大規模励起状態計算による電荷移動状態の界面配向依存性の解析

An investigation of interfacial morphology dependence of charge-transfer states by large-scale excited-state calculations

分子研 [1]，○藤田貴敏 [1]

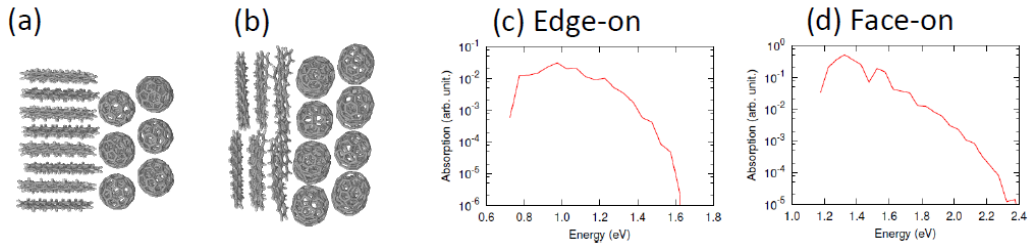
IMS[1]，○Takatoshi Fujita[1]

E-mail: tfujita@ims.ac.jp

[研究背景]　有機薄膜太陽電池のドナー/アクセプター界面で形成される電荷移動(CT)状態は、電荷分離・電荷再結合反応の中間状態であり、さらに開放電圧値とも相関することから、光電変換過程において重要な役割を担う。そのため界面 CT 状態を理解し適切に制御することが有機薄膜太陽電池の効率化において重要である。我々はドナー/アクセプター界面のような乱れた大規模系に適用可能な励起状態計算手法の開発を行ってきた[1-3]。手法は大規模電子状態計算法のフラグメント分子軌道法と多体グリーン関数理論に基づいており、分極効果と非局在化効果を両方考慮しつつ励起状態を計算することができる。本発表では、開発した手法をペンタセン/C_{60} 界面に適用し、CT 状態の界面配向依存性を調べた結果について報告する。

[結果]　分子動力学シミュレーションから edge-on 配向と face-on 配向のペンタセン/C_{60} 界面を作成した[4]。得られた edge-on 配向と face-on 配向の界面構造に対して、FMO-GW/BSE 法により界面 CT 状態の計算を行った。計算した CT 状態の吸収スペクトルを図(c)(d)に示す。Edge-on 界面と face-on 界面の CT 吸収のピークはそれぞれ 0.98 と 1.33 eV と得られた。Edge-on 界面の結果は Brigeman ら[5]によって測定された外部量子収率スペクトルの結果とよく一致している。発表では edge-on 界面と face-on 界面における分極エネルギーや CT 状態の非局在化の度合いについて議論を行う。

[1] T.F. and Y. Mochizuki, J. Phys. Chem. A 122 (2018) 3886. [1] T.F. and Y. Noguchi, Phys. Rev. B, 98 (2018) 205140. [3] T.F., Y. Noguchi and T. Hoshi, J. Chem. Phys. 151 (2019) 114109.　[4] T. F., Md. K. Alam, and T. Hoshi, Phys. Chem. Chem. Phys. 20 (2018) 26443. [5] A. N. Brigeman et al., 6 (2016) 1601001.



Figs: Atomistic structures for (a) edge-on and (b) face-on pentacene/C_{60} interfaces. Absorption spectra of CT states for (c) edge-on and (d) face-on structures.

© 2020年 応用物理学会