

Title	Studies on the Mechanism of Photocurrent Multiplication Phenomena at Organic/Metal Interface
Author(s)	中山, 健一
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.11501/3169349">https://doi.org/10.11501/3169349</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	中 山 健 一
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 1 5 3 8 6 号
学位授与年月日	平成12年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科物質・生命工学専攻
学位論文名	Studies on the Mechanism of Photocurrent Multiplication Phenomena at Organic/Metal Interface (有機/金属接合界面における光電流増倍機構に関する研究)
論文審査委員	(主査) 教授 横山 正明
	(副査) 教授 福住 俊一    教授 高井 義造    教授 金谷 茂則 教授 宮田 幹二    教授 柳田 祥三    教授 一岡 芳樹 教授 梅野 正隆

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、有機顔料薄膜においてはじめて見出された、光電流量子収率が10万を越える光電流増倍現象の機構を解明し、その特性制御のための指針を得ることを目的として行った研究についてまとめたもので、序論、本文5章、および総括の全7章で構成されている。

第1章の序論では、有機顔料薄膜における光電流増倍現象に関して、その基本的な特性とこれまでに推定されていた増倍機構を概観し、本研究の目的と意義を示している。

第2章では、光電流増倍現象における初期過渡光電流の測定を行い、これまでに推定されていた増倍機構、すなわち光生成キャリアが有機/金属界面に蓄積することによりトンネル電子注入が引き起こされて増倍に至るといふ、増倍プロセスを直接観察することに成功し、そのメカニズムの妥当性を実証している。また、有機/金属界面に一定量の電荷が蓄積することで電流増倍が起こることを明らかにし、増倍特性向上のための重要な設計指針を得ている。

第3章では、有機/金属界面現象である光電流増倍に決定的な役割を果たす有機/金属界面のホールトラップの本質を明らかにする目的で熱刺激電流測定を行い、その界面トラップが通常のトラップと挙動が異なることを明らかにし、有機薄膜と金属電極が完全には密着していないことにより生ずる空間的な行き止まり構造にホールが蓄積するとする、構造トラップモデルを提案している。

第4章では、第3章において提案された構造トラップモデルを検証するために、有機薄膜と金属電極の界面の構造と増倍特性の相関について、有機薄膜の極微細表面構造と蒸着電極構造の観点から検討を行い、構造トラップの実在を証明するとともに増倍メカニズムの本質をなす界面トラップの起源を明らかにしている。

第5章では、さらに微視的なメカニズムを明らかにするため、有機/金属界面における電界強度分布ならびに電荷蓄積過程の数値計算によるシミュレーションを行っている。その結果、有機薄膜と金属電極が接触していない部分が存在すれば、必然的に電荷蓄積が生じて増倍現象が起こり得るといふ、増倍現象における最も本質的なメカニズムを明らかにし、増倍特性の向上のために界面構造の設計指針を確立している。

第6章では、これまでに得られた指針に基づいて、増倍現象が持つ最大の課題である応答速度の改善を試みている。有機薄膜の積層構造を導入して薄膜の均一性を向上させることで高電圧駆動を可能にした結果、高い増倍率を保持して応答速度を10倍以上高速化することに成功している。

第7章では、本研究で得られた成果を総括している。

## 論文審査の結果の要旨

これまで光電流の量子収率が1を越える光電流増倍現象は、結晶シリコンにおけるアバランシェ効果としてよく知られているが、有機材料ではこれまで報告がなかった。本論文は、有機顔料薄膜においてはじめて見出された、量子収率が10万を越える光電流増倍現象の機構を解明し、その特性制御のための指針を得ることに成功している。本論文の主な成果を要約すると以下ようになる。

- (1) 光電流増倍現象における初期過渡光電流の測定を行うことにより、光生成キャリアが有機/金属界面に蓄積することによりトンネル電子注入が引き起こされて増倍に至る増倍過程を、直接観察することに成功し、それまでに推定されていた増倍メカニズムの妥当性を証明している。また、増倍光電流は、有機/金属界面に一定量の電荷が蓄積することによって引き起こされることを明らかにし、応答速度向上のための重要な設計指針を得ている。
- (2) 光電流増倍機構において決定的な役割を果たす有機/金属界面のホールトラップが、通常の電子的トラップと異なる特異な性質を持つことを熱刺激電流測定法によって明らかにし、そのような界面トラップの候補として、有機薄膜と金属電極が完全には密着していないことにより生ずる空間的な行き止まり構造にホールが蓄積するとする、構造トラップモデルを提案している。
- (3) 有機/金属接合界面の構造、すなわち、有機薄膜の極微細表面構造と蒸着電極構造が増倍特性に及ぼす影響を検討することにより、提案された構造トラップモデルを証明するとともに増倍メカニズムの本質をなす界面トラップの起源を明らかにしている。
- (4) 有機/金属界面における電界強度分布ならびに電荷蓄積過程の数値計算によるシミュレーションを行うことにより、有機薄膜と金属電極が接触していない部分が存在すれば、必然的に電荷蓄積が生じて増倍現象が起こり得るといふ、増倍現象における最も本質的なメカニズムを解明し、増倍特性を向上させるために必要な界面構造の設計指針を確立している。
- (5) 有機薄膜における光電流増倍現象が持つ最大の課題である応答速度を改善するために、薄膜の均一性に優れ、高電圧駆動が可能な有機積層型素子を作製することにより、高い増倍率を保持して応答速度を10倍以上高速化することに成功している。

以上のように本論文は、有機/金属界面における光電流増倍現象が、従来の無機系で見られたメカニズムとは全く異なる、光誘起電子注入機構で起こることを明らかにするとともに、それが有機薄膜と金属電極の界面構造に敏感であることを明らかにしている。本論文で得られた成果は、光電流増倍現象のみならず、広く有機エレクトロニクスデバイスにおける有機/金属界面の電荷注入過程に新しい概念を提出するもので、有機半導体物性工学の発展に貢献するところが大きい。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。