

ルブレ単結晶のバンド構造の GW 近似による理論的研究

Theoretical investigation on the band structures of rubrene single crystal

within GW approximation

琉球大理¹、阪大院工²、Paderborn Univ.³ ○柳澤 将^{1,2}, 森川良忠², Arno Schindlmayr³

Univ. of the Ryukyus¹, Osaka Univ.², Paderborn Univ.³,

°Susumu Yanagisawa¹, Yoshitada Morikawa², Arno Schindlmayr³

E-mail: shou@phys.u-ryukyu.ac.jp

<緒言> 次世代の電子材料として研究・開発が進められている有機半導体では、有機分子に局在するパイ電子雲の緩い結合のため、キャリアが分子間を飛び移るホッピング伝導が典型的で、キャリア移動度は無機半導体で典型的なバンド伝導より著しく低いと考えられてきた。しかし近年、ルブレ単結晶で無機半導体に匹敵する正孔移動度や、キャリア伝導での強い異方性が報告された。高移動度や異方性の起源として、特定の結晶軸方向に非局在化したパイ電子雲を介するバンド伝導の寄与が提案され、それを裏付ける実験・理論研究の報告も増えている。しかしその一方、典型的ホッピング伝導や、振電相互作用によるポーラロン伝導のモデルで高移動度を説明する理論研究等もあり、伝導機構について論争が続いている。

本研究では、固体中の準粒子効果を記述する多体摂動論(GW 近似)をルブレ単結晶に適用し、バンド理論の範囲でさらなる知見を得ることを試みた。計算には GW space-time 法[1]を用いた。

<結果と考察> GW 近似による Γ 点直接バンドギャップは 2.35 eV で、密度汎関数理論(DFT)計算の 1.13 eV より大きく増加した。最近の角度依存紫外光電子分光の実験で Γ -Y 方向の最高占有バンド幅が 0.4 eV、 Γ -X 方向にはほとんど分散がないと報告された[2]が、以前の研究[3]と同様、本研究

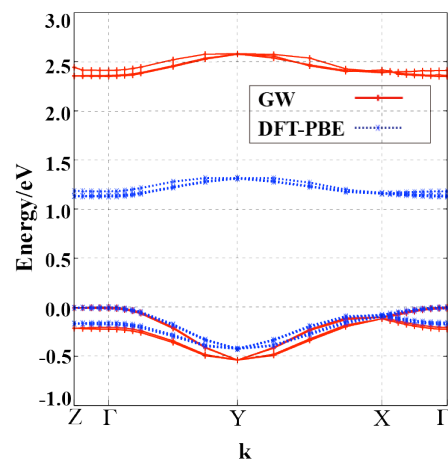


図 ルブレ単結晶のバンド構造(DFT, GW)。ガンマ点での HOMO エネルギーをゼロ基準として示している。

でも DFT 法はその結果を定性的に再現した。

DFT 法の 0 次解に対し、GW 近似で準粒子効果を取り込むと Γ -Y 方向の最高占有バンド幅が 0.12 eV 増加した。有効質量は DFT で 1.00、GW 近似で 0.89(対電子静止質量比)と見積もられ、実験値(0.65 ± 0.1 [2], 0.8 ± 0.1 [4])により近づいた。

GW 近似によるバンド幅の増加は、分子結晶などサイト間で波動関数の混成の小さい物質で見られ、電子状態の局在性や、同バンド内の状態の局在性の違いに由来する[5]。バンド幅の変化に対応する状態の局在性については、当日報告する。

参考文献: [1] M. M. Rieger *et al.*, Comput. Phys. Commun. **117**, 211 (1999).

[2] S. Machida *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 156401 (2010).

[3] D. A. da Silva Filho, E.-G. Kim, and J.-L. Bredas, Adv. Mater. **17**, 1072 (2005). [4] Z. Q. Li *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 016403 (2007). [5] E. L. Shirley, Phys. Rev. B **58**, 9579 (1998).