

**MDC・SHGによる誘電現象としての有機薄膜の電子輸送・  
分極構造評価と素子特性**

Analysis of carrier transport and polarization in organic films as dielectric phenomena by using MDC and SHG, and its application to organic device characterization

岩本 光正 (IWAMOTO MITSUMASA)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授



研究の概要

我々が提案した二つの測定手法、MDC(マックスウェル変位電流測定)とEFISHG測定(電界誘起光第2次高調波測定)を用い、フレキシブルな有機材料に潜む独特な分極構造・電子輸送を観測・解析し、キャリア輸送や双極子配列によって発生する有機材料の誘電分極現象に着眼して、有機デバイスの評価・解析するための手法を確立する。

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学 電子・電気材料工学

キーワード：電気・電子材料、誘電体、有機・分子エレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

高分子絶縁材料の持つフレキシブル性は、電線など絶縁被覆の要である。最近は、導電性高分子などの開発を背景に機能性有機材料のフレキシブル性にも関心が集まっており、有機トランジスタやEL、太陽電池など、関連研究は世界的に活況である。しかし、大半の研究はバンド理論などの固体物理学を基礎とし、フレキシブル材料におけるキャリア輸送の扱いは不十分である。一方、様々な有機分子の形状は独特な材料物性の源泉でもある。また、界面では分子配列が制約されるため、バルクに見られない自発分極が発現する。フレキシブルな有機デバイス内のキャリア挙動を理解し、そのデバイス機能を探究するためには、分子形状の特徴、フレキシブル性、界面で特異的に発生する電気現象に目を向ける必要がある。しかし、これらを踏まえた研究は十分ではなかった。

2. 研究の目的

本研究は、分極現象の源である永久双極子の動的挙動の評価を可能とするMDC(マックスウェル変位電流測定)と、過剰電荷が作る電界と光との相互作用によって生じる非線形分極を通じてキャリア輸送を可視化するEFISHG(電界誘起光第2次高調波発生)測定を用いて、フレキシブルな有機材料に潜む独特な分極構造・電子輸送を観測・解析し、有機デバイスの評価・解析する手法の確立を目的とする。界面における双極子配列やデバ

イスに注入されたキャリアによってもたらされる誘電分極現象に着目し、分極現象に由来して発生する界面現象・量子的現象を電子物性と結ぶことで、有機素子进行评估・解析する系統的手法の確立を目指す。

3. 研究の方法

電子・双極子・四重極子が原因となって発生する有機材料内の分極現象を静的・動的に観測し、それらのエネルギー状態と挙動を解析することを基本とする。ガウス則によって電子から発生する電界が電界誘起非線形分極を、双極子の配列が自発分極を、そして四重極子がキラルな非線形分極を誘発することに着眼し、それぞれがEFISHGやMDC法により計測可能なことをシステムを構築して示す。次いで、これらの結果を解析しながら、これを基礎に次の4項目の研究を進める。(1)MDC-SHGによるナノ界面のフレキシブル性評価とマックスウェル応力による量子的ドメイン形状制御、(2)3電極系の有機FET構造を用いた柔構造分子膜素子のキャリア輸送の可視化と伝導解析、(3)2電極系有機積層構造素子の電荷ダイナミクスおよび再結合・発光に至る過程と劣化機構解析、(4)有機量子形状効果素子の試作・特性評価・及び量子形状制御による圧電効果。

4. これまでの成果

分子膜において、面内ドメイン内に形成された分極構造が、ドメインの形状を左右する

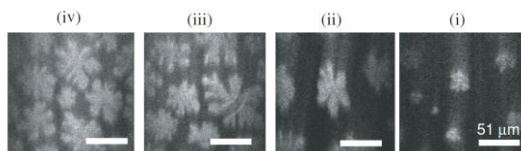


図1 SHGで観測される単分子膜の分極構造。(i)から(iv)まで表面圧が徐々に大きくなるにつれてドメイン形状が変化する。

点も、分子膜のフレキシブル性の特徴である。この分極構造を可視化し、ドメイン形状に与える影響を検討した。SHG・BAM測定による水面上単分子膜のドメイン分極構造イメージングシステムを構築し、色素を含有したリン脂質分子の水面上単分子膜において0.5秒で1枚のSHG像を得ることに成功した。図1は、実際にこのシステムを用いて得られたドメインの分極構造を反映したSHG像である。このように、圧力に応じてドメインの量子的成長が確認されている。

次いで、有機材料中のキャリア輸送を評価するため、様々な形状をもつ $\pi$ 共役系分子で構成されるFET構造素子を試作し、デバイスの動作状態に応じた過渡的なチャンネル内電界分布を可視化・評価した。図2には結晶中を輸送されるキャリアのある時間におけるスナップショットである。時間とともに注入された電荷が異方的に移動している様子を確認できた。また、トラップがキャリア輸送に及ぼす影響を調べるため、プレフィリングと呼ばれる手法を新たに開発した。これは、ソース電極に電荷注入パルスを印加する前に、ゲートパルスを加え、あらかじめチャンネルにキャリアを注入することによりトラップ量を制御するものであり、トラップ量が減少することで実際に移動度が変化する様子を捉えることに初めて成功した。さらに、これまでなかった新しい評価手法として、顕微CMS法を開発・構築した。これを利用して、2層(C60とペンタセン)両極性トランジスタの動作解析を試み、電子がC60層内を、正孔がペンタセン層内を移動することなどを始めて実験的に示すことができた。

また、有機EL素子のEL発光に至るキャリア挙動の観測と解析手法の確立を目指し、2電極系積層構造および3電極系FET構造の発光素子を用いた評価を行った。まず、交流駆動下のEL発光のスペクトルの周波数依



図2 SHGで観測された結晶中の異方的なキャリア輸送。

存性について検討し、界面におけるキャリアの捕獲が原因と考えられる発光を確認した。また、FET構造の発光素子では、SHG測定から電子とホールキャリア輸送の様子を直接観測することで、電荷の注入から輸送・発光に至る過程を初めて観測することに成功した。

## 5. 今後の計画

本研究は、『有機材料のフレキシブル性に潜む物理を究め、分子形状・配列に起因する界面現象・量子的現象を制御可能として、有機デバイス物理・工学へと学術分野を開拓すること』を目指したもので、その研究はキャリアのダイナミックな挙動を誘電分極現象として捉えて可視化する技術の開発とその解析技術に支えられている。これまでの研究で、これらの技術開発と解析技術開発が順調であり、新しい発見もあったことから、今後の研究は、当初研究計画に沿いながら、新しい試みも追求しながら進める予定である。特に、フレキシブル性・分子膜ドメインに着目したデバイスを作製し、基板に曲げ応力を与えたときのドメイン形状や分極構造変化、デバイス特性変化の光学的計測にも注力していく。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

- M. Iwamoto, Fei Liu, Ou-Yang Zhong-can, Chem. Phys. Lett., 511(4-6), 455-460, (2011).
- M. Weis, W. Ou-Yang, T. Yamamoto, Y. Matsuoka, T. Manaka, M. Iwamoto, Jpn. J. Appl. Phys., 50(5), 051601(5 pages), (2011).
- Y. Mashiko, D. Taguchi, M. Weis, T. Manaka, M. Iwamoto, Appl. Phys. Lett., 101, 243302(4 pages), (2012).
- Sadakata, K. Osada, D. Taguchi, T. Yamamoto, M. Fukuzawa, T. Manaka, M. Iwamoto, J. Appl. Phys., 112, 083723(8 pages), (2012).
- L. Zhang, D. Taguchi, T. Manaka, M. Iwamoto, Appl. Phys. Lett., 100, 103301(4 pages), (2012).
- T. Manaka, S. Kawashima, M. Iwamoto, Appl. Phys. Lett., 97(11), 113302(3 pages), (2010).

他 査読付き論文 84件

国際会議発表 86件(内16件招待講演)

国内会議発表 85件(内5件招待講演)

ホームページ等

<http://www.pe.titech.ac.jp/IwamotoLab/top.html>

E-mail: iwamoto@pe.titech.ac.jp