第一原理計算による高移動度有機半導体の励起状態の解析

First-Principles Investigation of Excited States of High-Mobility Organic Semiconductors

分子研　°藤田　貴敏
IMS.　Takatoshi Fujita
E-mail: tfujita@ims.ac.jp

有機分子集合体の電子励起状態は、各分子に束縛された電子を基とするフレンケル励起子モデルで説明されてきた。しかしながら、近年の高移動度有機半導体の発見から、分子結晶中の電子は多数の分子に非局在化した遍在電子としての性質を持つことがわかってきた。つまり、高移動度有機半導体の励起状態を理解するためには、強束縛電子に基づいたフレンケル励起子モデルと遍在電子に基づいたワニエ励起子モデルを内包した描像を確立する必要がある。我々はフラグメント分子軌道(FMO)法による大規模電子状態計算と量子ダイナミクス理論を併用することにより、有機半導体の光物性や励起子ダイナミクスを解析してきた。特に最近の励起状態計算法の発展[1]により、有機/有機界面などの乱れた大規模系の励起状態の解析が可能となった。また、束縛電子と偏在電子を等価に取り扱うことができるため、高移動度有機半導体の励起状態計算にも適している。

本講演では、有機半導体薄膜の励起子ダイナミクス[2]と、有機/有機界面の界面電荷移動状態[3]（Fig.1）についての研究を紹介する。いずれの例でも、分子内励起状態（フレンケル励起子状態）と電荷移動状態の混合や、電子/正孔波動関数の局所性/偏在性、等に集点を当てて解析を行った。我々の第一原理計算により得られた励起状態の描像について発表する。

[1] T.F. and Y. Mochizuki, J. Phys. Chem. A 122 (2018) 3886. ; [2] T.F. et al., J. Phys. Chem. Lett. 7 (2016) 1374. ; [3] T.F., MD. K. Alam, and T. Hoshi, in preparation.

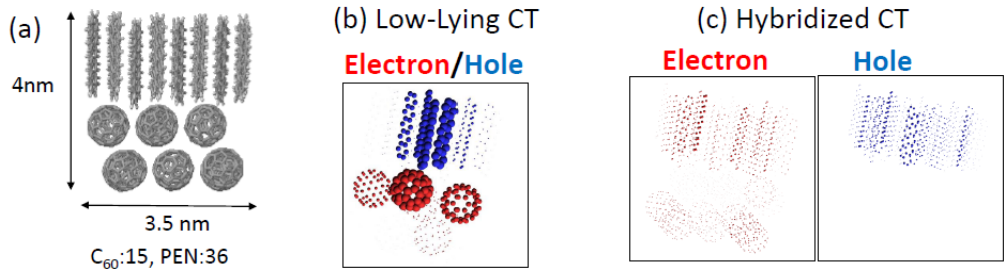

Fig 1: (a) Local interface structure of pentacene/C_{60} bilayer heterojunction (b) Visualization of electro (red) and hole (blue) wave functions that constitute low-lying CT state (c) Electron and hole wavefunction which constitute hybridized CT state.

© 2018年 応用物理学会