GCIB-UPS/XPS を用いた有機 EL 連続駆動による In 拡散の深さ方向解析 Indium diffusion mapping by GCIB-UPS/XPS in continuously operated OLEDs i³-OPERA¹, 九大 OPERA², アルバック・ファイ³, ^OHin Wai Mo¹, 波多江泰裕¹, 小林慎一郎¹, 寺島雅弘³, 宮山卓也³, 藤本 弘^{1,2}, 安達千波矢^{1,2}

i³-OPERA¹, OPERA Kyushu Univ.², ULVAC-PHI³, °Hin Wai Mo¹, Yasuhiro Hatae¹, Shin-ichiro Kobayashi¹, Masahiro Terashima³, Takuya Miyayama³, Hiroshi Fujimoto^{1,2}, Chihaya Adachi^{1,2} E-mail: hinwaimo@opera.kyushu-u.ac.jp, adachi@cstf.kyushu-u.ac.jp

【緒言】長時間駆動による有機 EL 素子の有機材料や界面の劣化機構の理解は重要である。劣化の解析手法の一つとして GCIB-TOF-SIMS[1]があり、駆動による有機材料の劣化を積層方向に対し評価できるが、有機 EL の電極の劣化がデバイス特性に与える影響は評価できない。そこで我々は有機材料内の金属の分布や電子状態を理解できる GCIB-UPS/XPS[2]に注目し、有機 EL 素子(ITO/α-NPD/Alq₃/LiF/Al)の初期状態と劣化(LT₅₀)における有機層内でのAl, In, Sn の濃度分布を評価した。更にデバイス特性や DCM[3]及び TSC[4]によるキャリア注入・トラップ評価も行い長時間駆動による電極の劣化が有機層に与える影響を調べた。

【実験】劣化前後の有機 EL 素子(ITO/α-NPD/Alq₃/LiF/Al)のに対して GCIB-XPS による深さ方向分 析を行い、電極を構成する Al, In, Sn の α-NPD 及び Alq₃での濃度分布を調査した。更に GCIB-UPS を用いて ITO/ α-NPD 界面の電子状態を評価した。GCIB-XPS/UPS の評価にはアルバック・ファイ 製の PHI VersaProbe III を用いた。DCM 及び TSC で注入特性やトラップ状態の評価も行った。

【結果】Fig. 1に GCIB-XPS による劣化前後の Al, In, Sn の濃度とエッチング時間の関係性を示す。 縦軸の 100%は ITO 内での各金属原子の濃度に相当する。横軸はエッチング時間であるが Sn や Al の濃度分布から各層との界面位置が推測できる。Alq3 層では Alq3 の Al が見られ、Alq3 と α-NPD の界面が明確であり、劣化前後で特に差は見られない。一方、In は初期状態の α-NPD では観測さ れないが LT₅₀ では数%程度の拡散が認識できる。これは印加電圧によって In が ITO から α-NPD に拡散したためと考えられる。α-NPD 内の In が EL 特性に与える影響を調べるため、GCIB-XPS に よる劣化前後の α-NPD の電子状態、及び DCM 測定による劣化前後の変位電流特性を Fig. 2 に示 す。劣化により α-NPD の HOMO と ITO のフェルミエネルギー(E_F)の差が大きくなる。DCM によ り α-NPD から Alq3 へのホールの注入電圧(Vinj)の増大が確認できる。これは α-NPD の HOMO と ITO の E_F の差が増大したため ITO から α-NPD へのホールの注入効率が低下し、その影響で Vinj が増加したと考えられる。更に TSC でトラップ状態を調べると劣化前後で α-NPD 由来のトラッ プのエネルギー準位の低下が見られる。仮に In が劣化後の α-NPD 内のトラップとなるなら ITO 内の In 濃度に対して 1%程度の濃度のトラップが α-NPD に存在することになり、これらがデバイ ス特性の劣化の原因の要因になっている可能性が考えられる。



Fig. 1. Atomic concentration as a function of sputter time of Al, Sn and In by GCIB-XPS

参考文献 [1] J. Matsuo et al., Appl. Surf. Phys., **255**, 1235(2008). [2] Y. Noguchi., Appl. Phys. Lett. **102**, 203306 (2013). [3] T. Miyama et al., J. Vac. Sci. Technol. A, **28**, L1 (2010). [4] M. Nakahara et al., Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L634 (2007).



Fig. 2. (a) DCM *J-V* characteristics. Energy level diagram of (b) the initial device and (c) LT_{50} device measured by GCIB-UPS