

第一原理に基づく有機半導体の電子伝導シミュレーション ～電子の遍歴性と局在性が紡ぐ伝導物性～

Charge Transport Simulations of Organic Semiconductors Based on First-Principles Calculations -Transport properties by localized and itinerant electrons-

筑波大数物 ○石井 宏幸, 小林 伸彦

Univ. of Tsukuba, ○Hiroyuki Ishii, Nobuhiko Kobayashi

E-mail: ishii@bk.tsukuba.ac.jp

分子性結晶の中を電子がどのように流れるか？という問題は学術的興味だけでなく、新しい高性能有機半導体の合成の観点からも重要である。特に有機半導体の電子伝導物性は、その構成分子やパッキング構造に依存して大きく変化し、温度上昇とともに移動度が減少する材料もあれば逆に増加する材料もある。前者は波として空間的に拡がった遍歴電子による「バンド伝導」、後者は局在電子による「ポッピング伝導」の典型的な特徴であり、実際の有機半導体は2つの中間的性質を示す。この中間領域を記述する理論は確立されておらず、数値計算が有力な手段となる。

私達はこれまで、遍歴電子と局在電子の両方を扱える数値計算手法である「時間依存波束拡散法」を開発してきた[1]。これは量子論に基づいて、実空間における電子波束の時間発展計算から移動度などを得る方法で、計算法の高速化により最大で約1億個の分子からなるバルク分子性結晶を扱える。さらに材料固有の物性パラメータは全て密度汎関数法から第一原理的に導出可能なので計算結果を実験結果と定量的に比較できる。今回、本手法をペンタセンやBTBT系、DNTT系などの低分子系有機半導体に適用した。有機半導体中の電子は分子振動と強く相互作用する。電子の運動よりも遅い分子間振動は、動的な構造乱れを引き起こし、電子のアンダーソン局在を引き起こす。一方、電子よりも速い分子内振動はポーラロンを生成し、実効的に分子間の電子の飛び移り積分値を減少させ、バンド幅狭小化効果を引き起こす。図に高移動度で知られるC₈-BTBTとペンタセンの移動度の温度依存性の計算結果を示す。比較のために、変形ポテンシャル近似を用いたバンド伝導理論によるバンド移動度(破線)と、マーカス理論を用いたホッピング移動度(点線)も示す。本計算法で得られた結果は、実験と同様に、バンド移動度とホッピング移動度の中間の値を示すことが分かる。講演では本計算法や、複数の代表的有機半導体への適用例、その伝導機構について詳細に議論する。

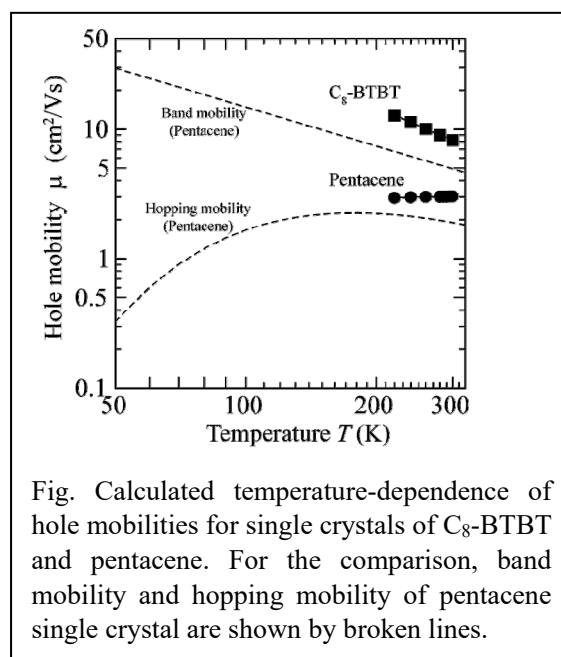


Fig. Calculated temperature-dependence of hole mobilities for single crystals of C₈-BTBT and pentacene. For the comparison, band mobility and hopping mobility of pentacene single crystal are shown by broken lines.

[1] H. Ishii, *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 245206 (2012); **90**, 155458 (2014); **95**, 035433 (2017).