

ペンタセン膜中の金属原子クラスターの形態と安定性： 第一原理計算による検討

First-principles study on structure & stability of metal-atom clusters in pentacene films

千葉大理¹, 芝浦工大² ◯(D2) 渡邊 駿汰¹, 川端 康平¹, 富田 陽子², 中山 隆史¹

Chiba Univ.¹, Shibaura Inst. Tech.²

◯Shunta Watanabe¹, Kouhei Kawabata¹, Yoko Tomita², Takashi Nakayama¹

E-mail: adda1810@chiba-u.jp

有機分子固体は、軽量・低コスト・フレキシブル等のメリットを持ち、様々な光・電子デバイスへのその応用が期待される。しかし、金属原子等の不純物は基板中に侵入しやすく、不純物はリーク電流等のデバイス劣化を引き起こす[1,2]。これまで我々のグループは、有機固体中での金属原子の侵入・拡散過程[3]や、金属原子間相互作用に基づき金属原子クラスターの形成条件等[4]を議論してきた。しかし、金属原子クラスターの安定性を具体的に調べた研究はない。そこで今回は、ペンタセン膜を対象に、第一原理計算 (VASP) を用いて、膜中の金属原子クラスターの形態とその安定性を具体的に検討した。計算には、ペンタセン分子 $2 \times 2 \times 2$ のバルク単位胞を用い、この中に種々な数の Au, Al 原子を挿入し、その安定な配置を探索した

Fig.1 に、膜中で孤立していた金属原子が、挿入図のように分子間でクラスターを作った時の1原子当たりの安定化エネルギーを、クラスター内の原子数の関数として示す。Au はどんな数でも原子が合体して分子間に位置して安定化するが、Al は分散して分布している方が安定である。これは、Au 原子間には金属結合による強い引力が働くが、Al は分子と結合してイオン化するため、Al 原子間にはクーロン斥力が働くためである[4]。一方、Au が8原子以上固まるとエネルギーがほぼ一定になっているが、これは本研究の単位胞では分子間に一様なバルク金属層膜が発生してしまうためである。

実際の結晶では、原子数が増えていきなり一様な金属層が発生することは考えられない。そこで次に、金属原子数の増加に伴って分子空孔が発生し、そこを起点にクラスターが大きくなる過程を検討した。Fig.2 に、分子空孔に金属原子クラスターができた場合と分子間に金属膜クラスターができた場合の1金属原子当たりのエネルギー差を、クラスター内の原子数の関数として示した (Al はクラスターを形成しないので参考データである)。Au 原子は、4原子までは分子間で固まる方が安定であるが、これは分子空孔を作るにはエネルギー損があるためである。一方、4原子を超えると、金属原子間で凝集した方が安定なため、分子空孔を発生させてそこに金属原子クラスターを発生させる。さらに金属原子数が増えると、分子空孔をさらに大きくしてクラスターは大きくなると考えられる。講演では、これら結果の詳細を議論する。

[1] T. Sawabe et al. Appl. Phys. A 95, 225 (2009). [2] W. Qin et al. Microele. Eng, 162, 96 (2016). [3] S. Watanabe et al. Jpn. J. Appl. Phys. 58, SIIB28 (2019). [4] Y. Tomita et al. J. Electr. Mater. 46, 3927 (2017).

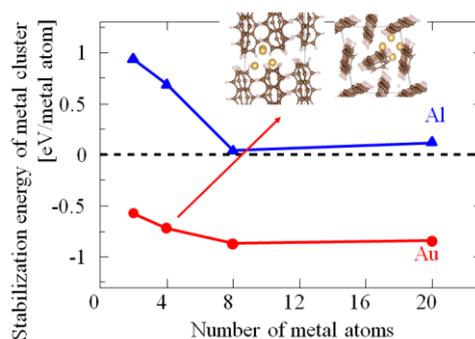


Fig.1 金属原子クラスターの安定化エネルギーの原子数依存性。

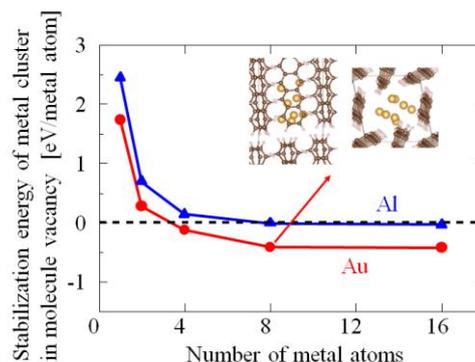


Fig.2 分子空孔内の金属原子クラスターの安定化エネルギーの原子数依存性。