

マルチスケールシミュレーションを用いた有機非晶膜における電荷トラップの分子レベル解析
Molecular-level analysis of charge traps in an organic amorphous film by multiscale simulation

京都大学 化学研究所 分子材料化学研究領域 梶 弘典

研究成果概要

有機 EL 素子は電荷輸送層、発光層など薄膜を積層させた構造を持ち、両電極から注入されたホールと電子が再結合することにより発光する。そのため素子における電荷輸送に関する知見は重要であり、これまでに多くの研究がなされてきた。当研究室のグループでもこれまでに、量子化学計算・分子動力学計算・モンテカルロ計算を組み合わせたマルチスケールシミュレーション[1, 2]により、実験的パラメータを用いることなく、CBP (図 1) neat 膜におけるホールおよび電子移動度を定量的に予測することに成功してきた[2]。本研究では、マルチスケールシミュレーションを用いて、CBP neat 膜における電荷輸送の詳細、特に、電荷移動度の分布と電荷トラップに関して解析を行った。その結果、サイトエネルギー差に起因するトラップ(diagonal trap, DT)と構造分布に起因するトラップ(off-diagonal trap, ODT)、また、電荷が印加電界に逆らってホップするトラップ(back hopping trap, BHT)の 3 種の存在が明らかとなった。

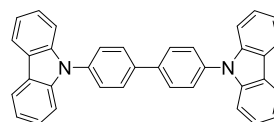


Fig. 1. Molecular structure of CBP.

シミュレーションは従来の手法[2]に基づいて行った。計算は京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムに実装されている量子化学計算ソフトウェア Gaussian16、古典分子動力学計算プログラム LAMMPS に加え、Python や C++ で作成した自作スクリプトにより実行した。DFT 計算(B3LYP/6-31G(d))により構造最適化した CBP 分子を初期構造とし、CBP neat 薄膜を模した 4,000 分子からなる非晶系を分子動力学(MD)シミュレーションにより作製した。得られた非晶凝集体内の分子あるいは分子ペアに対し、サイトエネルギー、電子カップリング、再配列エネルギーを量子化学計算により算出した。計算により得られた値から電界強度 $1,000 \text{ V}^{1/2} \text{ cm}^{-1/2}$ (今回、100 nm の電荷輸送シミュレーションを行ったので、10 V の印加に相当) の条件における、各サイトペア間における電荷移動速度定数を Marcus 理論に基づき算出した。それぞれの速度定数に基づいた動的モンテカルロ(kMC)シミュレーションにより、電荷移動度および電荷の軌跡を得た。

計算により得られたホール移動度 μ_h の平均値は $1.2 \times 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ であったが、最大値および最小値はそれぞれ 8.5×10^{-3} および $4.6 \times 10^{-5} \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ と、2 桁におよぶ広い分布をしていた。この移動度の分布の原因を明らかにするため、最速と最遅の電荷に対し、輸送時間とホッピング回数を輸送距離に対してプロットした(図 2)。最速の電荷は 100 nm の距離をほぼ一定の速度で進んでいることが図 2a よりわかる。一方、最遅の電荷は、ほとんどの部分で最速電荷に匹敵する速度で移動している一方、ある位置において大幅に速度を落としたり、また、ある位置で頻繁にホッピングを繰り返したりしていることが明らかとなった(図 2b)。さらに詳細な解析から、前者は DT や BHT に起因しており、後者は ODT に起因していることが明らかとなった。

【文献】

- [1] F. Suzuki et al., J. Mater. Chem. C 3, 5549 (2015).
- [2] S. Kubo and H. Kaji, Sci. Rep. 8, 13462 (2018).

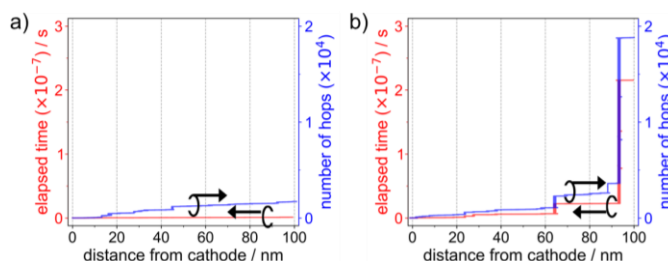


Fig. 2. Dependence of elapsed time (red) and number of hops (blue) on the 100-nm travel for the fastest (a) and the slowest (b) holes.