

ボウル型分子の一次元集合系におけるシングレットフィッションダイナミクスに関する理論研究

(阪大院基礎工¹・阪大 QIQB²・阪大 RCSEC³・阪大 CSRN⁴・阪大 ICS-OTRI⁵)

○岡田 健治¹・徳山 和明¹・岸 亮平^{1,2,3}・北河 康隆^{1,2,3,4}・中野 雅由^{1,2,3,4,5}

Theoretical Study on Singlet Fission Dynamics in One-dimensional Aggregates Composed of Bowl-Shaped Molecules (¹Graduate School of Engineering Science, Osaka University, ²Quantum Information and Quantum Biology Division (QIQB), Osaka University, ³Research Center for Solar Energy Chemistry (RCSEC), Osaka University, ⁴Center for Spintronics Research Network (CSRN), Osaka University, ⁵Innovative Catalysis Science Division (ICS), Osaka University) ○ Kenji Okada,¹ Kazuaki Tokuyama,¹ Ryohei Kishi,^{1,2,3} Yasutaka Kitagawa,^{1,2,3,4} Masayoshi Nakano^{1,2,3,4,5}

Singlet fission (SF) is a photophysical process, where a singlet exciton splits into two triplet excitons. In recent years, SF has attracted a great deal of attention due to its potential to improve the photoelectric conversion efficiency of organic solar cells. In order to improve the SF efficiency, it is essential to tune the energies of S_1 , T_1 and charge transfer (CT) states, and further improve the electronic couplings. In this study, we investigate the SF dynamics in columnar stacked one-dimensional aggregate models composed of bowl-shaped SF molecules (Fig. 1). It is found that the structural symmetry in aggregate is one of the important factors to determine the SF efficiency.

Keywords : Singlet Fission, Quantum Chemical Calculation, Exciton Dynamics, Curved π -System

シングレットフィッション(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物理化学過程であり、高効率有機太陽電池への応用が期待されている¹⁾。高効率なSF材料のためには、エネルギー整合条件 $E(S_1) \geq 2E(T_1)$ や、電荷移動(CT)状態のエネルギー・分子間の分子軌道の電子的な相互作用(電子カップリング)などの多くの要素を包括的に考慮した分子設計が求められる。本研究では、湾曲 π 共役分子の一次元的な分子集合系におけるSFの機構の理論的解明と新たな分子設計指針構築を目指し、ボウル型のペロピレン類縁体をモデルとした一次元集合系(Fig. 1)のSFダイナミクスについてシミュレーションにより検討を行った。その結果、回転対称性を有する分子が対称軸を共有するような多量体構造においては、特定の電子カップリングが消失するためSFに適さないことがわかった。この課題に対しては非対称的に化学修飾を施すことが有効に働くことが確認された。

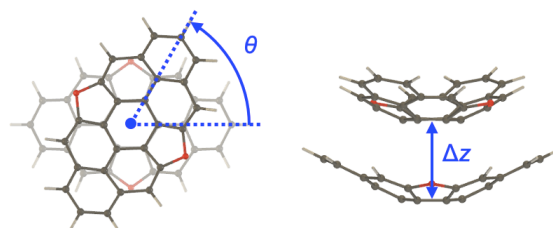


Figure 1. An example of dimer unit in columnar stacked bowl-shaped peropyrene model.

1) M. B. Smith, J. Michl, *Chem. Rev.* **2010**, *110*, 6891; *Annu. Rev. Phys. Chem.* **2013**, *64*, 361–386.