

機関番号：12608

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21760008

研究課題名 (和文) ノイズ計測を用いた有機半導体中のキャリアの寿命の評価

研究課題名 (英文) Carrier lifetime evaluation in organic semiconductor by low-frequency noise measurement

研究代表者

東 康男 (AZUMA YASUO)

東京工業大学・応用セラミックス研究所・助教

研究者番号：80452415

研究成果の概要 (和文)：

低周波ノイズ計測手法を用いることで、半導体中キャリアの寿命の評価を行った。代表的な半導体であるSiにおいては100 μ sのオーダーで寿命が見積もられ、その温度依存性からキャリアの散乱のメカニズムがイオン化不純物散乱からフォノン散乱に変化していることが分かった。一方有機半導体の1つであるペンタセンにおいて、キャリアの寿命は100 μ sのオーダーと見積もられ、その温度依存性を測定することでキャリア伝導機構がホッピング伝導からバンド伝導へと転移していることを示唆する結果を得た。

研究成果の概要 (英文)：

Carrier lifetime in semiconductors is evaluated by low-frequency noise measurements. In Si, carrier lifetime is evaluated as in the order of 100 μ s. Temperature dependence of carrier lifetime in Si shows that carrier scattering mechanism changes from ionized impurity scattering to phonon scattering. In pentacene, carrier lifetime is evaluated as in the order of 100 μ s. Temperature dependence of carrier lifetime in pentacene implies that carrier transport mechanism changes from hopping transport to band transport.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,700,000	870,000	3,770,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用物性・結晶工学

キーワード：有機分子 ノイズ計測

1. 研究開始当初の背景

有機半導体を用いた電子デバイスについての研究は、移動度を一つの指標としてこれまで行われてきており、移動度の向上及びばらつきの制御が大きな目的として一般に取り上げられている。このように有機半導体においては移動度についての研究は、Time of Flight 法やトランジスタ構造における電界

効果移動度の計測など多くなされている。一方で有機半導体においては、移動度以外の半導体としての物性パラメータについての研究はあまりなされていないのが実情である。キャリアの寿命は半導体における基礎的物性パラメータの一つであり、電気的および光学的な特性を決める重要なパラメータである。無機半導体の分野ではノイズ計測手法を

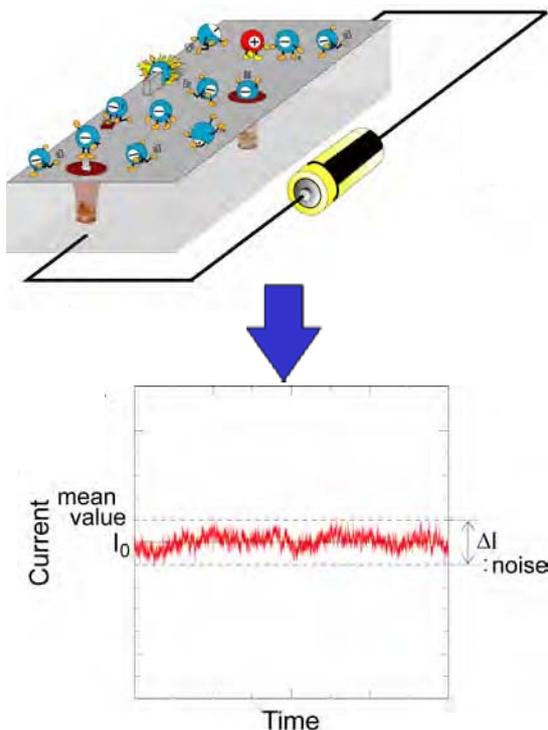


図1 半導体中におけるノイズの概念図。半導体内で起こるキャリアトラップ、脱トラップ、散乱、再結合は信号の平均値からのばらつきである「ノイズ」として計測される。

含め様々な手法でキャリアの寿命を計測しているのに対し、有機半導体の分野ではこのような研究はなされていない。

一般に計測におけるノイズとは計測の精度を制限する要因の一つであり、ノイズを極限まで低減させた条件で測定することが計測の基本である。しかしそのようにしてノイズを低減させた上でも、意図しない信号が検出されることがある。これは半導体材料においては次のように考えることができる。すなわち半導体中に含まれる不純物や欠陥、あるいはキャリアの生成・再結合によりキャリアの動きは不規則になり、その結果が電気的なノイズとして現れるというものである。半導体中の不純物・欠陥、キャリアの生成・再結合が半導体中に必ず存在するものであることを考えると、これらによって発生するノイズは半導体中のキャリア輸送の本質を与える信号であり、一般に「ノイズ」と呼ばれている信号にも情報が含まれていると考えられる。

このような着想を元に、電子材料・電子デバイスにおける低周波ノイズの計測手法の構築を行い、本手法を用いて有機半導体中の電荷輸送機構の解明を目的として研究を行ってきた。これまでに得られた結果として、有機半導体としてペンタセンを用いた有機トランジスタにおいて、ソース・ドレイン間を流れる電流に含まれるノイズの強度がガス

の吸着によって変化することが分かっている。この結果から、ノイズの計測から電荷輸送に関する情報が得られる可能性があることが分かった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、有機半導体中の電荷輸送機構を解明するため、低周波ノイズ計測手法を用いて有機半導体中のキャリアの寿命を直接評価することである。様々な研究者によって有機半導体についての研究は行われてきたが、高性能の材料開発あるいは素子構造開発といった観点から、移動度についての測定が多くなされてきた。一方で有機半導体と呼ばれる材料は、材料自身が外部影響からガスなどの不純物吸着を受けなければ本質的に真性半導体と考えられる。従って有機半導体材料そのものの導電率は、かなり小さい値を示すことが言われている。このことが、電気的特性を含む半導体としての物性パラメータについての測定が移動度を除いてあまりされていない理由である。このような状況に対し、低周波ノイズ計測手法を用いキャリアの寿命を直接評価することで、有機半導体の物性評価の新たな側面が得られるとともに、電荷輸送機構についての知見を深めることが可能になると考えられる。

3. 研究の方法

測定回路は図2に示される。試料に対して白色光を照射した条件において外部から電圧 V を印加し、その際に流れる電流 I をシャント抵抗 R で変換した電圧信号 V_R に対して高速フーリエ変換(FFT)処理を施すことで、ノイズスペクトルの測定を行うという単純なものである。ただし測定対象がノイズであり非常に微弱な信号を観測することになるた、

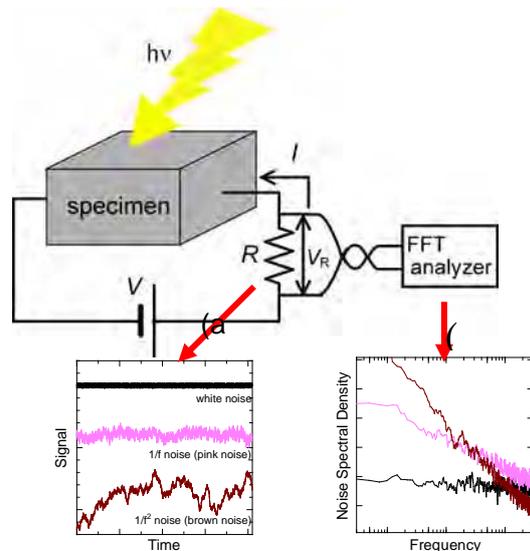


図2 測定回路概略図並びに時間領域から周波数領域への変換の様子

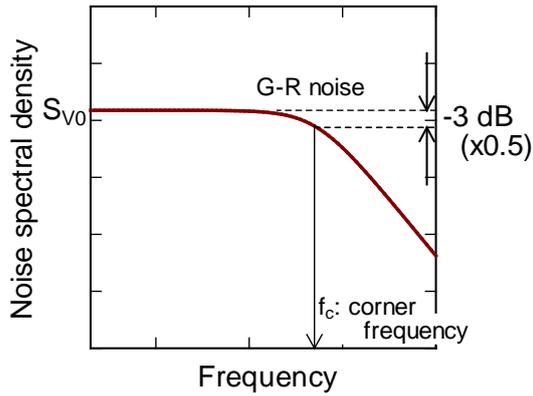


図3 生成-再結合ノイズのスペクトル波形

適切な電源や配線の使用など、様々な工夫がなされている。測定は真空中で行い、液体窒素温度までの低温下で測定が可能となっている。

一般に観測されるノイズは様々なものがあり、白色ノイズ、 $1/f$ ノイズ、ジョンソンノイズ、生成-再結合ノイズなどに分類される。本研究ではこのうち生成-再結合ノイズに注目し、ここから見積もられるキャリアの寿命を測定対象としている。一般に生成-再結合ノイズのスペクトル波形 $S_v(f)$ は下記のようなローレンツ型の波形で記述されることが知られている。

$$S_v(f) \propto \frac{S_{v0}}{1+(2\pi f)^2}$$

これを示したものが図3である。この波形は低周波領域においてはほぼ一定のノイズ強度であるのに対し、高周波領域においては $1/f^2$ に比例する形で強度が変化するものである。ここで低周波領域におけるノイズ強度 S_{v0} に対しノイズ強度が半分になる周波数(コーナー周波数 f_c)から、キャリアの寿命は

$$\tau = \frac{1}{2\pi f_c}$$

と求められることが知られている。この手法を用いて、半導体におけるノイズ計測からキャリアの寿命の評価を行っている。

4. 研究成果

光照射時の低周波ノイズ計測として高抵抗 Si に対して測定を行った結果を図4に示す。図4(a)は様々な温度におけるノイズスペクトルである。低周波数領域においてはノイズスペクトルが周波数の逆数に比例する $1/f$ ノイズが観測されているのに対し、100 Hz 以上の高い周波数領域においては図3のような生成-再結合ノイズが観測されていることが分かる。さらにすべての測定温度において、500~800 Hz の周波数で波形に肩が現れていることが分かる。この肩が現れる周波数の逆

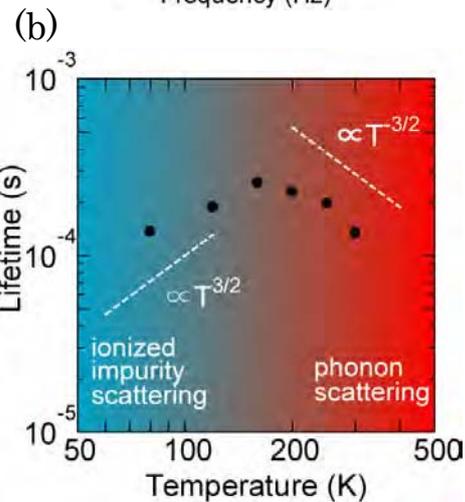
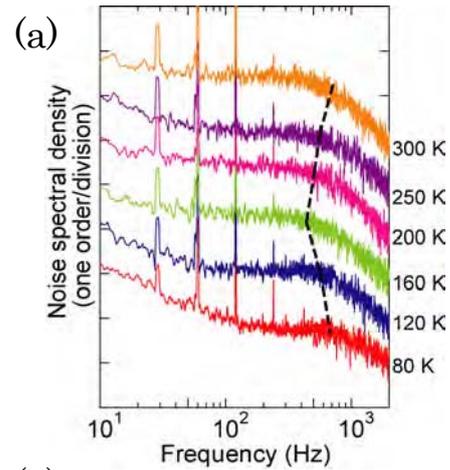


図4 (a)高抵抗Siでの様々な温度における低周波ノイズ。(b)ノイズスペクトルから見積もられた寿命の温度依存性。

数を計算することでキャリアの寿命を見積りその値を温度に対してプロットしたものが図4(b)である。150 K 付近を境にして低温側では $T^{3/2}$ の依存性が、高温側では $T^{-3/2}$ の依存性があることが分かる。半導体中におけるキャリアの散乱機構は、イオン化不純物散乱とフォノン散乱の2つで主に表されることが多くの半導体の教科書に記述されている。そして前者は低温側で顕著に表れ移動度に対して $T^{3/2}$ の依存性を持ち、後者は高温側で支配的であり移動度に対して $T^{-3/2}$ の依存性を持つことも知られている。また、キャリアのドリフト移動度 μ とドリフト寿命時間 τ との間に $\mu = e\tau/m^*$ (e : 素電荷, m^* : 有効質量) の関係があることも知られている。従って図4(b)は Si におけるキャリア寿命時間の温度依存性を表す妥当な結果である。この結果から、低周波ノイズ計測手法を用いることで半導体中のキャリアの寿命を評価することが実証できたといえる。

この結果を基にして代表的な有機半導体材料として用いられているペンタセン薄膜に対して低周波ノイズ計測を行った結果が

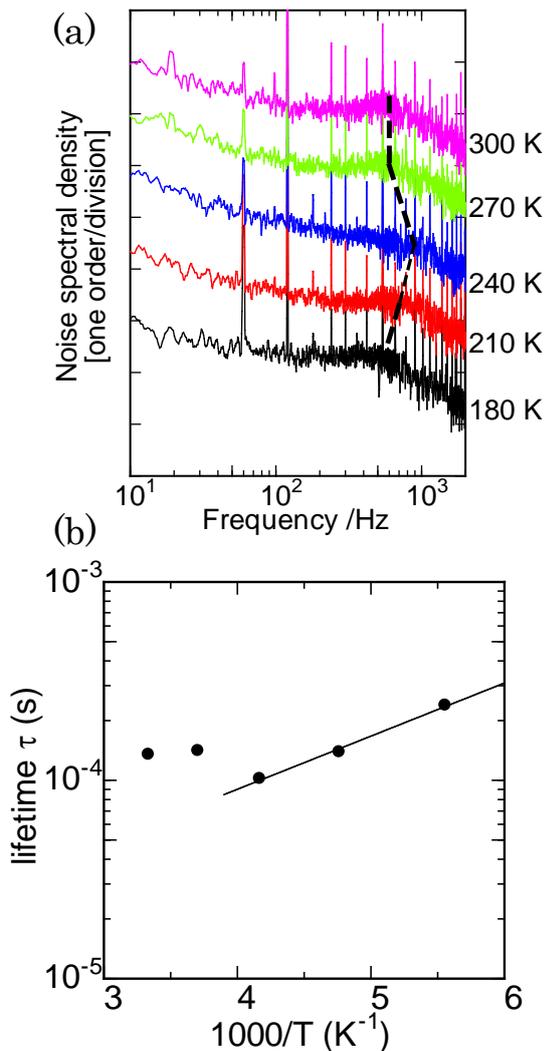


図 5 (a)ペンタセン薄膜での様々な温度における低周波ノイズ。(b)ノイズスペクトルから見積もられた寿命の温度依存性。

図 5(a)である。図 3 と同様すべてのノイズスペクトル波形において 500~800 Hz 付近に肩が現れていることが分かる。ただし肩が現れる周波数の温度依存性は図 4 の Si の場合とは異なる振る舞いをしていること分かる。

図 5(b)はノイズスペクトルにおいて肩の現れる周波数から寿命を見積もり、その温度依存性をプロットした結果である。この結果を見ると 240 K 付近を境目にして高温側はほぼ温度依存性を示さないのに対し、240 K よりも低温側においては温度の逆数に対して指数関数的に変化していることが分かる。

このような傾向は、同じポリアセン材料の 1 つであるナフタレン分子に対し、その移動度の温度依存性を Time-of-Flight 法にて測定を行うことによって得られている、他グループからの結果にも現れている (M. Pope and C. E. Swenberg, "Electronic Processes in Organic Crystals and Polymers," 2nd ed. p361 (Oxford press)). この報告において、移動度

は高温領域においては電気伝導過程がホッピング伝導になるために、移動度は温度に対してあまり依存しないのに対し、低温領域においては電気伝導過程がバンド伝導となり、移動度が温度の逆数に対して指数関数的に変化することが述べられている。

一般にキャリア寿命時間 τ は、キャリア移動度 μ と比例関係にあり、 $\mu=e\tau/m^*$ と記述されることが知られている。従って移動度の温度依存性は、キャリアの寿命の温度依存性と同じ振る舞いをするのが予測される。今回得られているキャリア寿命の温度依存性についての結果は、他研究グループで得られている移動度の温度依存性の結果と同じような傾向となっている。すなわち図 5 で得られているキャリア寿命の温度依存性は、ペンタセン薄膜中のキャリア伝導機構が高温領域でのホッピング伝導から、低温領域でのバンド伝導に変化していることを示唆している結果であるといえる。

これらの結果から、今回提案している低周波ノイズ計測手法を用いることで、有機半導体中におけるキャリア伝導機構が温度を変化させることにより、ホッピング伝導からバンド伝導へと変化している様子を実証できている可能性があるといえる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計 2 件)

1・原田佑介、東康男、山田亮、冨田博一、「ノイズ計測によるペンタセン薄膜中のキャリアの寿命の評価」、第 56 回応用物理学関係連合講演会、2009 年 4 月 1 日、筑波大学

2・Yasuo Azuma, Taiyo Suzuki, Yasuyuki Yamada, Kentaro Tanaka, Masayuki Kanehara, Toshiharu Teranishi, Yutaka Majima, "Contact resistance reduction at S/D electrodes-pentacene interface by porphyrin self-assembled monolayers in organic thin-film transistors", Korea-Japan Forum 2010 on Organic Materials for Electronics and Photonics (KJF2010), Aug.22-25 2010, Fukuoka

6. 研究組織

(1) 研究代表者

東 康男 (AZUMA YASUO)

東京工業大学・応用セラミックス研究所・助教

研究者番号：80452415