

マルチスケールシミュレーションによるドーパ系有機 EL 発光層の電荷輸送解析  
 Analysis of charge transport in a doped OLED emitter layer 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 デバイスの特性を理解するうえで電荷輸送の理論的研究は重要であり、これまでに多くの研究報告がなされてきた。本研究では、ホスト(H)-ゲスト(G)系からなる有機 EL 素子の発光層中での電荷輸送について、マルチスケールシミュレーションに基づいた詳細な解析を行った。

マルチスケールシミュレーションは従来の手法[1,2]に基づいて行った。発光層を構成するホスト分子には CBP を、ゲスト分子には DACT-II [3]を用いた(Fig. 1)。これらの分子の構造最適化を DFT 計算により行ったのち、それらを初期構造として、合計 4,000 分子からなる非晶凝集体を分子動力学法により作製した。非晶構造中での各種分子ペアに対して、電子カップリング、再配列エネルギー、分子軌道準位(ホッピングサイトエネルギー)を計算し、Marcus 理論により分子ペア間での正孔および電子ホッピングの速度定数を算出した。これらの計算は、通常のコンピュータで処理するには計算コストが高い。そこで、本研究では、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、Python や C++を使用することで、DFT 計算および電子カップリング、再配列エネルギーを実用的な計算時間の範囲内で求めることに成功した。算出した速度定数に基づき、1.0 MV cm<sup>-1</sup> の電界強度下、膜厚 100 nm に対する電荷輸送シミュレーションを動的モンテカルロ法により行った。種々のドーパ濃度でのシミュレーションを行ったが、ドーパ濃度 5 mol% (8.1 wt%)における電子輸送に対し、特に詳細な解析を行った。

Table 1 に、一つの電子が 100 nm 移動する間のホッピング回数  $n$  および 1 回のホッピングに要した平均所要時間  $\tau$  の計算値を示す。また、ホスト分子からホスト分子へ(H→H)、ホスト分子からゲスト分子へ(H→G)、ゲスト分子からホスト分子へ(G→H)、さらにゲスト分子からゲスト分子へ(G→G)、電子がホッピングした場合のそれぞれの寄与もあわせて示す。 $\Delta x$ は、電子移動距離に対するそれぞれの寄与を示している。この表から、H→H ホッピングに対してはホッピング回数が少なく所要時間も短いにもかかわらず、100 nm 中 73 nm と、ほとんどの電子輸送を担っていることがわかる。H→G および G→H ホッピングは同程度の  $n$  を示した一方で、 $\tau$  は大きく異なっている。これは、H の LUMO が G よりも高くなっていることに由来している(今回の系ではそのエネルギー差は 0.6 eV)。また、このエネルギー差のために一度 G に電子が入ると H に抜け出すことが困難となり、G→G 間での著しい回数のホッピングを引き起こす要因となっている。G→G 間では、比較的近い分子間で電子ホッピングが繰り返される“round-trip” [1]が行われていることが示唆される。電荷輸送に要する時間は  $n \times \tau$  で決まることから、今回のドーパ系の場合、G→H および G→G ホッピングが電子移動度を引き下げていることも明らかとなった。

## 【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).  
 [3] H. Kaji *et al.*, *Nat. Commun.* **6**, 8476 (2015).

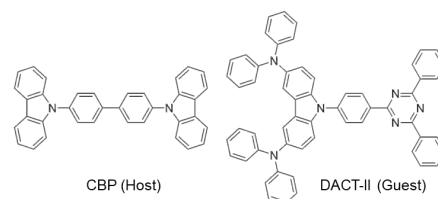


Fig. 1. Molecular structures of CBP and DACT-II.

Table 1. Electron transfer distance ( $\Delta x$ ), number of hoppings ( $n$ ), and average time per each hopping ( $\tau$ ) for 5 mol% DACT-II:CBP.

| Hopping | $\Delta x$ / nm    | $n$               | $\tau$ / s            |
|---------|--------------------|-------------------|-----------------------|
| Total   | 100                | $1.7 \times 10^9$ | $1.4 \times 10^{-8}$  |
| H→H     | 73                 | $1.5 \times 10^3$ | $1.6 \times 10^{-11}$ |
| H→G     | $4.4 \times 10^2$  | $3.4 \times 10^3$ | $1.0 \times 10^{-12}$ |
| G→H     | $-4.2 \times 10^2$ | $3.4 \times 10^3$ | $6.2 \times 10^{-3}$  |
| G→G     | 11                 | $1.7 \times 10^9$ | $1.8 \times 10^{-9}$  |