024-1028, 2012. G. Bohra, R. Somphonsane, N. Aoki, Y. Ochiai, R. Akis, D. K. Ferry, and J. P. Bird: Nonergodicity and microscopic symmetry breaking of the conductance fluctuations in disordered mesoscopic graphene, Phys. Rev. B, 査読有, Vol.86, pp.161405(R)-1-5, 2012.

G. Bohra, R. Somphonsane, N. Aoki, Y. Ochiai, D. K. Ferry and J. P. Bird: Robust Mesoscopic Fluctuations in Disordered Graphene, Appl. Phys. Lett., 査読有, Vol.101, pp.093110-1-4, 2012.

Kohei Toyoda, Katsuhiko Miyamoto, Nobuyuki Aoki, Ryuji Morita, and Takashige Omatsu: Using Optical Vortex To Control the Chirality of Twisted Metal Nanostructures, Nano Lett., 査読有, Vol.12, pp.3645-3649, 2012.

Xiaojun Wei, Nobuyuki Aoki, Tatsuro Yahagi, Kenji Maeda, Jonathan P. Bird, Koji Ishibashi, and Yuichi Ochiai: Analysis of Operation Mechanism of Field Effect Transistor Composed of Network of High-Quality Single Wall Carbon Nanotubes by Scanning Gate Microscopy, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有, Vol. 51, pp.04DN05-1-4, 2012.

〔学会発表〕(計 16 件)

Naoto Nakamura, Wataru Akiyama, Daiki Momiyama, Katsuhiko Miyamoto, Yuichi Ochiai, Takashige Omatsu, and Nobuyuki Aoki: Growth of ultra-flat thin film of C_{60} photo-polymer under optical vortex irradiation, 1st Optical Manipulation Conference (OMC '14), Pacifico Yokohama, April. 22-24, 2014.

青木伸之, 初山大輝, 鳥海直人, 稲山航, 土井達也, 宮本克彦, 尾松孝茂, J. P. Bird, 落合勇一: エピタキシャル成長フラレン薄膜の光重合化と物性評価, 日本物理学会第 69 回年次大会, 27aAN-6, p.822, 東海大学, 平塚市, 3月27日~30日, 2014.

稲山航, 初山大輝, 鳥海直人, 仲村直人, 宮本克彦, 尾松孝茂, J. P. Bird, 落合勇一, 青木伸之: C_{60} 薄膜への光渦照射による光重合体の表面特性, 第 46 回フラレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 2P-5, p.97, 東京大学, 東京, 3月4日~5日, 2014年.

Noato Toriumi, Yoshiaki Ito, Daiki Momiyama, Wataru Akiyama, Naoto Nakamura, Taishi takenobu, J. P. Bird, Yuichi Ochiai, Nobuyuki Aoki: Transport Characteristics of Fullerene Nano-Whisker Field Effect Transistor using Ionic Liquid Gate, The 46th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium, 1P-4, p.46, Tokyo Univ., Tokyo, Mar.3-5, 2014

青木伸之, 初山大輝, 鳥海直人, 秋山航, 土井達也, 宮本克彦, 尾松孝茂, J.P.バード, 落合勇一: 光渦照射によるフラレン光重合体の in-situ 物性評価, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 25pDF-6, p.741, 徳島大学, 徳島市, 9月25日~28日, 2013年.

Nobuyuki Aoki, Naoto Toriumi, Daiki Momiyama, Wataru Akiyama, Tatsuya Doi, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Jonathan P. Bird and Yuichi Ochiai: Transition from semiconducting to metallic phase in C_{60} photo-polymer by optical vortex irradiation, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Doshisha Univ., Kyotanabe, Sept. 16-20, 2013. 稲山航, 初山大輝, 鳥海直人, 宮本克彦, 尾松孝茂, 落合勇一, 青木伸之: C_{60} 薄膜への光渦照射による光重合体の伝導特性評価, 第 45 回フラレン・ナノチューブ総合シンポジウム, 1P-33, 大阪大学, 8月5-7日, 2013年.

青木伸之, 初山大輝, 鳥海直人, 稲山航, 土井達也, 宮本克彦, 尾松孝茂, J.P.バード, 落合勇一: 光渦照射で作製した C_{60} 光重合体の電気伝導特性, 日本物理学会

第 68 回年次大会, 26pXP-7, p.915, 広島大学, 東広島市, 3 月 26 日~29 日, 2013 年.

Naoto Toriumi, Tatsuya Doi, Daiki Momiyama, Wataru Akiyama, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Jonathan Bird, Yuichi Ochiai, Nobuyuki Aoki: 光渦照射によって作製した C₆₀ 光重合体の伝導特性評価, 第 43 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 1p-9, p.53, 東京大学, 3 月 11 日~13 日, 2013 年.

土井達也, 鳥海直人, 小山恭平, 青木伸之, 落合勇一: フラーレンナノウisker の応用に向けた電気伝導特性制御と ESR による伝導電子観測, P-16, p.33, ナノファイバー学会第 3 回年次大会, 東北大学, 仙台市, 10 月 12 日, 2012 年. Tatsuya. DOI, Xiaojun WEI, Daiki MOMIYAMA, Masato TORIUMI, Katsuhiko MIYAMOTO, Takashige OMATSU, Jonathan P. BIRD, Nobuyuki AOKI and Yuichi OCHIAI: Laser Induced Polymerization in Single Crystal of C₆₀ Fullerene Nano-Whisker under Photo Pressure, International Union of Materials Research Societies - International Conference on Electronic Materials 2012 (IUMRS-ICEM 2012), A-8-026-010, Yokohama, Sept. 23-28, 2012.

初山大輝, 青木伸之, 土井達也, 鳥海直人, 穂山航, 宮本克彦, 尾松孝茂, J.P. バード, 落合勇一: 日本物理学会 2012 年秋季大会, 21aEC-6, p.803, 横浜国立大学, 横浜市, 9 月 18 日~21 日, 2012 年.

鳥海直人, 土井達也, 初山大輝, 穂山航, 宮本克彦, 尾松孝茂, ジョナサン バード, 青木伸之, 落合勇一: 光渦の集光照射によるフラーレン薄膜の光重合, 第 43 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, 1P-26, p.72, 東北大学, 9 月 5-7 日, 2012 年.

N. Aoki, T. Doi, X. Wei, D. Momiyama, M. Toriumi, K. Miyamoto, T. Omatsu, J. P. Bird, and Y. Ochiai: Novel Laser-Polymerization of Fullerene Thin Films Using Optical Vortex Irradiation, 31th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-2012), p.200, Zurich, Swiss, July 29 ~ August 3 (2012).

D. Momiyama, T. Doi, M. Toriumi, W. Akiyama, X. Wei, K. Miyamoto, T. Omatsu, N. Aoki and Y. Ochiai: Non-conventional photo-polymerization of C₆₀ thin film using optical vortex, Topological lightwave synthesis and its

applications 2012 (T-LWS 2012), P-13, Chiba Univ., Chiba, July 5-6, 2012. T. Doi, X. Wei, D. Momiyama, M. Toriumi, K. Miyamoto, T. Omatsu, N. Aoki, Y. Ochiai, and J. P. Bird: Laser Induced Polymerization of Fullerene Thin-Films and Nano-Whiskers, 4P-06, The 2nd International Symposium on Terahertz Nanoscience (TeraNano 2012), Okinawa Electromagnetic Technology Center, July. 3-5, 2012.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等
<http://adv.chiba-u.jp/nano/qnd/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

青木 伸之 (AOKI, Nobuyuki)
千葉大学・大学院融合科学研究科・准教授
研究者番号: 60312930

(2) 研究分担者

落合 勇一 (OCHIAI, Yuichi)
千葉大学・大学院融合科学研究科・名誉教授
研究者番号: 60111366

(3) 連携研究者

尾松 孝茂 (OMATSU, Takashige)
千葉大学・大学院融合科学研究科・教授
研究者番号: 30241938