らせん状骨格を有する開殻一重項分子の一重項分裂過程に関する電子励起状態についての理論研究

（阪大基礎工[1]・阪大院基礎工[2]・阪大 QIQB[3]・阪大 RCSEC[4]・阪大 ICS-OTRI[5]・阪大 SRN-OTRI[6]）○中山 直哉[1]・岡田 健治[2]・岸 亮平[2,3,4,5]・北河 康隆[2,3,4,5,6]

Theoretical Study on Electronic Excited States Related to Singlet Fission Process for Open-shell Singlet Molecules with Helical Scaffolds

([1]*School of Engineering Science, Osaka University*, [2]*Graduate School of Engineering Science, Osaka University*, [3]*QIQB, Osaka University,* [4]*RCSEC, Osaka University,* [5] *ICS-OTRI, Osaka University,* [6]*SRN-OTRI, Osaka University*) ○Naoya Nakayama,[1] Kenji Okada,[2] Ryohei Kishi,[2,3,4,5] Yasutaka Kitagawa[2,3,4,5,6]

Singlet fission (SF) is a process in which a singlet exciton splits into two triplet excitons. SF has recently attracted intensive attention due to its potential to enhance the photoelectric conversion efficiency of solar cells. There are conditions for the energy levels of singlet and triplet excited states of monomer that is suitable for efficient SF, and molecules with moderate open-shell singlet character are expected to satisfy these energy matching conditions. In this study, we investigated the low-lying excited states related to SF process of open-shell singlet molecules with helicene scaffolds, the molecular class of which have not been investigated so far as candidates, and then discuss their potential for novel molecules suitable for efficient SF materials.

Keywords : Antiaromatic Molecules; π-Stacking; Quantum Chemical Calculations; Hydrocarbons

一重項分裂(SF)は一つの一重項励起子が二つの三重項に分裂する過程である。SF の発現には、単分子レベルでは一重項励起エネルギーが三重項励起エネルギーの 2 倍程度になっている必要があり、このような励起エネルギーに関する条件を満たす系として開殻一重項分子が知られている。近年 SF は、有機太陽電池における変換効率向上に加えて、有機 LED の効率向上などの観点からも注目されており、従来の平面 π 共役系だけでなく様々な分子骨格を持つ SF 分子系の設計が求められている。本研究では、SF の候補分子としてはこれまでほとんど検討されてこなかった、らせん状骨格を有する開殻一重項分子の電子励起状態を調査し、新規候補分子の探索を行う。らせん状骨格として、本研究ではヘリセン骨格とその π 拡張系（Fig. 1）に着目し、構成六員環数や六員環縮環による π 拡張が、一重項および三重項状態の励起エネルギーに与える影響を量子化学計算により検討した。DFT レベルの計算を行った結果、5-ヘリセンの π 拡張系であり、かつペリレン骨格も有する dibenzo[*α*,*o*]perylene（Fig. 1、右端）において、エネルギー条件を満たす可能性があることがわかった。分子軌道のエネルギーや空間分布をもとに、その機構を検討した。

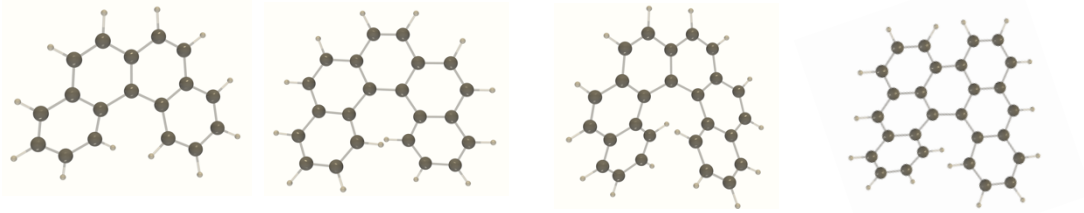

Fig. 1. Model molecules investigated in this study.

© The Chemical Society of Japan