

令和 2 年 5 月 27 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H03440

研究課題名(和文) 超臨界二酸化炭素を用いた噴霧晶析法による高性能有機薄膜創製と薄膜自由設計への展開

研究課題名(英文) Deposition of High Performance Organic Thin Films by Atomizing Crystallization Using Supercritical Carbon Dioxide and the Development to Thin Films Design

研究代表者

内田 博久(Uchida, Hirohisa)

金沢大学・フロンティア工学系・教授

研究者番号：70313294

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、我々が考案した「超臨界二酸化炭素を用いた噴霧晶析法による有機製膜技術」による高性能有機半導体デバイスを実現可能な有機薄膜創製を目標として、本技術による有機製膜機構の解明とその成果に基づいた有機薄膜の自由設計(薄膜設計)技術の開発を行った。具体的には、有機薄膜特性に及ぼす種々の操作因子の影響を系統的に調査し、有機製膜機構の解明に繋がる基礎的知見の蓄積を行い、薄膜設計指針を明らかにした。さらに、製膜機構の解明や薄膜設計技術立案への基礎的知見として必要不可欠な超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度の測定と推算モデル開発を実施した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、省エネルギー・環境調和型、低コスト、高生産性、高汎用性(大面積対応・様々な基板利用可能)という特徴を有した独創的かつ革新的な製膜技術による有機半導体薄膜の創製を実施したものであり、その過程で有機製膜機構の解明や超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度を始めとする多くの学術的課題を解明した。さらに、本技術を発展させることによって高性能有機半導体が製造可能になった場合、世界の有機エレクトロニクス分野において先導的立場の一翼を担うことができると考える。

研究成果の概要(英文)：In this work, we elucidated the deposition mechanism of organic films produced by atomizing crystallization using supercritical carbon dioxide and developed the thin film design technique of organic thin films by the present technique based on the experimental results in order to propose organic thin films deposition technique that enables to realize high-performance organic semiconductor devices by the present technique. Specifically, we systematically investigated the effects of various operating factors on the characteristics of organic thin films, accumulated basic knowledge that led to the elucidation of organic film deposition mechanisms, and clarified the thin film design guidelines. Furthermore, we measured the solubility of organic semiconductor materials in supercritical carbon dioxide, which is indispensable as a basic knowledge for elucidating the thin film deposition mechanism and proposing thin film design technique, and developed solubility estimation models.

研究分野：超臨界流体工学

キーワード：製膜 有機薄膜 噴霧晶析 超臨界二酸化炭素 薄膜設計 結晶成長 有機薄膜トランジスタ 溶解度

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

有機半導体は、軽量かつ可撓な半導体として、有機薄膜トランジスタ (OTFT) (図1参照) を始めとした種々のエレクトロニクスデバイス (有機EL素子, 有機薄膜太陽電池など) への応用が期待されている。なかでも、工業化・実用的な観点, つまり種々の製膜技術が適用可能, 精製が容易 (高純度材料が入手可能), かつ高品質結晶が創製可能であるため高性能 (高キャリア移動度) が期待できるテトラセンやペンタセン等のアセン系化合物やその誘導体である 6,13-bis(triisopropylsilylethynyl) pentacene (TIPS ペンタセン) やルブレレン等の低分子系材料を用いた有機半導体デバイスの実現が強く望まれている<sup>①</sup>。

広く認知され, かつ研究例が多い有機半導体薄膜製造 (有機製膜) 技術として「真空蒸着法」と「溶液晶析法」が挙げられる。真空蒸着法では多結晶薄膜が形成されるが, 薄膜を構成する結晶粒 (グレイン) のサイズや結晶性, 結晶粒の緻密性 (結晶粒界の有無; 結晶粒界はキャリア輸送の障壁となる) の制御の困難から高性能薄膜創製は容易ではない。さらに, 大掛かりな製造装置と多大なエネルギーによる高コスト, 大面積化の困難, 低耐熱性材料・基板の適用不可という問題を抱えている。また, 溶液晶析法を用いた場合でも, 環境負荷の高い有機溶媒使用, 液滴内部の対流による不均一な結晶化や結晶の凝集に起因した均質な特性の薄膜創製の困難, 有機溶媒による基板の溶解, 残留溶媒によるデバイス特性と寿命の低下などの問題を抱える。従って, 有機半導体の電子産業分野でのより一層の実用展開において, 実用性 [高性能 (高キャリア移動度)・大面積化可能・多様な基板に適用可] と生産性 [低コスト・環境調和・省エネルギー] を兼ね備える (性能とプロセス性が両立した) 有機製膜技術の確立が課題となっている<sup>②</sup>。

そこで我々は, 図2に示す「超臨界二酸化炭素に有機半導体材料を溶解させた溶体 (超臨界溶体) を, 微細ノズルを通して大気圧下の基板に対して急速減圧・噴霧する (二酸化炭素中の有機半導体材料の溶解度が低下する) ことで基板上に結晶の核化・成長を誘発させ, 形成された結晶粒を成長させて有機薄膜を創製する」という「超臨界二酸化炭素を利用した噴霧晶析法による有機製膜技術」を提案した<sup>③-⑤</sup>。

本法による有機製膜技術は, 装置・操作が比較的シンプル, 温度 100℃以下で製膜可能であるため低耐熱性材料・基板に適用可能 (高汎用性), 有機溶媒を利用しないため高品質 (高性能・高寿命化) が期待, 基板の移動により大面積製膜可能, 必要な部分のみ (局所的) に製膜可能ことから高価な有機半導体材料の使用量を削減可能 (省資源) な「高汎用・省エネルギー・低コスト・環境調和型の革新的ドライ (乾式) プロセス」である。我々はこれまでに, (a) 本技術によるシリコン基板上でのアントラセン, ルブレレントラセン及び TIPS ペンタセンの製膜が可能であることを実証し<sup>⑥-⑧</sup>, (b) アントラセン製膜に及ぼす本技術の種々の操作因子の影響の明確化, 及びその結果に基づく薄膜成長機構の解明と薄膜設計指針の提案, (c) 本技術で製膜したテトラセン及び TIPS ペンタセンを用いた有機薄膜トランジスタ (OTFT) のキャリア移動度は, テトラセンでは  $5.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V s}$ , TIPS ペンタセンでは  $1.3 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{V s}$  であることを報告した<sup>⑥-⑧</sup>。しかし, 工業的に利用可能となる OTFT の移動度の目安として, アモルファスシリコン並みの  $0.1 \sim 1 \text{ cm}^2/\text{V s}$  レベルが必要となるが<sup>⑨</sup>, 本技術では工業的に利用可能な有機半導体薄膜創製に成功していない現状である (参考: キャリア移動度の文献値 テトラセン TFT の場合:  $1 \times 10^{-4} \sim 0.1 \text{ cm}^2/\text{V s}$ , TIPS ペンタセン TFT の場合:  $5 \times 10^{-5} \sim 4.6 \text{ cm}^2/\text{V s}$ )。

### 2. 研究の目的

本技術で得られる多結晶薄膜は結晶粒から構成されるため, 結晶粒の分子配向性の差異 (これは薄膜の面内方位の異方性に繋がる) や結晶粒界の存在がキャリア輸送の障壁となり, キャリア移動度の低下の原因となる。本技術による薄膜は, 結晶粒界が少なく, 結晶粒の結晶化度は高いが, サイズが小さく, 分子配向性に差異がある (薄膜の垂直方向の結晶方位は揃っているが, 水平方向に異方性がある) ことが判明しており, これが低キャリア移動度の要因であると考えられる。そこで, 本技術の実用化を見据えて研究レベルで解決すべき課題として, 高性能 (高キャリア移動度を有する) 有機半導体の実現可能な「結晶粒のサイズが大きく, 形態が均一」, 「高い分子配向性 (薄膜の面内方位が均一) を有する」, 「結晶粒界ができるだけ無い」という条件を満たす製膜技術への展開が挙げられる。このためには, 本技術による薄膜の自由設計 (薄膜設計) (膜厚, 薄膜を構成する結晶粒のサイズ・形態・結晶性, 結晶粒界の制御) の確立が必要不可欠となる。そこで, 本研究では以下の項目を実施した。

#### (1) 本技術による有機製膜に及ぼす種々の操作因子の影響の解明

本技術による薄膜特性 (薄膜を構成する結晶粒の特性) は, これまでの研究成果により操作因子に大きく影響を受けることが判明している。そこで, 比較的高いキャリア移動度が期待でき, 超臨界二酸化炭素に可溶であるテトラセンおよび TIPS ペンタセンを用いて, 本技術により得ら

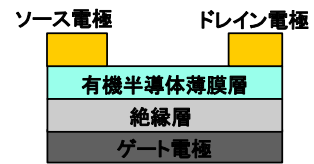


図1 有機半導体デバイスの例 (有機薄膜トランジスタ)

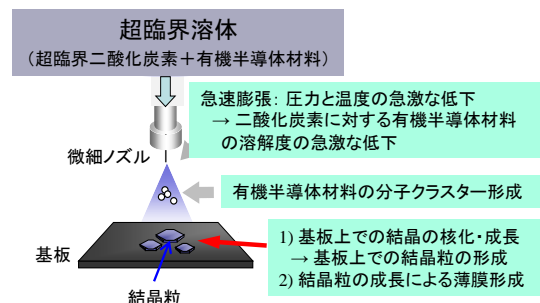


図2 二酸化炭素を利用した超臨界溶体急速膨脹法による有機製膜技術の概念図

れる有機薄膜の結晶粒のサイズ・形態・分子配向性（結晶方位）、結晶粒界に及ぼす種々の操作因子（噴射距離、噴射時間、基板温度、基板傾斜角度、噴射ノズルの種類）の影響を系統的に調査し、本技術による有機薄膜機構の解明に繋がる基礎データの蓄積を行い、本技術による薄膜設計の指針を明らかにする。この際、有機薄膜の結晶性改善に大きな影響を与える操作因子である自己組織化単分子膜（SAM）による基板表面処理（表面エネルギーや有機半導体材料との親和性の変化）の影響の検討も実施する。本研究では、種々の SAM 処理を行った基板上有機製膜を行い、本技術に適した SAM 処理を探索する。

### (2) 超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度の測定とモデル開発

検討項目(1)で得られた研究成果に基づき、晶析工学的見地から本技術による有機製膜機構の解明や薄膜設計技術の開発を行う場合、超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度が基礎的知見として必要不可欠である。しかしながら、テトラセンと TIPS ペンタセンの溶解度の報告例は無い。そこで本研究では、種々の温度および圧力の超臨界二酸化炭素に対するテトラセンおよび TIPS ペンタセンの溶解度データを蓄積する。さらに、半経験式である *Chrastil* 式<sup>⑩</sup>により、超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度計算が可能な汎用的モデル開発を行う。

## 3. 研究の方法

### (1) 本技術による有機製膜に及ぼす種々の操作因子の影響の解明

溶質としてテトラセンおよび TIPS ペンタセンを用いて、超臨界二酸化炭素利用の噴霧晶析法により得られる有機薄膜の結晶粒の粒径・形態・結晶構造・分子配向性に及ぼす操作因子（(a) 基板表面状態[自己組織化単分子膜（SAM）（シランカップリング剤）による基板表面処理]、(b) 噴射距離、(c) 噴射時間、(d) 基板温度、(e) 基板傾斜角度、(f) 噴射ノズルの種類）の影響を系統的に調査し、本技術による有機薄膜機構の解明に繋がる基礎データの蓄積を行い、薄膜設計の指針を明らかにする。

本研究で用いる有機製膜装置を図 3 に示し、実験方法を説明する。液化炭酸ガスボンベ[1]から供給された二酸化炭素は高圧ポンプ[5]により加圧され、予熱器[6]により加熱され超臨界二酸化炭素となる。超臨界二酸化炭素は、有機半導体材料が充填された溶質溶解容器[8]を通り、有機半導体材料を飽和溶解した超臨界溶体が調製される。超臨界溶体の濃度は *in situ* 型紫外可視分光計[10]で測定される。超臨界溶体は、膨張ノズル（直径 50  $\mu\text{m}$ 、長さ 10 mm）[11]を通してクリーンブース[14]内で大気圧まで減圧・膨張

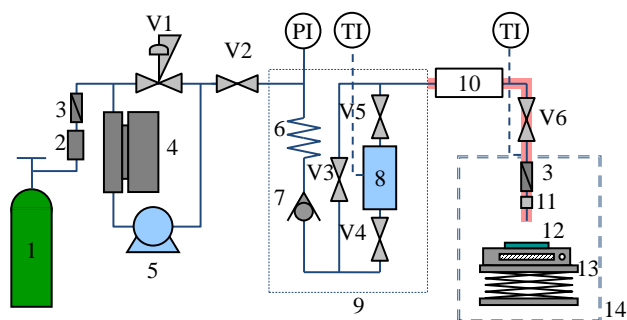


図 3 超臨界二酸化炭素利用噴霧晶析法による有機製膜装置

される。その結果、二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度が急激に低下して高過飽和度が付与されるため、微細ノズル直下に設置された  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板[12]上で結晶核化・成長が誘発される。この基板は、温度調整が可能な温度調節器[13]上に設置されている。超臨界溶体を一定時間噴霧することで、基板上に析出した結晶粒を成長させることにより薄膜が創製される。創製された薄膜のマイクロレベルの表面状態や膜厚などの立体形状や薄膜の面内方位（結晶粒の分子配向性）評価は走査型プローブ顕微鏡（SPM）システムにより行い、薄膜状態（薄膜を構成する結晶粒のサイズ・形態）は走査型電子顕微鏡（SEM）と高倍率デジタルマイクロスコブにより分析する。薄膜の結晶性（結晶粒の結晶構造・結晶化度・分子配向性）は、試料表面に対して垂直な格子面を評価する *Out-of-plane* X 線回折（*Out-of-plane* XRD）装置および試料表面に対して平行な格子面を評価する *In-plane* X 線回折（*In-plane* XRD）装置により分析する。さらに、創製薄膜の有機半導体としての性能評価は、電界効果トランジスタ（FET）法により行う。具体的には、 $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に創製された薄膜に対して、金電極（ソース電極とドレイン電極）をメタルマスクを通して蒸着法により附着させて図 4 に示すような有機薄膜トランジスタを作製する。作製された有機薄膜トランジスタは、電界効果移動度測定システム（マニュアルプローバ+半導体デバイス・アナライザー）により電流-電圧特性[静特性（ドレイン電流-ドレイン電圧特性）と伝達特性（ドレイン電流-ゲート電圧特性）]を測定し、得られた結果を解析することによりキャリア移動度（電界効果移動度）を求める。

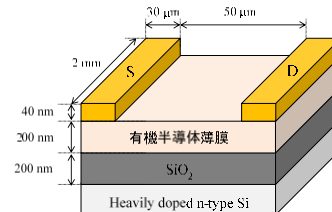


図 4 作製する有機薄膜トランジスタ

### (2) 超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度の測定とモデル開発

種々の温度・圧力の超臨界二酸化炭素に対するテトラセンおよび TIPS ペンタセンの溶解度を蓄積する。測定手法としては、我々が開発した「紫外可視分光光度計を利用した飽和溶解圧力探索法」<sup>⑫</sup>を用いる。有機半導体材料のように超臨界二酸化炭素への低溶解性物質（溶解度がモル分率  $10^{-5}$  以下）の溶解度測定は通常の流れ法などでは困難であるが、本技術では高精度な溶解度を測定可能である。本法の装置図および測定概念図を図 5 に示す。既知量の溶質を体積既知の

窓付セルに充填し、セル内に所定圧力まで二酸化炭素を導入する。光源からの光が左窓から光ファイバーによりセル内に入り、右窓に設置した光ファイバーから分光器に入光する。所定圧力で飽和溶解した後の吸光波形（吸光度）を測定し、二酸化炭素をさらに導入する。加圧に伴う吸光度変化を測定し、二酸化炭素の導入作業を吸光度が一定になる、つまり超臨界二酸化炭素

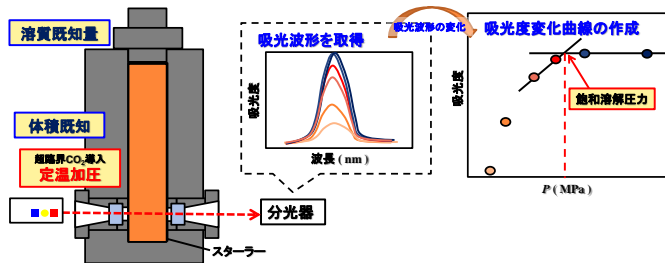


図5 飽和溶解圧力探索法による溶解度の測定装置と測定方法

に溶質が飽和溶解するまで続ける。これにより、図5に示す圧力と吸光度の関係が得られる。飽和溶解圧力は、飽和直前の圧力-吸光度関係を表す直線と、飽和後の吸光度を表す直線との交点から求める。超臨界二酸化炭素に対する溶質の溶解度は、容器体積と溶質充填量から計算できる。

#### 4. 研究成果

##### (1) 本技術による有機製膜に及ぼす種々の操作因子の影響の解明

超臨界二酸化炭素利用の噴霧晶析法により得られるテトラセン薄膜の結晶粒特性に及ぼす操作因子 ((a) 基板表面状態[自己組織化単分子膜 (SAM) (ヘキサメチルジシラザン (HMDS), オクチルトリクロロシラン (OTS), オクタデシルトリクロロシラン (ODTS), フェニルトリクロロシラン (PTS) およびフェネチルトリクロロシラン (PETS)) による基板表面処理], (b) 噴射距離, (c) 噴射時間, (d) 基板温度) の影響を系統的に調査した。本技術により創製されたテトラセン薄膜に対する基板表面状態 (SAM) の影響の結果の総括を Table 1 に示す。

Table 1 RESS 法によるテトラセン薄膜創製に対する基板表面状態の影響

	Nontreated	HMDS	OTS	ODTS	PETS
		$-\text{CH}_3$	$-(\text{CH}_2)_7\text{CH}_3$	$-(\text{CH}_2)_{17}\text{CH}_3$	$-\text{CH}_2-\text{C}_6\text{H}_5$
基板-溶質間の親和性 <sup>※1</sup>	高い	中	中	中	高い
基板表面の平滑性 <sup>※2</sup>	低い	高い	高い	高い	高い
SEM像					
結晶状態	緻密でない	緻密	緻密	緻密	緻密
$\mu[\text{cm}^2/\text{Vs}]$	$1.96 \times 10^{-4}$	$1.38 \times 10^{-3}$	$1.40 \times 10^{-3}$	$9.30 \times 10^{-4}$	$9.70 \times 10^{-4}$

※1 判定方法⇒各表面処理を施した基板に対し、ベンゼン及びトルエンを滴下し接触角を測定  
 $\theta = 10^\circ$ 以下の場合基板-溶質間の親和性が高く、 $50^\circ$ 以上の場合低いと判断

※2 判定方法⇒ベンゼン及びトルエンを基板上に滴下した際の接触角から表面自由エネルギーを算出  
 $\gamma_s = 50 \text{ mJ/m}^2$ 以下の場合平滑性が高いと判断

Table 1 より、基板表面処理 (SAM 処理) により得られる薄膜の状態が変化し、薄膜トランジスタのキャリア移動度が変化することがわかる。これは、基板表面処理により基板の自由エネルギーが低下 (基板表面の平滑化) し、基板表面上での分子の表面拡散が促進されることで緻密な薄膜を形成したためである。つまり、テトラセン薄膜創製に対して、SAM による基板表面処理は非常に有効であることが示された。また、図6に示すように噴射距離の増加に伴い、島状から樹枝状へ結晶粒の形態が変化した。これは、噴射距離の増大に伴う溶体濃度の低下による物質移動過程の減少により説明できる。次に、図7に示すように基板温度の増加に伴い、基板上的結晶粒密度の減少、結晶粒サイズの増大及び結晶粒形態が島状から樹枝状への変化が生じた。噴射時間の変化により得られた結晶粒の成長速度及び噴射距離と基板温度を変化させた結果を晶析工学の観点から解析を行ったところ、噴射距離と基板温度は結晶粒成長の成長機構 (律速段階) に影響を与えることが判明し、緻密かつ結晶粒界の少ない良好薄膜を創製する最適値 (閾値) が存在ことがわかった。つまり、SAM 処理した基板に対して、本研究で明らかになった基板温度と噴射距離の最適値を用いることにより良好な製膜が可能となる指針が得られた。さらに、超臨界二酸化炭素利用の噴霧晶析法により得られる TIPS ペンタセン薄膜

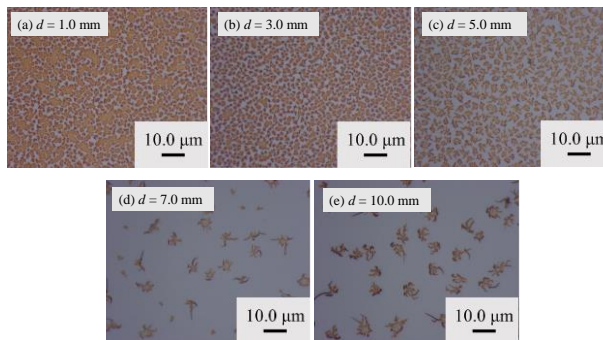


図6 RESS 法によるテトラセン薄膜創製に対する噴射距離の影響

の結晶粒特性に及ぼす操作因子 ((a) 基板表面状態[自己組織化単分子膜 (ヘキサメチルジシラザン, オクチルトリクロロシラン, オクタデシルトリクロロシランおよびフェネチルトリクロロシラン) による基板表面処理], (b) 基板温度, (c) 基板傾斜角度, (d) 噴射ノズルの種類) の影響を系統的に調査した。その結果, 第一に, 基板表面処理により基板の表面自由エネルギー (基板表面の安定性) が変化し, 薄膜の成長機構が変化することを明らかにした。これにより, 薄膜を構成している結晶粒の形態が異なることを見いだした。この結果は, テトラセン薄膜で得られたものと同様である。第二に, 基板上の結晶成長単位の運動エネルギー増加に寄与する基板温度上昇ならびに基板の表面自由エネルギーを低下させる表面処理 (溶質-基板間相互作用の低下) により表面集積過程を促進させることで, 結晶粒サイズが減少し, 有機薄膜トランジスタのキャリア移動度が低下することを示した。これは, 表面集積過程の促進が, 基板水平方向の結晶成長よりも, 結晶と基板表面に到達した結晶成長単位の再揮発を促進したことが原因である。第三に, 図 8 に示すように基板傾斜角度を増加させることにより, 堆積粒子の減少と結晶粒の基板水平方向への成長促進が生じることで薄膜の均一性と結晶性が向上することを示した。最後に, 膨張ノズルとしてオリフィス型ノズルを採用することにより, 堆積粒子の低減と時間あたりの薄膜の膜厚増加・薄膜の基板水平方向の結晶性向上が可能であることを見いだした。

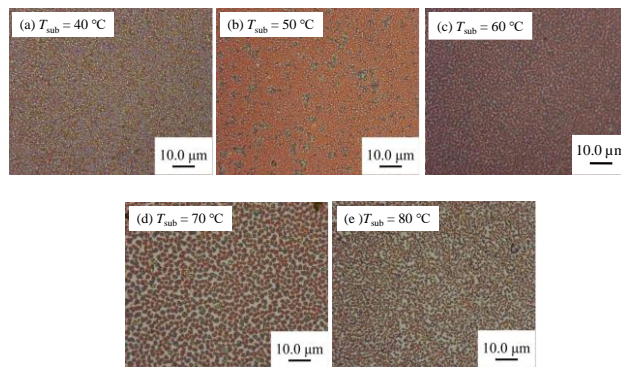


図 7 RESS 法によるテトラセン薄膜創製に対する基板温度の影響

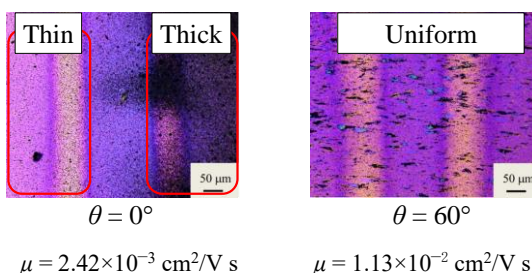


図 8 RESS 法による TIPS ペンタセン薄膜創製に対する基板傾斜角度の影響 (デジタル顕微鏡像とキャリア移動度  $\mu$ )

## (2) 超臨界二酸化炭素に対する有機半導体材料の溶解度の測定とモデル開発

本研究により測定された超臨界二酸化炭素に対するテトラセンおよび TIPS ペンタセンの溶解度を図 9 に示す。また, Chrastil 式による相関結果を併せて示す。これより, 半経験式である Chrastil 式より, 溶解度を良好に計算可能であることがわかる。

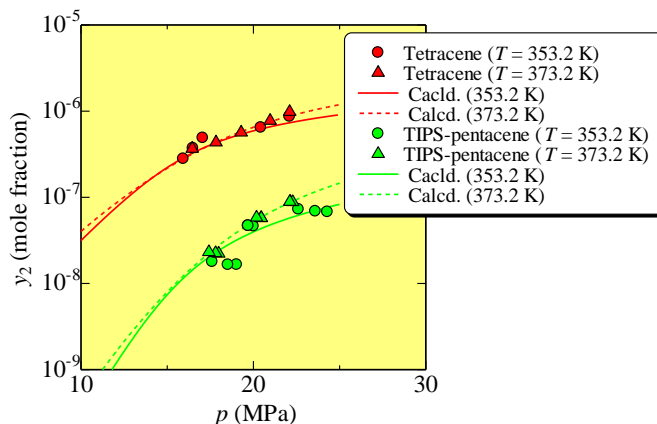


図 9 超臨界二酸化炭素に対するテトラセンおよび TIPS ペンタセンの溶解度の測定結果と Chrastil 式による相関結果

### <引用文献>

- ① 日本学術振興会 情報科学用有機材料第 142 委員会 C 部会編, 先端有機半導体デバイス, オーム社 (2015)
- ② 大森裕 監修, 有機薄膜形成とデバイス応用展開, CMC 出版 (2013)
- ③ 内田博久, 杉山正和, 山本大, 出浦桃子, 特許公開 2008-300781 (2008)
- ④ 内田博久, 山口浩一, 特許公開 2008-303416 (2008)
- ⑤ H. Uchida, T. Fujii, D. Yamamoto, M. Sugiyama, *Abstracts of the 13th European Meeting on Supercritical Fluids—SCFs as Product and Process Solvents in Emerging Applications*, CO74, Hague, Netherlands (2011)
- ⑥ T. Fujii, H. Uchida, *J. Chem. Eng. Japan*, **48**, 787 (2015)
- ⑦ T. Fujii, Y. Takahashi, H. Uchida, *J. Chem. Eng. Japan*, **48**, 795 (2015)
- ⑧ T. Fujii, Y. Takahashi, H. Uchida, *Appl. Phys. Exp.*, **8**, 035504 (2015)
- ⑨ H. Uchida, T. Fujii, Y. Takahashi, M. Natsume, *Abstracts of the 11th International Symposium on Supercritical Fluids (ISSF 2015)*, No.L-217, Seoul, Republic of Korea (2015)
- ⑩ 筒井哲夫, 八尋正幸, 松波成行, 安達千波矢, 有機エレクトロニクス入門, 日刊工業新聞社 (2012)
- ⑪ J. Chrastil, *J. Phys. Chem.*, **86**, 3016 (1982)
- ⑫ K. Takahara, H. Uchida, *Proceedings of SuperGreen2013—The 8th International Conference on Supercritical Fluids*, No.PP-35, Kaohsiung, Taiwan (2013)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計24件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 坂本有衣, 芝雄介, 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張 (RESS) 法によるPh-BTBT-10薄膜創製に対する基板加熱温度の影響
3. 学会等名 分離技術会年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 芝雄介, 高原梢江, 内田博久
2. 発表標題 紫外可視分光法を用いた飽和溶解圧力探索法による超臨界CO <sub>2</sub> に対する有機薄膜トランジスタ材料の溶解度測定
3. 学会等名 分離技術会年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Sakamoto, T. Fujita, Y. Shiba, K. Shimamura, H. Uchida
2. 発表標題 Fabrication of Thin Film Transistors of Ph-BTBT-10 by Rapid Expansion of Supercritical Solutions (RESS) Using CO <sub>2</sub>
3. 学会等名 The Seventh International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 芝雄介, 高原梢江, 内田博久
2. 発表標題 紫外可視分光法を用いた飽和溶解圧力探索法による超臨界CO <sub>2</sub> に対する有機デバイス材料の溶解度測定
3. 学会等名 第17回超臨界流体ミニワークショップ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂本有衣, 島村一利, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張 (RESS) 法によるPh-BTBT-10薄膜創製と特性評価
3. 学会等名 第80回応用物学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Sakamoto, Y. Shiba, K. Shimamura, H. Uchida
2. 発表標題 Deposition of Ph-BTBT-10 Thin Films by Rapid Expansion of Supercritical Solutions (RESS) Using CO <sub>2</sub>
3. 学会等名 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress (APCCChE 2019), (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Uchida
2. 発表標題 Novel Fabrication Technique of Organic Thin Film Transistors (OTFTs) by Rapid Expansion of Supercritical Solutions (RESS) Using Carbon Dioxide
3. 学会等名 11th International Conference on Supercritical Fluids-Supergreen 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 釜田若奈, 坂本有衣, 清澤匠, 内田博久
2. 発表標題 超臨界溶体急速膨張 (RESS) 法によるPh-BTBT-10薄膜創製に対する基板加熱温度の影響
3. 学会等名 第22回化学工学会学生発表会 (岡山大会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 前田直哉, 芝雄介, 内田博久
2. 発表標題 飽和溶解圧力探索法を利用した超臨界二酸化炭素に対するルブレンの溶解度測定
3. 学会等名 第22回化学工学会学生発表会 (岡山大会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Shiba, T. Kobayashi, H. Uchida
2. 発表標題 Measurement of Solubility of TIPS-Pentacene in Supercritical Carbon Dioxide by the Determination of Saturation States Using UV-Visible Spectroscopy
3. 学会等名 8th International Symposium on Molecular Thermodynamics and Molecular Simulation (MTMS'18) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Fujita, T. Kobayashi, Y. Ikeda, Y. Shiba, H. Uchida
2. 発表標題 TIPS-Pentacene Thin Films Deposition Using Solution-Shearing (SS) Method: Effects of Surface Treatments of SiO <sub>2</sub> Gate Insulators
3. 学会等名 13th International Workshop of the Crystal Growth of Organic Material (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 芝雄介, 小林貴紀, 内田博久
2. 発表標題 飽和溶解圧力探索法を利用した超臨界CO <sub>2</sub> に対するTIPSペンタセンの溶解度測定
3. 学会等名 分離技術会年会2018
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 芝雄介, 小林貴紀, 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張法によるTIPSペンタセン製膜に対する基板絶縁層の表面状態の影響
3. 学会等名 第4回 有機・無機エレクトロニクスシンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本有衣, 芝雄介, 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張法によるPh-BTBT-10の有機薄膜トランジスタ作製
3. 学会等名 化学工学会第50回秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 芝雄介, 坂本有衣, 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 超臨界溶体急速膨張法によるPh-BTBT-10薄膜堆積に対する基板絶縁層の表面処理の影響
3. 学会等名 化学工学会第50回秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本有衣, 芝雄介, 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張法によるPh-BTBT-10の薄膜創製
3. 学会等名 平成30年度 応用物理学会 北陸・信越支部 学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本有衣, 芝雄介, 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張法によるPh-BTBT-10薄膜の創製と結晶特性評価
3. 学会等名 第21回化学工学会学生発表会(京都大会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 藤田智紀, 内田博久
2. 発表標題 溶液剪断法によるTIPSペンタセン薄膜創製に対する基板表面処理の影響
3. 学会等名 化学工学会第84年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 内田博久
2. 発表標題 超臨界二酸化炭素の特異な溶媒特性を活かした材料プロセッシングの現状と今後の展開
3. 学会等名 化学工学会第49回秋季大会(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小林貴紀, 芝雄介, 内田博久
2. 発表標題 RESS法による有機半導体薄膜創製に向けた超臨界CO <sub>2</sub> に対する有機材料の溶解特性の解明
3. 学会等名 化学工学会第49回秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 池田奉古, 夏目実佳, 小林貴紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張法によるテトラセン薄膜堆積メカニズムの解明
3. 学会等名 化学工学会第49回秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小林貴紀, 内田博久
2. 発表標題 RESS法によるTIPSペンタセン薄膜堆積に対する基板の表面状態と設置角度の影響
3. 学会等名 化学工学会第49回秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小林貴紀, 内田博久
2. 発表標題 CO2を用いたRESS法によるTIPSペンタセン薄膜創製に対する基板の表面状態と設置角度の影響
3. 学会等名 第15回超臨界流体ミニワークショップ
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 池田奉古, 夏目実佳, 小林貴紀, 内田博久
2. 発表標題 二酸化炭素を用いた超臨界溶体急速膨張法によるテトラセン薄膜作製に対する製膜条件の影響および製膜メカニズムの解明
3. 学会等名 第15回超臨界流体ミニワークショップ
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 内田博久	4. 発行年 2017年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 252
3. 書名 超臨界流体を用いる合成と加工	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	田村 和弘  (Tamura Kazuhiro)  (20143878)	金沢大学・機械工学系・教授   (13301)	
研究 分担者	春木 将司  (Haruki Masashi)  (90432682)	金沢大学・機械工学系・准教授   (13301)	