多階層計算によるホスト–ゲスト系有機 EL 発光層の電荷輸送解析

Multiscale simulation of charge transport in host–guest-based emission layer of organic light-emitting diodes

°森脇 千騎，久保 勝誠，梶 弘典（京大化研）
°Kazuki Moriwaki, Shosei Kubo, Hironori Kaji (ICR, Kyoto Univ.)
E-mail: kaji@scl.kyoto-u.ac.jp

【緒言】有機非晶膜中における電荷輸送現象を解明することは、非晶系有機半導体デバイスの特性を理解する上で非常に重要である。非晶系における電荷輸送現象を説明するモデルとして Gaussian disorder model [1]がよく知られている。しかし、このモデルは分子を質点として扱っており、実在の分子構造またそれに基づくフロンティア軌道を反映し得ない。我々はこれまでに、量子化学計算、分子動力学(MD)法、動的 Monte Carlo (kMC)法を組み合わせたホッピング伝導機構に基づく多階層計算により、実在分子からなる有機非晶膜中における電荷輸送現象を解析し、一部の分子種については実験的に得られた移動度を可変パラメーターを用いることなく定量的に再現することに成功している[2, 3]。この多階層計算の流れを Fig. 1 に示す。本研究では、電荷輸送材料として知られる CBP および発光材料である DACT-II [4]をそれぞれホストおよびゲストとした混合非晶系に対して多階層電荷輸送シミュレーションを行い、ドープ濃度などが系の電荷輸送特性に与える影響について検討した。

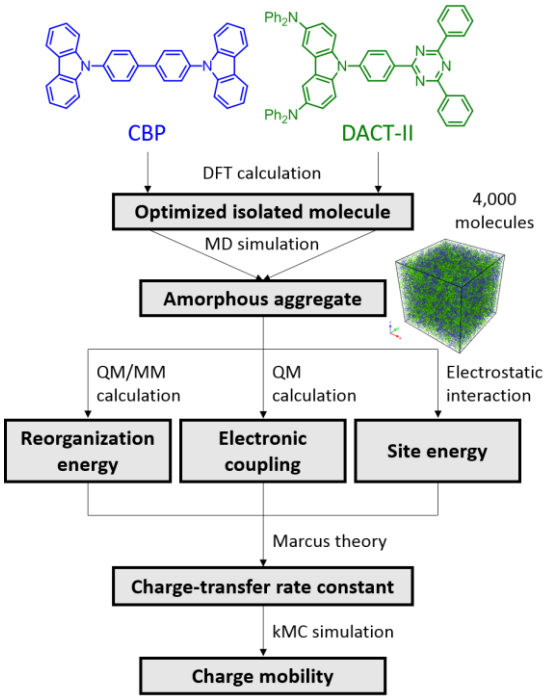

Fig. 1. Flowchart of multiscale charge transport simulation.

【実験および考察】密度汎関数法(DFT, B3LYP/6-31G*)により孤立系における CBP および DACT-II 分子の構造最適化を行った。これらを初期構造として、一部修正した Dreiding 力場を用いた MD 計算により、合計 4000 分子からなる X mol% DACT-II:CBP 非晶凝集体を得た。この非晶凝集系に対し、拡張 Hückel 法により分子間の電荷移動積分を、QM/MM 法(B3LYP/6-31G*:Dreiding)により電荷移動に伴う再配列エネルギーをそれぞれ計算した。また、非晶中の分子それぞれに対し、周辺分子から受ける静電相互作用も考慮することにより電荷ホッピングサイトのエネルギー分布を算出した。これらの結果に基づき、Marcus 理論に従って電荷移動速度定数を算出し、kMC 法による電荷輸送シミュレーションを行った。この際、DACT-II のサイトエネルギーは CBP より Δ だけ低く分布していると仮定した。Δ を 0, 0.2, 0.6 eV としたときの正孔移動度の DACT-II 濃度依存を Fig. 2 に示す。DACT-II neat 膜(X = 100)における正孔の移動度は CBP neat 膜(X = 0)より 2 桁ほど小さく、Δ = 0 eV の場合は X の増加に伴い移動度が指数関数的に低下した。Δ = 0.2 eV の場合、X = 30 mol%近くで移動度が極小をとり、それ以上の濃度でゆるやかに上昇した。Δ = 0.6 eV ではこの傾向がさらに顕著であり、X = 10 mol%付近で著しく低い移動度を示した。また、電子輸送に対しても同様の挙動を示した。当日、さらに詳細を報告する。

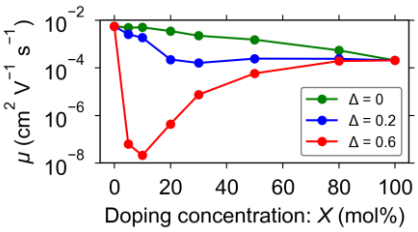

Fig. 2. Calculated hole mobility μ versus X at applied electric field of 1.0 MV cm^{-1}.

【謝辞】本研究は、JSPS 科研費 17H01231 の助成を受けた。また、京大化研のスーパーコンピュータシステムを利用した。

[1] H. Bässler, *Phys. Status Solidi B* **175**, 15 (1986). [2] H. Uratani, et al., *Sci. Rep.* **6**, 39128 (2016). [3] S. Kubo and H. Kaji, *Sci. Rep.* **8**, 13462 (2018). [4] H. Kaji, et al., *Nat. Commun.* **6**, 8476 (2015).

© 2019年 応用物理学会