

量子化学計算による分子内電荷分極を有するシングレットフィッシュン候補分子の探索

(阪大基礎工¹・阪大院基礎工²・阪大 CSRN³・阪大 QIQB⁴) ○坂井 亮太¹・岡田 健治²・永海 貴識²・中野 雅由^{2,3,4}

Exploration for Intramolecular Charge Polarized Candidate Molecules for Singlet Fission based on Quantum Chemical Calculation (¹Engineering Science, Osaka University, ²Graduate School of Engineering Science, Osaka University, ³Center for Spintronics Research Network, Osaka University, ⁴Center for Quantum Information and Quantum Biology, Osaka University)
○Ryota Sakai,¹ Kenji Okada,² Takanori Nagami,² Masayoshi Nakano^{2,3,4}

Singlet fission (SF) – a photophysical process, where a singlet exciton splits into two triplet excitons – has recently attracted much attention due to its potential to improve conversion efficiency in organic solar cells [1]. Stability of charge transfer (CT) state is a key factor in SF rates and double-triplet exciton state yields [2]. In this study, by diradical-character-based design guideline [3] and quantum chemical calculations, we investigate several fused-ring conjugated molecular systems with intramolecular charge polarizations, which are expected to stabilize their CT states, to quest for SF candidates satisfying the energy level matching conditions.

Keywords : Singlet Fission; Quantum Chemical Calculation; Charge Transfer State; Organic Photoelectric Cell

シングレットフィッシュン(SF)は1つの一重項励起子が2つの三重項励起子に分裂する光化学過程であり、太陽電池の光電変換効率向上への期待から近年盛んに研究されている¹。電荷移動(CT)状態の安定性はSF効率に関する重要な因子の1つである²。本研究では、CT状態の安定化が期待される、分子内電荷分極を有する縮環共役分子系を複数提案し、ジラジカル因子に基づく設計指針³と量子化学計算を用いてエネルギー整合条件($E(S_1) \sim 2E(T_1)$)を満たすSF候補分子の探索を行った。見いだされた分子の一例を以下に示す(図1)。詳細は当日報告する。

$$E(S_1) = 2.048 \text{ eV}, E(T_1) = 1.084 \text{ eV} \quad E(S_1) = 1.392 \text{ eV}, E(T_1) = 0.736 \text{ eV}$$



図1. エネルギー整合条件を満たす分子内電荷分極をもつ分子例 (CC2/cc-pVDZ)

[1] (a) M. B. Smith, J. Michl *Chem. Rev.* **2010**, *110*, 6891. (b) A. Japahuge, T. Zeng, *ChemPlusChem* **2018**, *83*, 146. (c) S. Ito, T. Nagami, M. Nakano, *J. Photochem. Photobiol. C: Photochem. Rev.* **2018**, *34*, 85. [2] Nakano et al. *J. Phys. Chem. C* **2016**, *120*, 22803. [3] T. Minami, M. Nakano, *J. Phys. Chem. Lett.* **2012**, *3*, 145.