

## 3P182

第一原理計算による有機/金属界面( $\text{Al}/\text{Alq}_3$ )の構造と電子状態の解明  
(阪大産研\*, JST-CREST\*\*, 産総研\*\*\*) ○竹内 康祐\*\*, 柳澤 将\*\*, 森川 良忠\*\*,\*\*\*

### 【序】

省エネルギーで明るく液晶以上に薄型に出来る有機 EL(Electroluminescence)素子は次世代ディスプレイとして注目を集めている。しかし、性能に多くの問題があり、ディスプレイとしての使用も著しく制限されているのが現状である。有機 EL 素子では電極の間に電子輸送層、正孔輸送層、エミッション層など、複数の有機分子をサンドイッチした構造を持ち、有機分子と金属電極との界面や有機-有機界面での電子状態がきわめて重要な役割を果たす。電子輸送層として最も広く用いられている  $\text{Alq}_3$  とアルミニウム電極との界面の構造および電子状態については詳細な実験的研究がなされている。さらに、この界面に  $\text{LiF}$  などの絶縁体を挟むことにより電子注入効率を向上させることが出来ることが知られており注目を集めているが、そのメカニズムの解明には至っていないなど、未解決の問題も多い[1,2]。一方、有機-金属界面の理論的研究はその構造が複雑であるためまだ十分な研究が行われていない。特に、実デバイスの作成過程では有機分子層に金属電極を蒸着するが、この過程は取り扱いが困難なためシミュレーションは行われてこなかった。本研究では、 $\text{Alq}_3$  分子に  $\text{Al}$  原子が蒸着する過程のシミュレーションを行った。

### 【計算方法】

計算は密度汎関数理論に基づく擬ポテンシャル法、および、平面波基底を用いた計算プログラム STATE を用いた。ウルトラソフト擬ポテンシャル法を用い、平面波基底のカットオフエネルギーは、波動関数が 25Ry、電子密度が 225Ry とした。

### 【結果と考察】

$\text{Alq}_3$  へ 1 個  $\text{Al}$  原子を近づけると窒素を經由せずに直接酸素に近づいた (図の a)。このことは、これまでに行われた理論計算の結果[3]と一致している。酸素が  $\text{Al}$  原子に吸着されることで  $\text{Alq}_3$  中心の  $\text{Al}$  原子からはなれるため、 $\text{Alq}_3$  中心の  $\text{Al}$  原子の状態が変化し、 $\text{Al}$  原子と窒素の結合が変化する。XPS の実験[1]から  $\text{Al}$  原子を  $\text{Alq}_3$  に蒸着させると、窒素と酸素の状態に変化が起きることが分かっているが、計算結果はこの実験の結果とも一致する。2つ目の  $\text{Al}$  原子は、酸素ではなく先に吸着したアルミ原子に引き寄せられる傾向がある (図の b)。しかし、ある程度近づくと引き寄せられた  $\text{Al}$  原子そのものと反発し合いはじかれ、その後は吸着  $\text{Al}$  原子と周辺のベンゼン環付近を漂い続ける。このとき、吸着  $\text{Al}$  原子同士の距離は金属  $\text{Al}$  の原子間距離に近い一定の距離を保っていた。他の二つの酸素の側から  $\text{Al}$  原子を移動させてみたが、同様の結果であった。3つ目の  $\text{Al}$  原子を近づけると2つ目に吸着させた  $\text{Al}$  原子を押し

けるようにしてベンゼン環に弱く吸着された(図のc)。さらにAl原子を吸着させると、Al原子はAlq<sub>3</sub>と複雑な配置をとりながら金属層を形成していくようである。しかし、多くのAl原子を近づけたにもかかわらず、Al原子は主に酸素に結合し、炭素や窒素原子とは強い結合は作らない。そして、2つ目以降のAl原子は互いに結合しあいながら大きな固まりになっていった(図のd)。

以上のシミュレーションから、Al原子は主としてAlq<sub>3</sub>の酸素原子と結合し、その他の部分とはあまり強い相互作用をせずにAlの金属層が成長していくと考えられる。Alq<sub>3</sub>をAl金属に蒸着させた計算[4,5]と比べると、酸素原子とAl金属とが結合を作るという点で共通しており、これはAlq<sub>3</sub>をAl金属に蒸着した場合もAlq<sub>3</sub>にAl原子を蒸着させた場合も似たような電子状態を示すという実験結果[1,2]と一致している。今後、さらに結合状態や電子状態について詳細に調べる予定である。

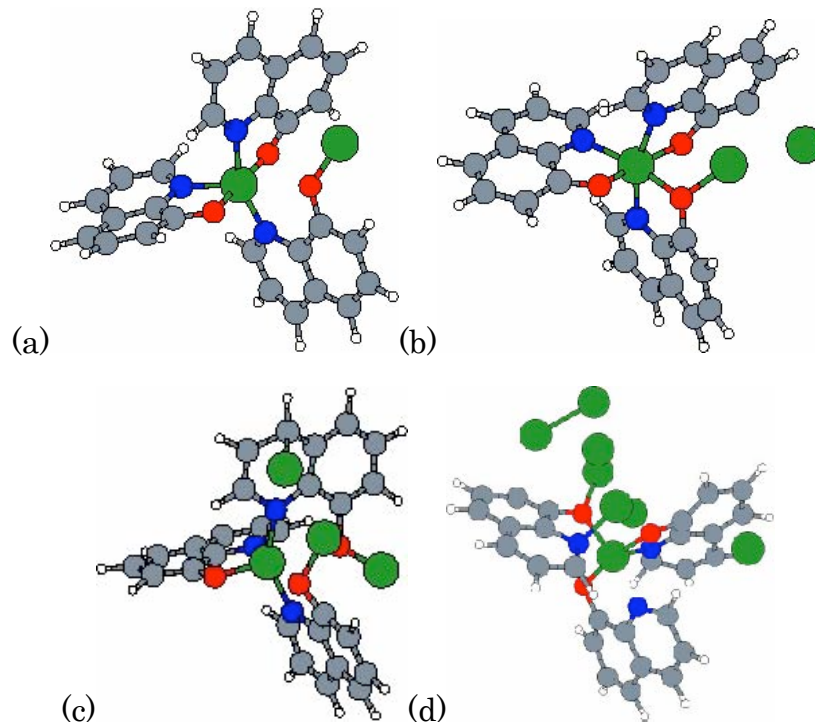


図:a, b, c, dはそれぞれアルミニウムが1個、2個、3個、7個吸着した状態のAlq<sub>3</sub>(meridional異性体)の構造。

【参考文献】

- [1] C. Shen, A. Kahn, and J. Schwartz, J. Appl. Phys., **89**, 449 (2001).
- [2] T. Yokoyama, D. Yoshimura, E. Ito, H. Ishii, Y. Ouchi, and K. Seki, Jpn. J. Appl. Phys., **42**, 3666 (2003).
- [3] R. Q. Zhang, W. C. Lu, C. S. Lee, L. S. Hung, and S. T. Lee, J. Chem. Phys., **116**, 8827 (2002).
- [4] A. Curioni and W. Andreoni, Synth. Met. **111-112**, 299 (2000) .
- [5] S. Yanagisawa , and Y. Morikawa, Jpn. J. Appl. Phys., submitted.