

氏名(本籍)	マヘス ダッタ バッタ (ネパール)		
学位の種類	博士(工学)		
学位記番号	博甲第5284号		
学位授与年月日	平成22年3月25日		
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当		
審査研究科	数理物質科学研究科		
学位論文題目	<b>Electronic structure at organic molecule-metal interface studied by density functional theory</b> (密度汎関数法による有機分子-金属界面の電子構造の研究)		
主査	筑波大学教授	理学博士	秋本克洋
副査	筑波大学教授	博士(工学)	佐々木正洋
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	鈴木修吾
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	丸本一弘
副査	東京大学教授	理学博士	増田茂

### 論文の内容の要旨

有機材料を用いた発光ダイオード、太陽電池などのデバイスは、高性能、フレキシブル、薄型、軽量、低価格、量産性などが期待でき実用化研究が盛んである。これら有機デバイスの特性を左右する重要な項目はいくつかあるが、有機分子と電極界面の問題は其中でも最も重要な項目の一つである。

本博士論文は、有機太陽電池の性能向上を目指し、バッファ材料として用いられている Bathocuproine (BCP と略記) と金属電極との相互作用を密度汎関数法によるシミュレーションにより調べた結果がまとめられている。BCP は有機太陽電池や有機 LED で金属電極と電子輸送材料の間に挿入されるバッファ層として使われており、デバイス特性の向上が実現されているが、そのメカニズムに関しては理解されていない。そこで BCP と数種類の金属との接触界面の電子エネルギー状態を計算し、その性質の特徴を明らかにした。

金属原子 13 原子を (111) 面の 1 層に配列し、BCP 吸着の最安定構造を求めた。電極金属原子として、Ca、Mg、Al、Ag、Au を検討した。これらの金属の仕事関数はこの順番で大きくなる。金属原子 13 原子以上で仕事関数がほぼ飽和すると共にバルクと同様となり、このモデルの妥当性を確認した。結果は電子分光実験結果と比較検討した。

Ca 上の BCP ではフェルミレベルと BCP の最高占有軌道 (HOMO) の間に新しい状態密度の形成 (界面状態) が見出された。この結果は紫外光電子分光の結果と一致する。分子軌道を構成する原子軌道の係数を解析すると、HOMO はほぼ BCP の軌道で構成されているが、界面状態、フェルミレベル近傍、最低非占有軌道 (LUMO) は BCP の p-軌道と Ca の s-軌道の両方で形成されており、波動関数の混じりが観測された。すなわち、Ca の s-軌道と LUMO の相互作用があり、その相互作用により界面状態が形成されたと理解できる。

フェルミレベル近傍に BCP の軌道成分があること、さらに BCP の LUMO に Ca の s-軌道成分があることより、界面が電子輸送されやすい性質を持っていることが分かった。これら電子輸送されやすい性質がデバイス特性改善につながっていることを明らかにした。これらの傾向は、Mg、Al、Ag でも見られ、仕事関数の比較的小さい金属では統一的に理解できることを示した。

一方、BCP上のAuでは新しい状態密度の形成は見られず、紫外光電子分光実験結果と一致する。また、Auのフェルミレベル近傍はほぼAu由来の軌道成分、BCPのHOMO、LUMOはそれぞれ固有の軌道成分で形成されており、軌道の混じりはほとんど見られなかった。AuとBCPとの相互作用が小さい原因は、フェルミレベルとLUMOあるいはHOMOとのエネルギー差が大きいことによると考えられた。

### 審 査 の 結 果 の 要 旨

有機デバイスの性能を支配する要因の一つとされる電極との界面状態をシミュレーションでよく説明している。特に界面状態が形成される系とされない系の違いを明らかにするとともに電子輸送特性向上の原因を明らかにした。

これらの結果はデバイス設計に極めて重要な知見を与えている。

論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。