

論文内容要旨 (和文)

平成27年度入学 大学院博士後期課程

有機材料工学専攻 有機デバイス分野

氏 名 _____ 片桐 千帆



論文題目 CELIV法を用いた有機半導体薄膜の電荷移動度測定

電荷移動度は、有機半導体のデバイス特性を決定付ける重要な因子である。そのため、移動度の改善を目指した新規分子の設計やデバイス設計、膜構造制御などの研究が行われるとともに、有機固体薄膜中の電荷移動度を評価するための測定手法の開発に関する研究が盛んに行われてきた。現在主流の移動度測定法であるTOF (Time-of-Flight) 法やSCLC (Space-charge limited current) 法は数マイクロメートルと厚い有機膜が必要、もしくは定常電流を観測しているために過渡的な物性を解析できないという課題があり、実デバイスに近い有機薄膜において電荷移動度や濃度、局在準位等の電荷輸送特性を評価できる測定手法の開発が求められてきた。したがって本論文では、過渡的な輸送特性を解析できるCELIV (Charge Extraction by Linearly Increasing Voltage) 法に着目し、数百ナノメートルの有機薄膜でより正確な移動度評価を行う手法を新たに開発するとともに、有機材料への適用性を明らかにすることを目的とした。具体的には、dark CELIV法とinjected-CELIV法、MIS-CELIV法という3種類のCELIV法を用いて電荷移動度を評価し、従来の移動度測定法によって得られた結果と比較することで、解析手法や算出移動度の妥当性に関する議論を行った。さらに、有機太陽電池や有機ELに用いられている様々な有機材料の正孔・電子移動度を評価することで、本手法の材料適用性について検証した。

本論文は、全5章で構成されており、各章ごとの研究目的及び得られた結果の要約を以下に記述する。

第1章の「序論」においては、有機半導体の歴史並びに有機半導体の電荷輸送機構に関する基本的な概念や様々な移動度測定手法の概要、及び本研究の目的について述べている。最後に、各章の研究内容の要約を記述し、研究の位置づけや意義を明らかにした。

第2章の「dark CELIV法による電荷輸送特性評価」においては、有機半導体薄膜中に存在する熱平衡キャリアの取出し由来した過渡電流波形から電荷移動度を見積もることができるdark CELIV法を用いて、poly(3-hexylthiophene) (P3HT) の正孔移動度及び状態密度分布の解析を行った結果について述べた。本章の結果より、実デバイスに近い有機薄膜へdark CELIV法を適用した場合に、電極界面における内蔵電位や空乏層が移動度やキャリア濃度に大きな影響を与えることを明らかにした。さらに、内蔵電位を考慮した解析手法を新たに提案することで、dark CELIV法による正確な移動度評価を可能にした。これは、dark CELIV法を用いて実デバイスに近い有機薄膜の移動度を評価する際の重要な解析指針になると考えられる。

第3章の「injected-CELIV法による移動度解析手法の考案」においては、順バイアス電圧を印加する

ことで有機薄膜中にキャリアを注入し、その注入キャリアの取出しに由来した過渡電流波形から電荷移動度を評価する解析手法を新たに提案し、injected-CELIV法として確立することを目的とした。そこで本章では、注入キャリアによって増強された過渡電流波形から移動度を算出する解析手法を考案し、dark CELIV測定やSCLC測定から求めた移動度と比較することで、本手法の妥当性に関する議論を行った。得られた結果より、順バイアス印加によって内蔵電位が打ち消され、フラットバンドが形成される瞬間を電荷取出し開始時間と新たに定義することで、injected-CELIV法による移動度評価が可能であることを明らかにした。熱平衡キャリアが少なくdark CELIV法では測定が困難な有機材料であっても、本手法を用いることで注入キャリアによる増強シグナルの観測や移動度の算出が可能になるため、新たな移動度測定手法として期待できる。

第4章の「MIS-CELIV法による正孔・電子移動度評価」においては、MIS構造素子の絶縁層界面に蓄積させた電荷の取出しに由来した過渡電流から正孔と電子移動度を見積もるMIS-CELIV法に着目し、有機半導体薄膜における新たな移動度測定法としての有用性を実証することを目的とした。そこで本章では、MIS-CELIV法を用いて正確な移動度評価を行うための解析指針を考案するとともに、幅広い有機半導体材料への適用性について検証した。得られた結果より、MIS構造に由来した分圧の影響を考慮することで、より高精度な移動度評価が可能であることを明らかにした。さらに、有機ELの正孔輸送材料や有機太陽電池のドナー材料、アクセプタ材料など特性の異なる様々な有機薄膜で理論通りの過渡電流が観測されること、及び正孔と電子移動度の算出が可能であることを実証した。以上のことから、MIS-CELIV法が有機デバイス材料全般へ適用可能な新たな移動度測定法として有用であることを示した。

第5章の「総括的考察」においては、各章で得られた研究成果及び本論文全体の総合的な考察を行うとともに、CELIV法を主流の移動度測定法として普及させるための今後の課題や展望について記述した。

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成 30 年 2 月 9 日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

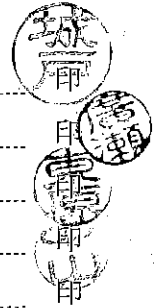
主査 城戸 淳二

副査 廣瀬 文彦

副査 東原 知哉

副査 中山 健一

副査



学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

論文申請者	有機材料工学専攻・有機デバイス分野		氏名 片桐 千帆
論文題目	CELIV法を用いた有機半導体薄膜の電荷移動度測定		
学位論文審査結果	合格	論文審査年月日	平成30年1月25日～ 平成30年2月5日
論文公聴会	平成30年2月5日	場 所	工学部 11号館 201教室
最終試験結果	合格	最終試験年月日	平成30年2月5日
学位論文の審査結果の要旨 (1,000字程度)			
<p>本学位論文では、過渡的な電荷輸送特性を解析できる CELIV (Charge Extraction by Linearly Increasing Voltage) 法に着目し、数百ナノメートルの有機半導体薄膜で正確な移動度評価を行う新たな解析手法を考案するとともに、移動度測定法としての有用性を検証している。</p> <p>第1章では、有機半導体にとっての電荷移動度の重要性や従来の移動度測定法の問題点に着目しながら、本研究の目的や意義について述べている。第2章では、内蔵電位を考慮した dark CELIV 法の新たな解析指針を考案するとともに、P3HT 薄膜の正孔移動度の測定結果についてまとめている。また、従来から広く用いられてきた移動度測定法との比較により解析結果の妥当性について検証した結果について述べている。第3章では、注入電荷の取出しに由来した過渡応答電流から電荷移動度を見積もる injected-CELIV 法を考案するとともに、P3HT 薄膜における移動度測定の結果について述べられている。第4章では、MIS-CELIV 法を用いて正孔輸送材料である NPB の正孔移動度や電界依存性などの電気物性を評価するとともに、解析結果の妥当性について検証している。さらに、有機 EL や有機太陽電池に用いられる様々な有機半導体材料の正孔や電子移動度を評価している。これにより、MIS-CELIV 法が従来の移動度測定法に比べてより正確な解析が可能であり、かつ幅広い有機材料への適用性を有していることを実証している。第5章では、各章で得られた研究成果と本論文全体についての総合的な考察を行うとともに、今後の課題や展望が述べられている。</p> <p>本学位論文は、従来の CELIV 法に新たな観点を取り入れることで、より正確な移動度を算出できる新たな解析手法を提案していることから、学術的貢献が十分に認められるものである。また、これらの成果は、学術論文(筆頭論文2報)として既に発表されており、当該専攻の審査基準を満たしている。以上より、本論文は博士(工学)の学位論文としての審査基準を十分に満たしているものと判断し、合格と判定した。なお本論文は、研究倫理又は利益相反等に係る学内規則に基づく手続きの必要はない。</p>			
最終試験の結果の要旨			
<p>最終試験は、45分の学位論文内容の口頭発表および45分の関連分野に関する口頭試問により実施した。口頭発表では、研究領域の専門知識や研究背景、本論文の独自性や意義が明確に述べられており、研究成果に対する考察や結論についても十分な議論がなされた。口頭試問においても、質問に対して適切かつ論理的な回答がなされたことから、関連知識の理解が十分であることを確認した。以上の結果より、本学位申請者は博士(工学)を授与されるに十分な専門知識と研究遂行能力を有しているものと判断し、最終試験を合格と判定した。</p>			