

解説

## 中性子反射率法による塗布型有機 EL 素子構造の可視化

大久 哲<sup>1,2,3\*</sup>, 城戸 淳二<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> 山形大学大学院有機材料システム研究科

<sup>2</sup> 山形大学有機エレクトロニクス研究センター

<sup>3</sup> 山形大学有機材料システムフロンティアセンター

〒 992-8510 山形県米沢市城南 4-3-16

\*s.ohisa@yz.yamagata-u.ac.jp

(2019年3月7日受理 ; 2019年5月11日掲載決定)

有機 EL 素子是一对の電極間に機能ごとに分かれた多層の有機積層薄膜を持ち、その積層構造は有機 EL 素子の性能に大きな影響を与える。しかし、それぞれの有機薄膜は数 nm から数十 nm と非常に薄く、評価が難しい。その中で、我々は非破壊計測手法である中性子反射率法に着目した。本論文では、中性子反射率法を用いて評価した塗布積層有機薄膜界面の構造と、その構造が有機 EL 素子の特性に与える影響について紹介する。

## Visualization of Organic Light-Emitting Device Structures Fabricated by Solution-Processing Using Neutron Reflectivity Measurements

Satoru Ohisa<sup>1,2,3\*</sup> and Junji Kido<sup>1,2,3</sup>

<sup>1</sup> Graduate School of Organic Materials Science, Yamagata University

<sup>2</sup> Research Center for Organic Electronics, Yamagata University

<sup>3</sup> Frontier Center for Organic Materials, Yamagata University

4-3-16 Jonan, Yonezawa, Yamagata 992-8510, Japan

\*s.ohisa@yamagata-u.ac.jp

(Received: March 7, 2019; Accepted: May 11, 2019)

In organic light-emitting devices (OLEDs), optoelectronic functions are separated into multiple organic stacked layers sandwiched by a pair of electrodes, and the stacked layer structure has great impacts on the device characteristics. However, each organic layer has a very thin thickness from only several nm to several tens of nm, and the precise evaluation of the thickness is difficult. In this context, we focused on non-destructive neutron reflectivity (NR) measurements for the precise evaluation of layer structures. In this article, we report solution-processed stacked organic/organic layer structures investigated by NR, and their influences on OLED performances.

### 1. 緒言

有機エレクトロルミネッセンス (EL) 素子がスマートフォンやテレビのディスプレイとして利用され、急速に普及が進んでいる。有機 EL 素子は自発光型素子であるために表現できる深い黒と、高い応答速度が他のディスプレイデバイスの追随を許さない美

しい高画質を生み出す。画質だけでなく、スマートフォンディスプレイとしては、消費エネルギーの面でも液晶ディスプレイより低く、Samsung の Galaxy や Apple の iPhone X に搭載されているように、すでにディスプレイの主流となりつつある。さらに最近では、CES 2019 で韓国の LG 電子が巻き取れる大型

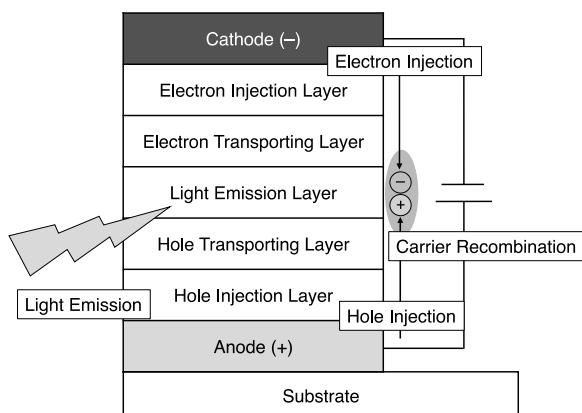


Fig. 1. Typical OLED structure.

有機 EL ディスプレイを発表し、会場中の注目を集めて世間を賑わせた。このように有機 EL ディスプレイの普及が急速に進んでいる。しかし、まだ性能の改善の余地は大きく残されており、依然として、研究開発が盛んに行なわれている。

代表的な有機 EL 素子の構造を Fig. 1 に示した。有機 EL 素子はプラスの電荷（正孔）を注入する陽極とマイナスの電荷（電子）を注入する陰極の間に有機物の発光層を含む多積層膜を挟み込んだ形をとる。この多積層膜の各層は異なる機能を持っており、例えば、陽極からの正孔注入を助ける正孔注入層、注入した正孔を輸送する正孔輸送層、陰極からの電子注入を助ける電子注入層、注入した電子を輸送する電子輸送層、注入した正孔と電子が再結合して発光する発光層に分かれる。この各層はわずか数 nm から数十 nm の膜厚からなり、多積層膜全体でも百数十 nm の厚みしかない。有機 EL 素子の性能は多積層膜構造に大きく依存しており、その中でも積層界面の構造はキャリア・励起子の閉じ込めや隣接層への電荷注入効率に大きな影響を与える。そのため、積層界面構造を精密に評価する事が求められている。しかし、積層界面は、わずか 0.1 nm から数 nm というごく薄い厚みであるため、その評価に要求される水準は非常に高く難しい。

積層界面を規定するためには、① 膜厚深さ方向の分子分布、② 分子の凝集状態、③ 分子の配向分布を評価する必要がある。本論文では、①に焦点をあてて述べる。①としては薄膜を膜厚方向にスパッタリングしながら表面の元素分析・質量分析を X 線光電子分光法・二次イオン質量分析法で行う事で、膜厚深さ方向の元素・分子分布のプロファイルを得る方法が知られている[1,2]。また、薄膜断面を電子

顕微鏡で観察して評価する方法も知られている[3]。これらは特別な解析をする必要がなく、直接的に元素や分子の深さ方向プロファイルを得られる点で、非常に有用な方法である。しかし、これらは破壊分析になるため、多少なりとも破壊による積層膜構造の変化が起こりうる事に注意する必要がある。近年では、これらのダメージを低減するために、スパッタリングイオンとして低ダメージのアルゴンガスクラスタを用いるなど、分析時の試料へのダメージを抑える工夫がなされている。しかしながら、より精密な評価には非破壊分析を用いる事が望ましい。非破壊で膜厚深さ方向のプロファイルを得る方法としては、分光エリプソメトリー法や X 線反射率法（XRR）が挙げられる。これらは積層膜の各層が異なる光学定数を持つ事に起因する積層薄膜内部での光学干渉効果を解析して積層膜構造を決定する。分光エリプソメトリー法は、試料に光を照射した際の偏光状態の変化を光の波長ごとに解析する事で、積層膜構造に関する情報が得られる[4]。膜厚深さ方向の分解能は 1 nm 程度と高く非常に有用な方法である。問題点は、測定結果の解析が難しい事である。測定結果はフレネル光学を使う事で解析する事ができるが、その時に用いるパラメータが多い。屈折率、消衰係数、膜厚、積層界面粗さがパラメータとして用いられるが、このうち屈折率、消衰係数は光の波長と分子の配向に依存するため、解析が複雑になってしまう。パラメータが多ければ多いほど、測定結果を解析モデルでフィッティングした際に、真の構造ではないローカルミニマム構造に陥りやすい。XRR は試料に X 線を照射した際の反射率の X 線波長・入射角度依存性を測定・解析する事で、積層膜構造に関する情報が得られる[5,6]。こちらも膜厚深さ方向の分解能は 1 nm 程度と高く、非常に有用な方法である。測定結果は分光エリプソメトリー法と同様に、フレネル光学を使う事で解析する事ができる。解析に用いるパラメータが分光エリプソメトリー法より少ない点は利点である。問題点としては、有機積層薄膜の各層の屈折率が近い値をとるため、二層間のコントラストが小さく、有機積層界面の評価が難しい事が挙げられる。

上述したように、通常、行なわれている手法は、分析時に試料の破壊を伴う事や、非破壊で測定ができる場合であっても、解析が困難であるといった問題点があり、精密な評価を簡便に行う事は難しい。

## 2. 中性子反射率法

我々は上述の問題点を鑑みて、非破壊計測、高い膜厚方向分解能を持ち、解析が容易である手法を探索した。その結果、中性子反射率法 (NR) が有機多積層膜構造の評価に有用であると考えた[5]。中性子は原子核を構成する粒子の一種である。中性子は物質であるため、物質波としての性質を持ち、波長は(1)式のように中性子の進行速度に依存して変化する。測定に用いられる波長は 1 nm 程度であり、この程度の膜厚深さ方向分解能が得られる。

$$p = mv = h/\lambda \quad \dots (1)$$

(p: 運動量; m: 質量; v: 速度; h: プランク定数;  $\lambda$ : 波長)

物質波は電磁波と同様に、積層薄膜内部で Fig. 2 のように干渉現象を起こす。照射する中性子の波長や入射角度を変化させたときの反射率の変化を Fig. 3 のように解析する事で積層膜構造に関する情報を得る事ができる。ここで扱う反射率は、入射角と反射角の等しい鏡面反射の条件で測定したもので、反射率は入射中性子強度に対する反射中性子強度の比である。

照射する中性子のエネルギーは、数 meV 程度と小さく、試料へのダメージは非常に小さい。中性子は陽子や電子と異なり、電荷を持たない。そのため、原子に中性子を入射した際に、原子を構成する電子と陽子から電磁気力を受ける事がなく、原子核内部

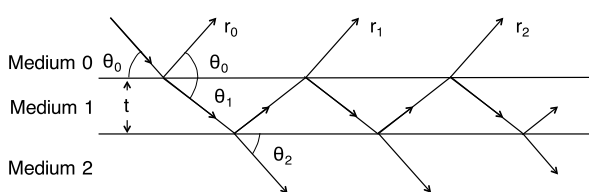


Fig. 2. Neutron interference in a single layer film.

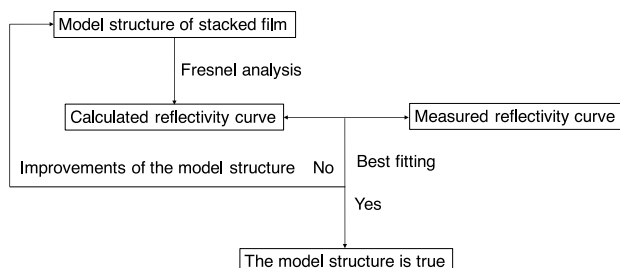


Fig. 3. Analysis flowchart.

まで入り込む事ができる。中性子は原子と核力や磁気力を通して相互作用する。有機物の場合は磁気モーメントをもたないため、主に核力で相互作用する。異なる原子種は、異なる原子核を持つため、それぞれ中性子との相互作用の程度 (散乱長) が異なる。単位体積あたりの散乱長の合計を散乱長密度 (scattering length density (SLD)) と呼び、異なる原子組成を持つ分子からなる薄膜はそれぞれ異なる SLD を持つ。ここで、SLD は屈折率と(2)式の関係を持ち、異なる SLD は異なる屈折率の値を与える。ここで、NR で扱う範囲では、屈折率の波長依存性は無視できる。

$$n = 1 - \lambda^2 \rho / 2\pi \quad \dots (2)$$

(n: 屈折率;  $\lambda$ : 波長;  $\rho$ : SLD)

また、ホウ素など一部の原子は、中性子を強く吸収する性質を持つため、吸収係数を無視する事はできないが、通常、有機 EL 素子を構成する分子中で用いられる炭素、窒素、酸素、水素といった原子の場合、吸収係数は無視できるほど小さい。そのため、有機 EL 素子の積層薄膜構造を解析する際には、屈折率、膜厚、界面粗さの三種のパラメータだけを用いれば良い。したがって、分光エリプソメトリー法と比較して、解析が大幅に簡単になる。しかし、XRR と同様に同じような元素組成を持つ有機芳香族化合物の間では、屈折率差が小さいといった問題が存在する。NR ではこの問題を解決するために、D/H コントラスト法を用いる事が出来る。ここで D は重水素、H は軽水素を表す。D と H では中性子の散乱長が大きく異なり、H は -3.7 fm、D は 6.7 fm である。有機化合物中の H を D 化する事で、化学的な性質をあまり変化させる事なく、中性子に対する屈折率を大きく変化させる事ができる。すなわち、二層のうちの片方の一層を構成する分子の H を D 化する事で、Fig. 4 のように、二層間のコントラストを大きくする事ができる。

二層間の界面における密度プロファイルは、各測定試料によって異なるため、一義的に決める事はできないが、(3)式の相補誤差関数を使って近似できる事が多い事が知られている。

$$\rho(z) = \text{erfc}(z/2^{1/2}\sigma) \quad \dots (3)$$

ここで、z は膜厚方向の距離、 $\sigma$  は界面荒さである。z = 0 が界面プロファイルの変曲点で、ここで

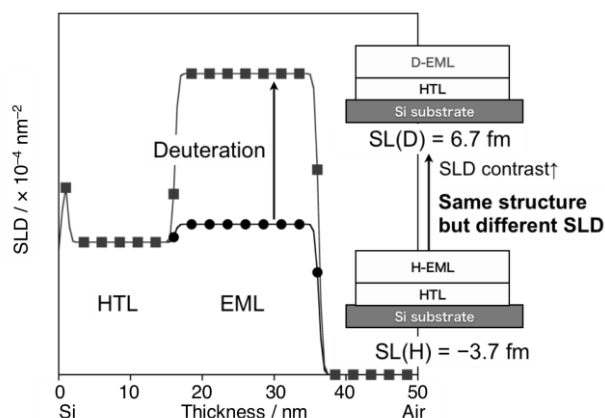


Fig. 4. SLD contrast enhancement by deuteration.

二層を区別する事で、界面荒さに関係なく膜厚を定義する事ができる。

NR 測定は、原子炉や加速器のある大型実験施設で測定する事が出来る。国内で NR 測定ができる施設としては、例えば茨城県東海村にある J-PARC 内の物質・生命科学実験施設に設置されているビームライン (BL) で行う事ができる。課題公募に応募し、採択されるとビームタイムが割り当てられ、測定を行う事が出来る。我々は BL16 の SOFIA を用いた [7,8]。測定試料としては、有機膜を成膜したシリコン基板を用い、中性子の速度と入射角度を変えた時の中性子の反射率の変化を測定した。測定の際には、装置管理者が丁寧に測定の指導をしてくれる事、装置のインターフェースはほぼ自動化されている事から、初心者であっても安心して簡単に操作する事ができる。

### 3. 塗布有機積層膜の界面構造

以下に、我々が以前に有機積層膜を測定解析した結果の一例を説明する [9]。不溶化した高分子正孔輸送層/低分子発光層の二層積層膜の積層膜構造を評価した。使用した材料を Fig. 5 に示した。高分子正孔輸送層としては TFB を、低分子発光層材料のホスト材料 CBP またはそれを重水素化した CBP-d<sub>16</sub> を用い、発光するゲスト材料として 9wt% の Ir(ppy)<sub>3</sub> の混合物を用いた。シリコン基板上に TFB の単膜を塗布法で作製し、CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> の単膜を蒸着または塗布法で作製した。ここで、塗布で用いる溶媒は 1,4-ジオキサンとシクロペンタノンの二種を用いた。塗布後は自然乾燥させた。NR を測定した結果を Fig. 6 中にプロットした。横軸は移行運動量、縦軸は反射率の対数である。ここで、移行運

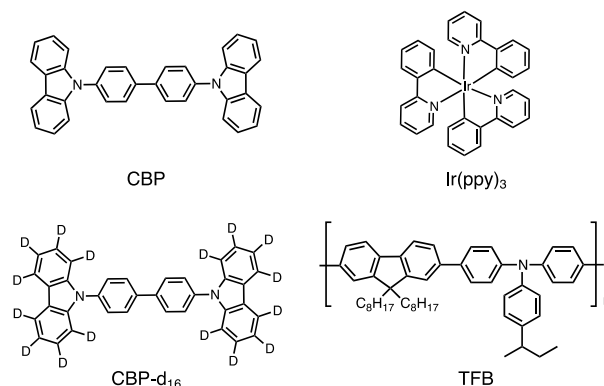


Fig. 5. The used chemical compounds. [9]

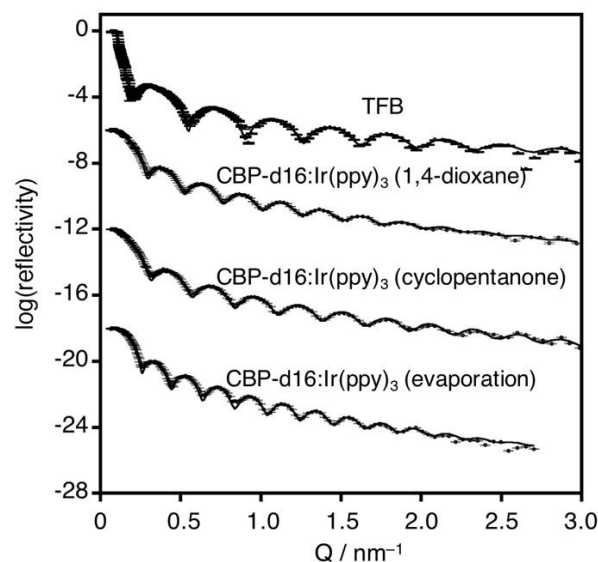


Fig. 6. Reflectivity curves of monolayer films. [9]

動量は下式のように、中性子の波長と入射角度の関数である。

$$Q = 4\pi \sin \theta / \lambda \quad \dots (4)$$

(Q: 移行運動量;  $\theta$ : 斜入射角;  $\lambda$ : 波長)

反射率は、異なる反射率曲線を見やすくするため、低移行運動量の全反射領域にそれぞれオフセットをつけて示している。解析ソフト Motofit [10,11] を用いて反射率曲線のフィッティングを行った結果を実線で示し、得られた膜構造を Fig. 7 に示した。ここで、横軸は膜厚、縦軸は SLD である。本研究では、二層間の界面密度プロファイルは全て相補誤差関数を用いて表している。単膜の SLD は、TFB が  $1.00 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ 、蒸着した CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> が  $5.00 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ 、1,4-ジオキサンで塗布したものは

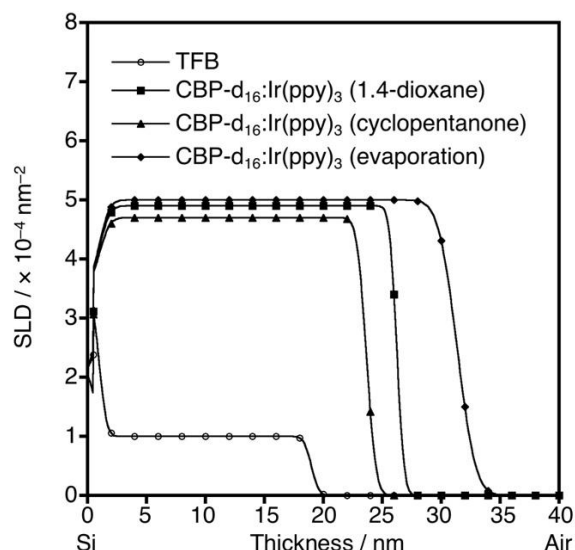


Fig. 7. SLD profiles of monolayers. [9]

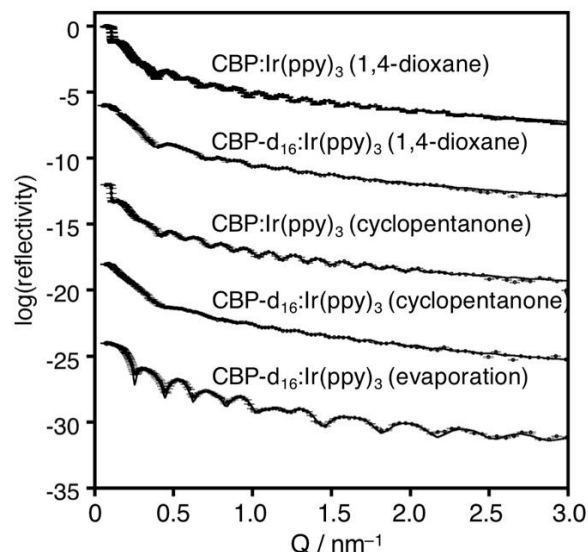


Fig. 8. Reflectivity curves of bilayer-films. [9]

$4.91 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ , シクロペンタノンで塗布したものは  $4.70 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  の値を示した. TFB は長鎖のアルキル鎖を有しており, 水素原子含有量が多く, 芳香族化合物の SLD の値としては小さい値を示した. また, 成膜法によって SLD の値に差が出ており, 蒸着法で成膜したものが一番高い SLD を示した. これは塗布法では薄膜中に溶媒が残留し, 密度が低下したためである. シクロペンタノンで成膜した方が SLD の値が小さいのは, シクロペンタノンの沸点 ( $130^\circ\text{C}$ ) が 1,4-ジオキサンの沸点 ( $101^\circ\text{C}$ ) よりも高いために, より多くの溶媒が残留したためである.

次に, TFB/(CBP or CBP- $d_{16}$ ):12wt% Ir(ppy) $_3$  の二層膜の測定を行った. CBP- $d_{16}$ :12wt% Ir(ppy) $_3$  は蒸着法または二種の溶媒を用いて塗布法で成膜した. TFB は不溶化処理を行ったため, 上層の溶媒により全く溶け出さない. CBP:12wt% Ir(ppy) $_3$  は二種の溶媒を用いて塗布法で成膜した. NR を測定し, フィッティングした結果を Fig. 8 に示した.

はじめに TFB/蒸着 CBP- $d_{16}$ :12wt% Ir(ppy) $_3$  の SLD プロファイルを TFB 単膜の結果と一緒に Fig. 9 に示した. TFB 単膜と二層膜の結果を見比べてみると, TFB の膜厚と SLD の値が同じであることがわかる. また, TFB と CBP- $d_{16}$ :12wt% Ir(ppy) $_3$  の界面は急峻であり, これらから二層は成膜時に混合していないことを示している.

次に 1,4-ジオキサンの塗布成膜した CBP:12wt% Ir(ppy) $_3$  積層膜および CBP- $d_{16}$ :12wt% Ir(ppy) $_3$  積層膜

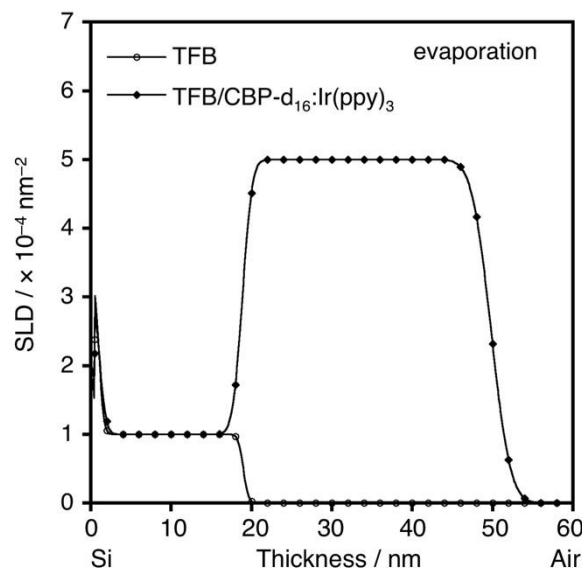


Fig. 9. SLD profile of evaporated stacked-film. [9]

の SLD プロファイルを TFB の結果と一緒に Fig. 10 に示した. 上層の CBP:12wt% Ir(ppy) $_3$  および CBP- $d_{16}$ :12wt% Ir(ppy) $_3$  の SLD はそれぞれ  $2.52 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ ,  $4.75 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  と異なる値を示した. CBP- $d_{16}$  では重水素化により, CBP よりも SLD の値が増大した. また, 蒸着法で成膜した場合は異なり, TFB 層の膜厚と SLD の値は単膜と二層膜の間で異なる値を示した. TFB 単膜の膜厚が 18.0 nm に対し, 二層膜中の TFB の膜厚は CBP:12wt% Ir(ppy) $_3$  積層膜で 24.9 nm, CBP- $d_{16}$ :12wt% Ir(ppy) $_3$  積層膜で 24.6 nm と単膜に比べて膜厚は増大していた. また,

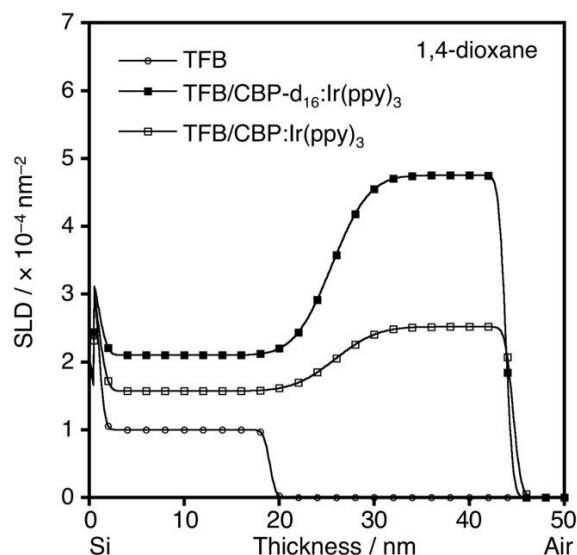


Fig. 10. SLD profile of solution-processed stacked-film from 1,4-dioxane solution. [9]

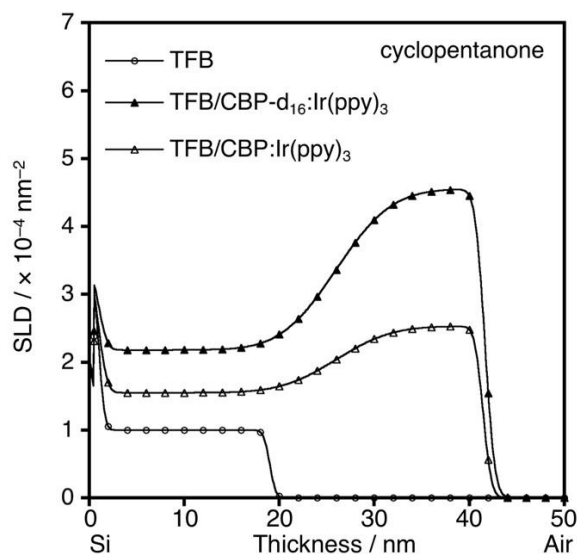


Fig. 11. SLD profile of solution-processed stacked-film from cyclopentanone solution. [9]

TFB 単膜の SLD が  $1.00 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  に対し、二層膜中の TFB の SLD は CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜で  $1.57 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ 、CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜で  $2.10 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  と単膜に比べて SLD も増大していた。

次にシクロペンタノンで塗布成膜した CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜および CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜の SLD プロファイルを TFB の結果と一緒に Fig. 11 に示した。1,4-ジオキサンの塗布成膜した場合と同様に、上層の CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> および CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> の SLD はそれぞれ  $2.53 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ 、 $4.55 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  と異なる値を示した。ま

た、二層膜中の TFB の膜厚は CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜で 25.0 nm、CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜で 25.0 nm と単膜に比べて膜厚は増大していた。また、二層膜中の TFB の SLD は CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜で  $1.55 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$ 、CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜で  $2.18 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  と単膜に比べて SLD も増大していた。

これらの結果から CBP の重水素化の有無や塗布溶媒に関わらず、塗布法で成膜した二層膜中の TFB 層の厚みは 25.0 nm 程度と一致し、TFB 単膜よりも増大した。また、塗布溶媒に関わらず、SLD の値はほぼ同じ値を示し、TFB 単膜よりも増大した。これらのことから、TFB 層は溶媒により溶解はしないが、塗布時に溶媒により膨潤して広がり、そこでできた隙間に、上層の低分子材料が拡散混合したものと考えられた。混合したまま膜が形成されたため、混合した体積分だけ膜厚が増大した。得られた積層膜構造のイメージを Fig.12 に示した。

ここで、膜厚の増加比率は  $18.0/25.0 = 0.72$  であることから、混合層中のおよそ 72% が TFB で、残りの 28% が上層の低分子材料であると計算できた。SLD に関しては、TFB よりも大きい SLD を持つ低分子材料が混合する事で、混合層の SLD は単膜のものよりも増大した。ここで体積比率から計算すると、1,4-ジオキサンの塗布した CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜の場合、混合層の SLD は、 $(1.00 \times 0.72 + 2.53 \times 0.28) \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2} = 1.43 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  となり、実測の  $1.57 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  と近い値となった。また、CBP-d<sub>16</sub>:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub> 積層膜の場合、混合層の SLD は、 $(1.00 \times 0.72 + 4.75 \times 0.28) \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2} = 2.15 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  となり、これも実測の  $2.10 \times 10^{-4} \text{ nm}^{-2}$  と近い値となった。これらはシクロペンタノンで塗布した場合であっても、同様に実測値と近い値となった。これらは、フィッティングで得た積層膜構造のモデルの確からしさを支持した。

溶媒の違いによる積層膜構造の違いは、界面の厚み（界面荒さの 3 倍）にあらわれた。1,4-ジオキサンの塗布した場合の界面厚みが 7.0 nm であったのに対し、シクロペンタノンで塗布した場合は 10.0 nm であった。この差は溶媒と TFB との間の引力相互作用の強さに起因しており、より相互作用の強いシクロペンタノンの方が界面厚みは厚くなった。相互作用が強い方が、高分子鎖が溶媒中でよりほぐれた状態となるため、CBP 層中に高分子鎖がより入り込むため、界面厚みが増大すると考えた。

#### 4. 界面構造が有機 EL 素子特性に与える影響[9]

蒸着，塗布法で成膜した界面構造の差がどのように素子特性に影響を与えるか，正孔オンリー素子を作製し，評価した．素子構造は ITO 陽極/PEDOT:PSS (40 nm)/TFB (20 nm)/CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub>(40 nm)/α-NPD (40 nm)/MoO<sub>3</sub> (5 nm)/Al (100 nm)とした．CBP:12wt% Ir(ppy)<sub>3</sub>は蒸着法または2種の溶媒を用いた塗布法で成膜した．電流密度－電圧曲線を Fig. 13 に示した．蒸着法で成膜したものに対し，塗布法で成膜したものは高電圧となり，そのうちシクロペンタノンで成膜したものがより高電圧となった．すなわち，より界面が混合したものが高電圧となった．高電圧化の原因は，イオン化ポテンシャルが TFB は 5.4 eV であるのに対し，混合した Ir(ppy)<sub>3</sub> は 5.2 eV と浅いために混合層中で正孔トラップとして働いたためである．CBP のイオン化ポテンシャルは 6.0 eV と深いために正孔トラップとしては働かない．

#### 5. 結び

NR を用いて，塗布型有機 EL 素子の積層構造の精密評価に成功した．塗布積層時の材料の拡散挙動を明らかにした．積層膜構造が有機 EL 素子の性能に大きく影響を与えている事を明らかにした．本論文では紹介できなかったが，他にも NR を用いて積層膜構造の評価を行い，成果を挙げてきた[12-14]．NR は普段，耳慣れない中性子という極小の粒子を使って，測定解析を行う．中性子と聞いただけで，難しい物理の話の想い起こし，敬遠してしまう人も多いと思う．しかし，実際は測定・解析に関して，施設の装置担当者の方が丁寧に教えてくれるため，意外と簡単(?)に実験を行う事ができる．筆者自身は内心は不安ながらも，“習うより慣れる”精神で測定を行ったら，思いの外うまくいった．この機会に中性子ユーザーが増える事を期待している．

#### 6. 参考文献

- [1] L. Zhang, K. Lloyd, A. Fennimore, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **231** (2019) 88.
- [2] S. Lee, J.-H. Kang, D. Ahn, H. K. Shon, T. G. Lee, S. Park, M. C. Suh, Y. Park, *Adv. Mater. Interfaces* **6** (2019) 1801627.
- [3] S. Ohisa, K. Kasuga, K. Endo, Y.-J. Pu, T. Chiba, J. Kido, *Org. Electron.* **63**, 98 (2018).
- [4] 藤原 裕之, *分光エリブソメトリー*, 丸善出版 (2011).

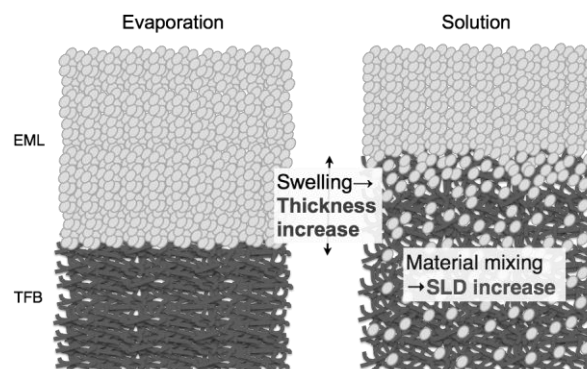


Fig. 12. Schematic of CBP:Ir(ppy)<sub>3</sub> EML evaporated on TFB film and CBP:Ir(ppy)<sub>3</sub> EML spin-coated on TFB film. [9]

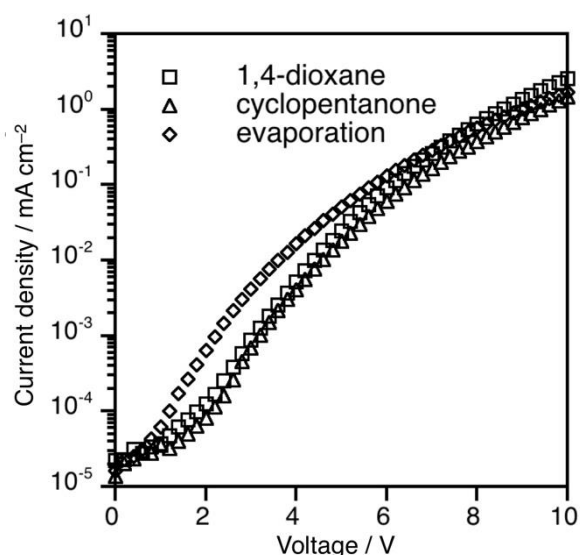


Fig. 13. Current density–voltage plots of hole-only devices. [9]

- [5] R.-J. Roe, *Methods of X-Ray and Neutron Scattering in Polymer Science*, Oxford University Press (2000).
- [6] Y.-J. Lee, H. Lee, Y. Byun, S. Song, J.-E. Kim, D. Eom, W. Cha, S.-S. Park, J. Kim, H. Kim, *Thin Solid Films* **515**, 5674 (2007).
- [7] N. L. Yamada, N. Torikai, K. Mitamura, H. Sagehashi, S. Sato, H. Seto, T. Sugita, S. Goko, M. Furusaka, T. Oda, M. Hino, T. Fujiwara, H. Takahashi, A. Takahara, *Euro. Phys. J. Plus* **108**, 126 (2011).
- [8] K. Mitamura, N. L. Yamada, H. Sagehashi, N. Torikai, H. Arita, M. Terada, M. Kobayashi, S. Sato, H. Seto, S. Goko, M. Furusaka, T. Oda, M. Hino, H. Jinnai, A. Takahara, *Polym. J.* **45**, 100 (2013).
- [9] S. Ohisa, G. Matsuba, N. L. Yamada, Y.-J. Pu, H. Sasabe, J. Kido, *Adv. Mater. Interfaces* **1**, 1400097 (2014).

- [10] A. Nelson, *J. Phys: Conf. Ser.* **251**, 012094 (2010).  
[11] A. Nelson, *J. Appl. Crystallogr* **39**, 273 (2006).  
[12] S. Ohisa, Y.-J. Pu, N. L. Yamada, G. Matsuba, J. Kido, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **7**, 20779 (2015).  
[13] S. Ohisa, Y.-J. Pu, N. L. Yamada, G. Matsuba, J. Kido, *Nanoscale* **9**, 25 (2017).  
[14] S. Ohisa, Y.-J. Pu, G. Matsuba, N. L. Yamada, J. Kido, *Hamon* **28**, 183 (2018).

#### 査読コメント, 質疑応答

##### 査読者 1 塩沢一成 (三井化学分析センター)

内容はそのまま掲載可と考えます. 細かいこととは思いますが, 単位に関するコメントについてご検討ください.

##### [査読者 1-1]

長さの単位として SI 単位系 (nm, fm) と非 SI 単位系 (Å) が混在しています. 長さの単位は SI 単位系への統一が望ましいと考えます.

##### [著者]

コメントいただきありがとうございます. 単位を SI 単位系へ統一しました.

##### [査読者 1-2]

物理量は「無名の数×単位」でグラフ軸にふってある数は「無名の数×単位」を単位で割った無名の数, つまり (無名の数×単位) / 単位=無名の数の意味となります. したがって, 例えば Fig.12 の横軸では Voltage (V) ではなく Voltage/V が正しい書き方となります. グラフ軸の単位の表記はカッコではなくスラッシュに改めることをご検討ください.

##### [著者]

コメントいただきありがとうございます. 単位の表記をカッコ書きでなく, スラッシュに改めました.

##### 査読者 2 匿名

(査読内容非公開)