

電荷移動によるスピンの動きを捉える

(神戸大分子フォト¹・神戸大院理²) ○小堀 康博^{1,2}

Grasping motions of spins in charge-transfer states (¹*Molecular Photoscience Research Center and* ²*Graduate School of Science, Kobe University, Yasuhiro Kobori* ^{1,2}

Elucidating donor-acceptor interactions in the field of photochemistry is one of the most important highlights for applications to the electronics and energy conversions and can be extended to resolve several medical issues like photodynamic therapy in view of the material science. “Dynamic exciton”, an umbrella term concept in photochemistry, plays an important role in several fields and is strongly related to nuclear motions, phonon modes and spin-orbit interactions in the photochemical phenomena.¹⁾ In this respect, we have developed a novel tool of the electron spin polarization imaging (ESPI) method that maps the transverse magnetization for all possible magnetic field directions to visualize molecular conformations of the transient states in a direct way using the nanosecond time-resolved electron paramagnetic resonance measurements.²⁾ We herein show examples of the “visualizations of motions of spins” by analyzing the ESPI mappings of the spins in the multiexcitons produced by the intramolecular singlet-fissions³⁾ and in inhomogeneous charge-separated states²⁾ in organic solar cell.

Keywords : Organic Solar Cell; Charge-transfer; Singlet Fission; EPR; 3D Visualization

光化学の根幹を司る有機分子系のドナー・アクセプター相互作用は、エレクトロニクス、エネルギー、医薬・医療、機能性材料など現代社会において多様な貢献を期待されている。核や格子の運動、スピンと軌道の相互作用などの動的効果が時間発展的に働く「動的エキシトン」¹⁾の解明がこれら次世代光エネルギー変換材料の創成に向けた重要な鍵となる。我々は、核やスピンによる動的効果が、有機薄膜太陽電池などデバイス中の複雑・不均一系において発揮する様子を実時間と実空間の両領域で観測することを目指し、時間分解電子スピン共鳴(TREPR)法による計測から、一重項励起子分裂(シングレットフィッション:SF)や、光電荷分離過程で生成する中間体の立体構造や電子状態を、世界最高性能の極めて高い空間分解能(オングストローム領域)で三次元映像として表示する「ナノ秒時間分解電子スピン分極映像化(TR-ESPI)法」を開発してきた²⁾。この手法を用いた「スピンの動き」の観測より明らかになってきたSFによる高効率な三重項励起子対³⁾の生成や、有機薄膜における界面電荷解離過程²⁾に対する分子振動効果の詳細について紹介する。

- 1) H. Imahori, Y. Kobori, H. Kaji, Manipulation of Charge-Transfer States by Molecular Design: Perspective from “Dynamic Exciton”. *Acc. Mat. Res.* **2021**, 2, 501-514.
- 2) Y. Kobori, T. Ako, S. Oyama, et al., Transient Electron Spin Polarization Imaging of Heterogeneous Charge-Separation Geometries at Bulk-Heterojunction Interfaces in Organic Solar Cells. *J. Phys. Chem. C* **2019**, 123, 13472-13481.
- 3) T. Hasobe, S. Nakamura, N. V. Tkachenko, Y. Kobori, Molecular Design Strategy for High-Yield and Long-Lived Individual Doubled Triplet Excitons through Intramolecular Singlet Fission. *ACS Energy Lett.* **2022**, 7, 390-400.