

一重項分裂を示す非縮合多環系分子の合成と有機薄膜太陽電池への応用

Non-polycyclic aromatic molecules for singlet fission in organic photovoltaics

○河田総¹, 夫勇進^{1,2}, 斉藤彩華¹, 羽田真毅^{2,3}, 笹部久宏¹, 城戸淳二¹¹山形大院理工, ²JSTさきがけ, ³東工大応セラ研○So Kawata¹, Yong-Jing Pu^{1,2}, Ayaka Saito¹, Masaki Hada^{2,3}, Hisahiro Sasabe¹, Junji Kido¹¹Yamagata University, ²JST-PRESTO, ³Tokyo Inst. of Tech.

E-mail: pu@yz.yamagata-u.ac.jp, kid@yz.yamagata-u.ac.jp

【緒言】一つの一重項励起子が二つの三重項励起子に変換される一重項分裂(singlet fission)は、有機薄膜太陽電池(OPV)の効率向上に向けて大きく注目されている^{1,2}。一重項分裂により生成した二つの三重項励起子がともに電荷分離すれば、一つの光子から二組の電子・ホール対が流れることになり、外部量子効率の理論限界は200%となる。一重項分裂の発現には、一重項励起準位のエネルギーが三重項励起準位のエネルギーの2倍以上($E(S_1) > 2 \times E(T_1)$)である必要があるが、多くの有機分子材料において上記条件を満たすことは困難である。実際のOPV素子では、ペンタセンやルブレンなどの既存の限られた縮合多環系分子においてのみ、一重項分裂特性の発現が報告されており、新しい一重項分裂材料の報告例は極めて少ない。本研究では、非縮合多環系の一重項分裂性材料として3種のチエノキノイド化合物(図1)を合成し、光電流の磁場依存性から一重項分裂特性を観測した。

【実験・結果】量子化学計算から、いずれの化合物においても一重項分裂のエネルギー条件を満たすことが示唆された。キノイド構造由来のピラジカル性の寄与によって三重項準位が適度に低下したためと考えられる。チエノキノイド化合物をドナー、PDIF-CN₂をアクセプター材料とした交互多積層型素子を作製し光電流の磁場依存性を検証した。チエノキノイド化合物から得られる光電流は、低磁場において増加した後、高磁場になるにつれて減少した(図2a)。これはT₁準位のゼーマン分裂による一重項分裂速度の低下に起因する光電変換効率の低下を示している。一方でC₆₀をアクセプターとして用

いた場合には、印加磁場の増加に伴い、光電流の増加を観測した。これは一重項分裂により生成した三重項励起子がC₆₀との界面において電荷分離できないため、一重項分裂速度の低下が光電変換効率の低下を抑制していると考えられる(図2b)。

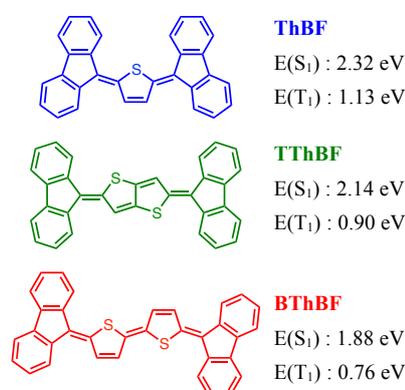
¹) Michl et al, *Chem. Rev.*, 2010, 110, 6891.²) Baldo et al, *Science*, 2013, 340, 334.

図1. チエノキノイド化合物の構造式とエネルギー準位 (B3LYP/6-311+G(d,p))

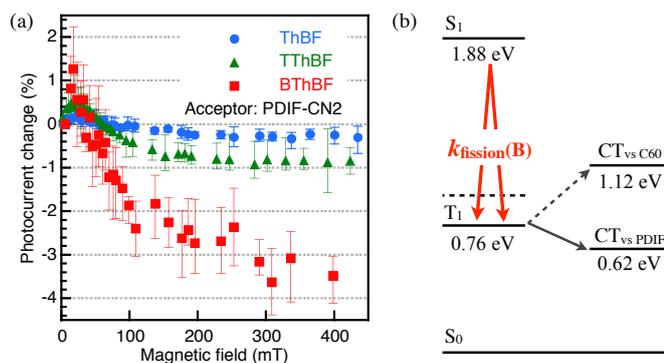


図2. (a) 光電流の磁場依存性 (b) BThBFでのエネルギー準位図