

Marcus 理論及び Gaussian Disorder Model に基づいた

高性能有機半導体の設計

近年、有機半導体の移動度は $10 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 以上とアモルファスシリコンを超えるような物質も見出されています。しかし、どのような分子構造であればどのような移動度を示すのかということに関しては、経験則があるだけで分子構造と移動度との関係を明らかにした研究はありません。ここでは、これを解明しようと研究を進めています。

キャリア移動度にはバンド伝導とホッピング伝導とがありますが、本研究では分子配列の影響を除き分子自身の性能を見出すため、構造をアモルファスとし、ホッピング伝導となるようにします。ホッピング伝導の場合の移動度 μ は Marcus の電子移動理論から以下の式で表されることが知られています。

$$\mu = \frac{qd^2}{k_B T} k_{ET} \quad k_{ET} = V^2 \sqrt{\frac{\pi}{\lambda k_B T (h/2\pi)^2}} \exp\left[-\frac{(\Delta G + \lambda)^2}{4\lambda k_B T}\right]$$

ここで k_{ET} は分子間の電子移動速度すなわちホッピング伝導におけるキャリアの移動速度にあたります。この式から移動度が transfer integral V と reorganization energy λ に依存することがわかります。

Gaussian Disorder Model はホッピングサイトの位置的、エネルギー的分布からシュミレーションで移動度 μ を表すモデルで、移動度 μ は以下の式で表されます。

$$\mu(T, E) = \mu_0 \exp\left[-\left(\frac{2\sigma}{3kT}\right)^2\right] \exp\left[\left\{C\left(\frac{\sigma}{kT}\right)^2 - \Sigma^2\right\} E^{1/2}\right]$$

ここで、 σ はエネルギー的な乱れの分布、 Σ は位置的な乱れの分布を表します。Disorder free mobility μ_0 は、いわば分子自身の持つキャリア移動能力を表します。これらのパラメータは、移動度の電界依存性及び温度依存性から求めることができます。この実験結果から得られた μ_0 と Marcus の電子移動理論から量子化学的計算から得られるパラメータとの比較から、高い移動度を持つ分子を設計する指針を得るための情報を得ようと研究を進めています。

図 3 に実験に用いた分子の分子構造と、図 4 に、これらの分子を用いてこれまでに得られた結果の一部を示します。図 4 から Disorder Free Mobility μ_0 (言い換えれば分子の持つキャリア輸送能力) と Marcus の電子移動理論における再配置エネルギー λ とのあいだに相関性が有り、 λ が小さいほど高い μ_0 を示すことが明らかとなりました。この結果を元に、他の多くの有機半導体にも同様の解析を行うことで、この結果の物理的意味や高移動度を持つ有機半導体分子設計の確立を目指しています。

Quantum chemical calculation based on the Marcus theory

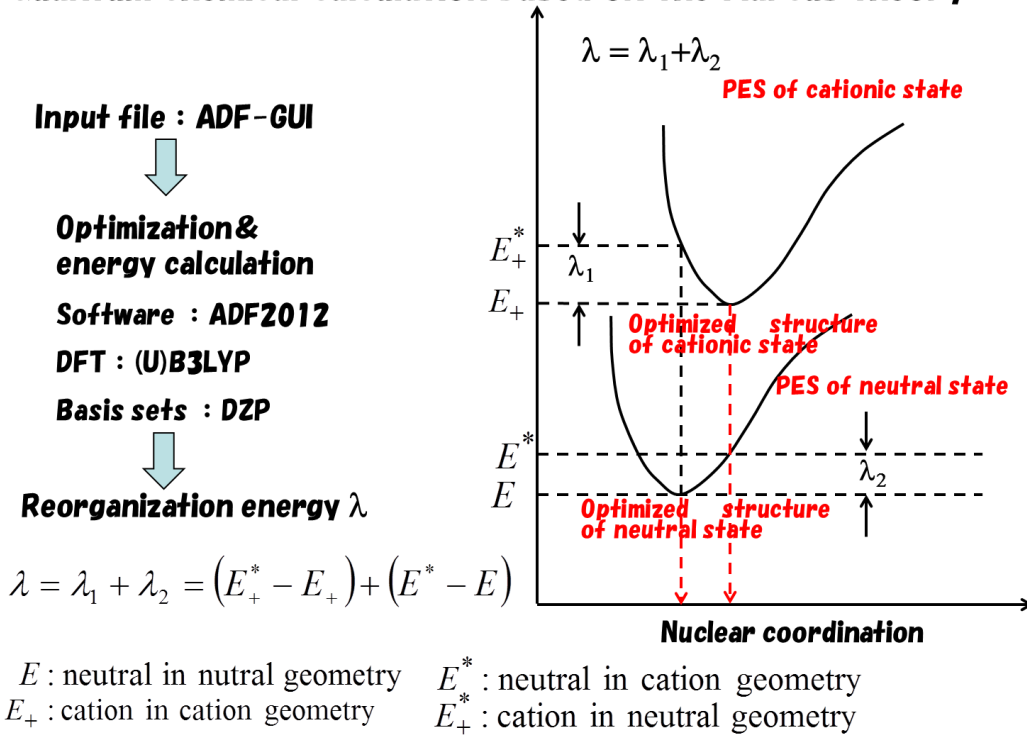
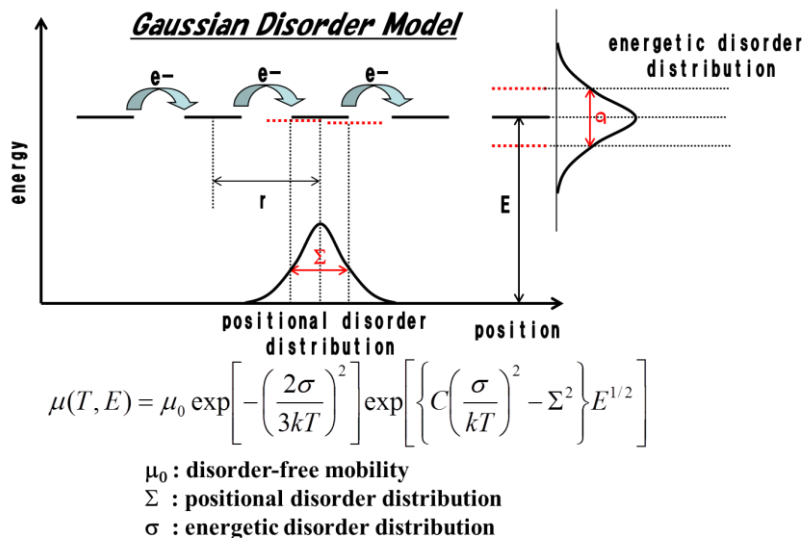


図 1、Marcus 電子移動理論に基づいた量子化学計算の概念図



Disorder Model $\Rightarrow \mu_0$ is rough standard of hole transporting capability
 relation between molecular structure and energetic and positional distribution of hopping sites

図 2、Gaussian Disorder model の概念図

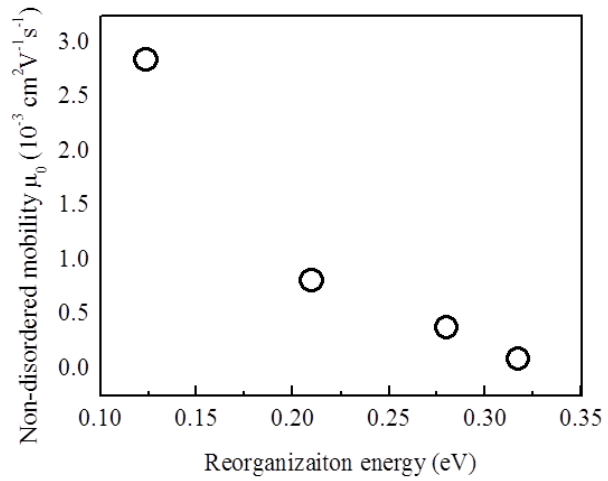
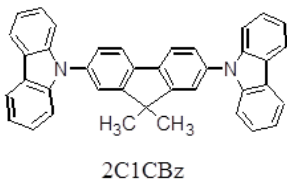
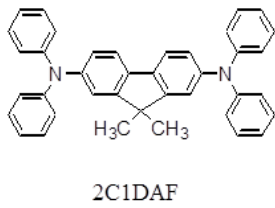
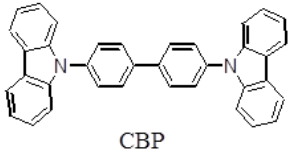
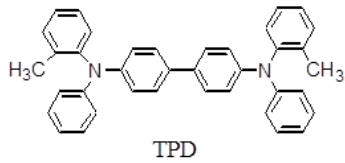


図3、実験に用いた分子の分子構造

図4、 μ_0 と λ との関係

参考論文

- 1) Masanao Era, Kento Mori, and Norio Tomotsu, "Analysis of hole mobility of fluorene derivative films based on the disorder model and relationship between disorder free mobility", Proc. SPIE, 8829(Organic Light Emitting Materials and Devices XVII), 1-8 (2013).