

量子化学計算による有機アモルファス半導体固体の電子物性予測に関する研究 Prediction of electronic properties of amorphous organic semiconducting solids using quantum chemical calculation

○藤邨 颯^{1, 2}, 永瀬 隆^{1, 2}, 小林 隆史^{1, 2}, 麻田 俊雄^{1, 2}, 内藤 裕義^{1, 2}

(1. 大阪府立大, 2. 大阪府立大分子エレクトロニックデバイス研)

○H. Fujimura¹, T. Nagase^{1, 2}, T. Kobayashi^{1, 2}, T. Asada^{1, 2}, H. Naito^{1, 2}

(1. Osaka Pref. Univ., 2. RIMED)

E-mail: hayate.fujimura.oe@pe.osakafu-u.ac.jp

1. はじめに

無機結晶固体では、結晶構造を同定しバンド構造を描くことで光物性、電子物性を予測することができた。一方、アモルファス固体では、無機、有機を問わず、結晶固体のような物性予測は困難であったが、計算機的能力向上により、有機アモルファス固体の構築、電荷移動度の算出が可能[1]になり、特に電荷移動度の電界依存性まで定量的に再現できる水準に達している[2]。このため、多種の有機分子の凝集体の構造の妥当性を吟味し、電子物性を予測することは、効率的な物質設計、デバイス設計において極めて重要である。

本研究ではこの一環として、分子力学法 (MM)、量子化学計算 (QM)、分子動力学法 (MD)[1]を用いて、代表的な正孔輸送材料である N,N'-diphenylN,N'-bis(3-methylphenyl)-1,1-biphenyl4,4'-diamine (TPD)のアモルファス構造を構築し、分子間相互作用を考慮した軌道エネルギーを計算した。これより、価電子帯の状態密度分布を計算し、実験値と比較することで電子物性予測を試みた。

2. 計算方法

最初に、517分子の構造最適化された TPD から構成される基本セルを作製した。この基本セルにおいて、定圧 (1 atm) 下で 0 K から 1000 K まで 300 ps で昇温する過程を含む、計 500 ps の MM-MD シミュレーションを行った。その後、定圧 (1 atm) 下で 1000 K から 300 K まで 300 ps で降温する過程を含む、計 500 ps の MM-MD シミュレーションを行った。上記の MM-MD シミュレーションにより得られたアモルファス構造で QM 計算を行った。Fig. 1 に初期構造および TPD の化学構造を示す。QM 計算には cam-B3LYP/6-31G(d)法を用いて、軌道エネルギー、および、TPD アモルファス構造の状態密度分布を計算した。なお分子間のファン・デル・ワールス相互作用は近距離力であることから、ここでは最近接原子間距離が 2.5 Å 以内に存在する分子対の軌道エネルギーを計算した。

3. 結果

計算した状態密度分布と TPD の紫外光電子分光 (UPS) スペクトル[3]とを比較した結果を Fig. 2 に示す。UPS で見出された状態密度の構造を再現できていることがわかる。

TPD のような正孔輸送性分子では、電子物性として、正孔輸送があり、正孔輸送は価電子帯の裾準位分布に支配される。Fig. 3 に価電子帯の裾準位分布を示す。裾準位分布に Gauss 分布を fit したところ、その標準偏差 σ は 75.7 meV であった。この値は TPD のドリフト移動度の温度依存性に Gaussian Disorder Model (GDM) を用いて算出した σ の実験値 76.4 meV [4] とほぼ一致した。以上の結果は、有機アモルファス半導体の電子物性予測の可能性を示したもので、当日は他の正孔輸送材料についても報告する予定である。

・謝辞 本研究の一部は、科学研究費補助金 ((A)JP17H01265、(B)JP19H02599 and (B)JP20H02716) の助成を受けた。

・参考文献 [1] T. Asada, *et al.*, *Org. Electron.* **53**, 142 (2018).

[2] S. Kubo, *et al.*, *Scientific Reports* **8**:13462 (2018)

[3] J. Cornil *et al.*, *J. Phys. Chem. A* 2001, **105**, 5206 – 5211

[4] H. H. Fong *et al.*, *Chem. Phys. Lett.* **353** (2002) 407-413

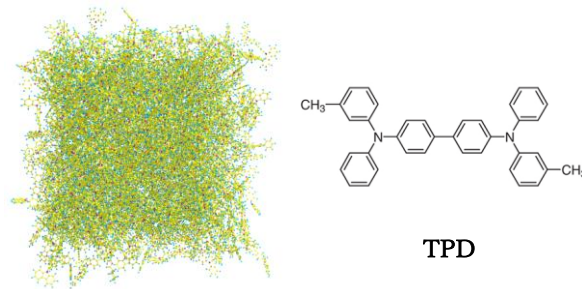


Fig. 1 Structure of amorphous solid of TPD and chemical structure of TPD

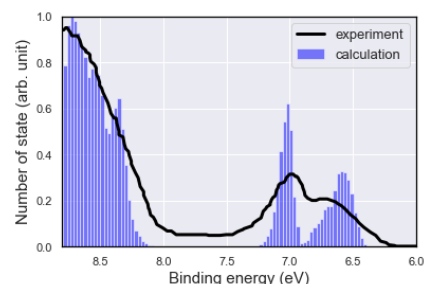


Fig. 2 UPS spectra of TPD thin film and calculated density of states of TPD cluster.

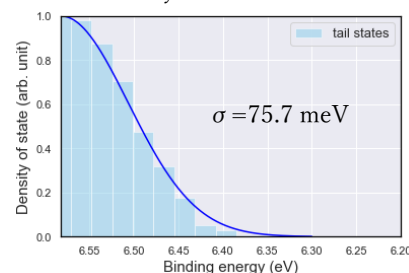


Fig. 3 Calculated tale-state distribution of TPD cluster.