p-n 接合界面における局所的電荷キャリアダイナミクス評価 Evaluation of Local-Scale Charge Carrier Dynamics at Interface of p-n Junction 京大院工¹, 〇井上 純一¹、筒井 祐介¹、崔 旭鎮¹、櫻井 庸明¹、関 修平¹

Kyoto Univ.¹, ^oJunichi Inoue¹, Yusuke Tsutsui¹, Wookjin Choi¹, Tsuneaki Sakurai¹, Shu Seki¹ E-mail: seki@moleng.kyoto-u.ac.jp

半導体における電荷輸送機構はバルク中と界面において大きく異なることが予想され、我々は マイクロ波を用いて、界面における電荷キャリア移動度を選択的に非接触・非破壊で測定する Field-Induced Time-Resolved Microwave Conductivity (FI-TRMC) 法の開発を行っている^[1-5]。本手法 は、注入した電荷キャリアによるマイクロ波の誘電損失測定から、界面に限定した局所的な電荷 キャリア移動度を見積もる事が可能である。今回、有機太陽電池や有機 EL といった実デバイス 中で形成される界面 CT 状態に着目し、モデル界面における電荷輸送機構の解明を試みた。

本研究では、n・p型半導体としてそれぞれ 1,4,5,8,9,11-Hexaazatriphenylenehexacarbonitrile (HAT-(CN)₆)、2,7-Dioctyl[1]benzothieno[3,2-b][1]benzothiophene (C8-BTBT) を用い、石英板上に 両者を積層した Au/SiO₂/PMMA/下層半導体/上層半導体/Au型の MIS 素子を作成した。特に後者は 100 cm² V⁻¹ s⁻¹を超える局所正孔移動

度を示すことが知られている^[5]。下層 をHAT-(CN)₆、上層をC8-BTBTとした 素子に矩形波を印加し電子を注入した ところ、0.4 cm² V⁻¹ s⁻¹なる移動度が観 測され、HAT-(CN)₆ 単層の電子移動度 とほぼ一致した(Fig. 1a)。これは、電 荷注入前から形成されている CT 状態 が負バイアス印可により解消され、 HAT-(CN)₆ 層へ電子が注入されたと考



Fig. 1 *N* vs $N\mu$ plot of Au/SiO₂/PMMA/HAT-(CN)₆/C8-BTBT/Au device for a) electron and b) hole injection.

えられる。一方で、上層は高い正孔移動度を示す C8-BTBT であり、正孔注入では高い移動度が観 測されるとの予想に反し、実際には 1.3 cm² V⁻¹ s⁻¹程度の移動度に留まった(Fig. 1b)。これは正 孔が界面での CT 状態に強い束縛を受けて輸送されるためであると仮定し、下層を C8-BTBT、上 層を HAT-(CN)6とした素子に、正弦波を印加しインピーダンス解析を行った。単層 C8-BTBT 素子 では周波数の増加に対してマイクロ波信号の位相差は単調減少する。一方、今回の素子は 1000 Hz 付近で位相差が増加し、極大値を与える挙動を示した。また、二層構造を有する素子において 1000 Hz 付近の周波数では上層と下層の界面に優先的に電荷が蓄積されることが等価回路解析より明 らかとなった。これは 1000 Hz 付近で HAT-(CN)6 /C8-BTBT 界面に蓄積される電荷が誘電損失へ大 きく寄与していることを示している。そこで、C8-BTBT 上下界面である HAT-(CN)6 /C8-BTBT 界 面と C8-BTBT/PMMA 界面における誘電損失への寄与の比を検証した。比が同程度の場合と 10 倍 以上の場合を比較すると、同程度のとき測定値とシミュレーション結果が最もよく一致した。こ れは、C8-BTBT 中の CT 状態が解消すれば、HAT-(CN)6 界面であっても高い正孔移動度を示すこ とを意味し、CT 状態が輸送を強く束縛することを支持する。

Y. Honsho, S. Seki *et al. Sci. Rep.* 2013, *3*, 3182. [2] W. Choi, S. Seki *et al. Appl. Phys. Lett.* 2014, *105*, 033302. [3] Y. Tsutsui, T. Sakurai, S. Seki *et al. Phys. Chem. Chem. Phys.* 2015, *17*, 9624. [4] J. Inoue, T. Sakurai, S. Seki *et al. ACS Omega* 2017, *2*, 164. [5] W. Choi, S. Seki *et al. Appl. Phys. Lett.* 2017, *110*, 153303.