

## 量子化学計算を用いた炭化水素系熱硬化性樹脂の電気的特性予測の基礎検討

瀧 裕樹, 小迫 雅裕, 匹田 政幸  
(九州工業大学)

### 1. はじめに

近年, 計算機の発展および計算アルゴリズムの進歩に伴い, 量子化学計算は急速な発展を続けている。しかし, 誘電・絶縁材料分野における計算化学の研究基盤は未だ萌芽的であり, 早急な形成が求められている。そこで本報では, 密度汎関数理論に基づき, エネルギー準位, 電荷分布, 双極子モーメントおよびイオン化ポテンシャルを計算し, 量子化学計算を用いた高分子材料の電気的特性評価の可能性を示す。

### 2. 計算方法

計算対象の高分子として, 炭化水素系熱硬化性樹脂であるトリシクロペンタジエン(tricyclopentadiene: TCP)を選定した。図 1 に TCP の計算モデルを示す。ただし, 計算コストの都合上, オリゴマーモデルとした。なお, 同図中の灰色および白色の球はそれぞれ炭素および水素原子を表す。

密度汎関数法の計算には, Gaussian09, RevisionD. 01<sup>[1]</sup>を用いた。汎関数は B3LYP として, 基底関数は 6-31+G(d)を用いた。また, GaussView<sup>[2]</sup>を用いて出力結果の可視化を行った。

### 3. 計算結果および考察

#### 3.1 エネルギー準位

図 2 に TCP および比較対象としてビスフェノール A 型のエポキシのエネルギー準位を示す。なお, 同図中の 0 eV は真空準位を示し, HOMO (Highest Occupied Molecular Orbital) および LUMO (Lowest Unoccupied Molecular Orbital) はそれぞれ赤色, 青色で表示している。同図より, TCP とエポキシの HOMO-LUMO ギャップはそれぞれ, 6.25 eV, 5.40 eV であり, 約 1 eV 異なる。このギャップ差は, 電子励起のしづらさを表すため, TCP はエポキシよりもバンド伝導しにくいといえる。ただし, HOMO-LUMO ギャップだけではホッピング伝導の評価ができない。

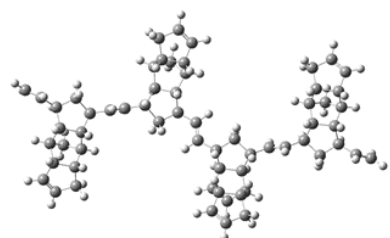


Figure 1. Calculation model of TCP

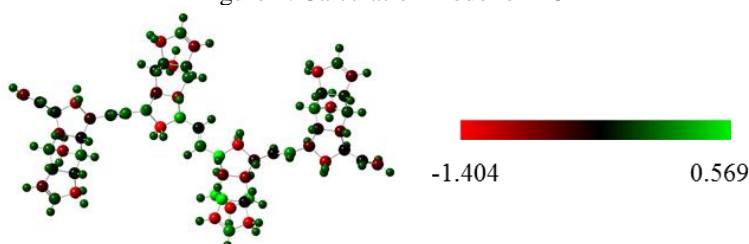


Figure 3. Mulliken charge of TCP

#### 3.2 電荷分布および双極子モーメント

図 3 に TCP の Mulliken 電荷分布を示す。同図中の赤色は負帯電, 緑色は正帯電を表す。炭素は, 水素よりも大きい電気陰性度を持つため, 水素から電子を引き付ける。そのため, 炭素は負に帯電し, 水素は正に帯電する。また, TCP の双極子モーメントは, 0.093 debye であり, 無極性分子である。この極性計算と分極率計算を組み合わせることによって, 誘電率予測も可能である。

#### 3.3 イオン化ポテンシャル

イオン化ポテンシャルは, トリー進展時間と関係があるとされ, 重要なパラメータの一つといえる。表 1 に TCP のイオン化ポテンシャルを示す。イオン化ポテンシャルは, 電気的に中性な分子の最適化構造におけるエネルギーと, カチオンのエネルギー差によって算出した<sup>[3]</sup>。岩田<sup>[3]</sup>は, エポキシのイオン化ポテンシャルを 7.2 eV と報告しており, 本計算結果とほぼ一致する。

Table 1. Ionization potential of TCP

	Charge	Total Energy (a.u)	IP (eV)
TCP	0	-2408.215	7.21
	+1	-2407.950	

### 4. まとめ

量子化学計算を用いた, 高分子の各種電気特性評価の可能性を示した。今後は実測との比較や移動度などの算出を行っていく予定である。

### 5. 参考文献

- [1] Gaussian09, Revision D. 01, M. J. Frisch et al., Gaussian, Inc., Wallingford CT, 2013
- [2] GaussView, Version 5, Roy Demington et al., Semichem, Inc., Shawnee Mission, KS, 2009
- [3] 岩田 晋弥:「高機能性電気絶縁材料の創製による電気トリーの進展制御」, 研究助成成果報告書

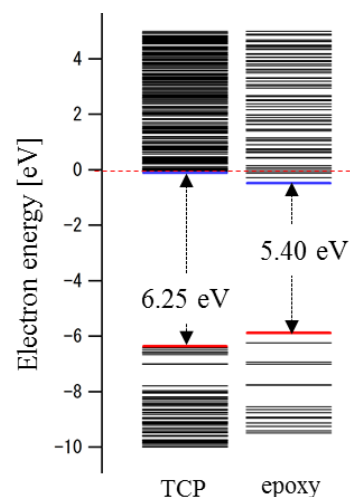


Figure 2. Energy level of TCP and epoxy