量子化学計算による有機アモルファス半導体の電子物性予測 –正孔輸送材料–

Prediction of electronic properties of amorphous organic semiconductor using quantum chemical calculation - hole transport materials -

○藤邨 颯[1]，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. Fujimura[1], 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

我々は、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である N,N'-bis(3-methylphenyl)-N,N'-diphenyl benzidine（TPD）のモデル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計算結果を用いることで電子物性（正孔移動度、価電子帯の状態密度、価電子帯の裾準位分布、価電子帯の有効状態密度）予測ができることを示した[2]。有機アモルファス半導体の電子物性の予測を行うことで、効率的な材料設計、デバイス設計に貢献できる。本報告では、上記手法により Fig. 1 に示す正孔輸送材料についても電子物性予測が可能であることを示す。

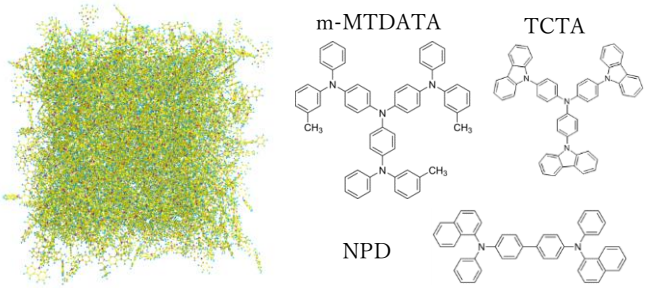

Fig. 1 Structure of amorphous solid and chemical structures of m-MTDATA, NPD and TCTA.

2. 計算方法

実験結果と比較できる正孔輸送材料として、4,4',4''-Tris [(3methylphenyl)phenylamino]triphenylamine (m-MTDATA)、N,N'-Di(1-naphthyl)-N,N'-diphenyl-(1,1'-biphenyl)-4,4'-diamine（NPD）、Tris(4-carbazoyl-9-ylphenyl)amine (TCTA)を用いた。それぞれ 500 分子程度の構造最適化された分子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 で冷却する過程を含む、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 に基本セルの初期構造および正孔輸送材料の化学構造を示す。QM 計算には cam-B3LYP/6-31G(d)レベルを用いて、軌道エネルギー、および、アモルファス構造の状態密度分布を計算した。分子間のファン・デル・ワールス相互作用は一般に近距離力相互作用であることから、ここでは最近接原子間距離が 2.5 Å 以内に存在するすべての分子対の軌道エネルギーを計算した。

3. 結果

m-MTDATA を用いて計算した価電子帯の状態密度分布と m-MTDATA 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 に例示する。UPS で測定された状態密度の構造を再現できていることがわかる。ここで価電子帯の状態密度分布の裾準位分布に Gauss 分布を一致させたところ、その標準偏差 σ は 0.11 eV であった。この値は m-MTDATA 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 0.112 eV [4]とほぼ一致した。他の正孔輸送材料においても同等の結果が得られた。

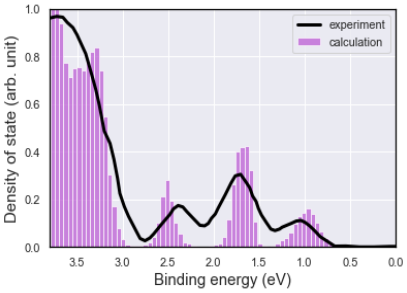

Fig. 2 UPS spectra of m-MTDATA thin film and calculated density of states of m-MTDATA cluster.

価電子帯の状態密度分布から価電子帯の有効状態密度を算出したところ、10^{18} cm^{-3} 程度の値が得られた。以上の結果から、上述の計算手法は正孔輸送性のアモルファス有機半導体の電子物性予測に有効であることわかった。

・**謝辞** 本研究の一部は、科学研究費補助金（(B) JP19H02599, (B) JP20H02716 and JP 20K21007）の助成を受けた。

・**参考文献** [1] T. Asada, *et al.*, Org. Electron. **53**, 142 (2018). [2] 藤邨他：第 81 回秋応物 10p-Z25-15 (2020). [3] T. W. Ng, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **100**, 113301 (2012). [4] S. W. Tsang, *et al.*, J. Appl. Phys. **99**, 013706 (2006).

© 2021年 応用物理学会