

量子開放系の手法を用いた有機半導体の励起ダイナミクスの解析

○藤田 貴敏

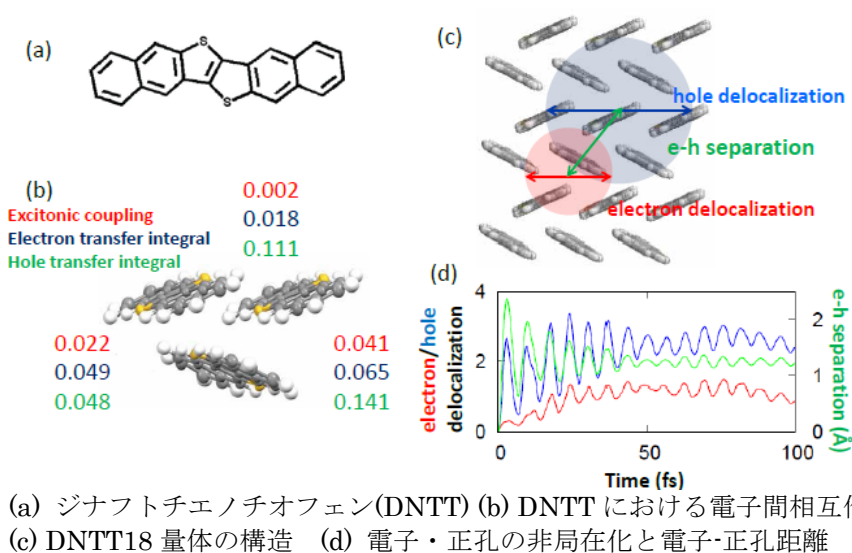
分子研

tfujita@ims.ac.jp

[序] 近年、有機半導体が有機薄膜太陽電池や有機 LED 等への応用から注目を集めている。理論・計算から分子設計の指針を示すためには、エネルギー・電荷の輸送機構や、界面での電荷分離・再結合を理解することが必要不可欠である。そこで本研究では電子間相互作用と電子-格子相互作用を同時に考慮しつつ電子-正孔系のダイナミクスを取り扱える手法を開発する。開発した手法を p 型有機半導体のジナフトチエノチオフェン(DNTT)[1,2]に適用し、励起ダイナミクスにおける電荷移動型励起子の役割について議論を行う。

[理論] 我々はフラグメント分子軌道法・分子動力学法・確率的シュレディンガー方程式を組み合わせることにより、有機半導体の量子ダイナミクスを取り扱う手法を開発した[3]：(1)フラグメント分子軌道法[4]と TDFI 法[5]を組み合わせることによる励起子ハミルトニアン の計算、(2)分子動力学法と QM/MM 計算を組み合わせたスペクトル密度の計算、(3)さらにこれらをインプットとして確率的シュレディンガー方程式[6]を解き、励起子の量子ダイナミクスを解析する。

[結果] DNTT の構造は実験で決められた結晶構造[1]を用いる。FMO-CIS/6-31G*レベルで励起子間相互作用や電子・正孔転送行列の計算を行った結果、図(b)のような結果が得られた。これらの電子間相互作用から電子-正孔系の励起子ハミルトニアンを定義し、結晶の吸収スペクトルを計算すると、定性的には一致した結果が得られた。励起ダイナミクスの解析は DNTT 18 量体 (図(c)) を用いて行った。当日はエネルギー緩和ダイナミクス、フレンケル型励起子と電荷移動型励起子の混合、電荷の非局在化/局在化の役割について議論を行う。



[参考文献] [1] T. Yamamoto and K. Takimiya, J. Am. Chem. Soc. 129 (2007) 2224. [2] Y. Ishino et al., Phys. Chem. Chem. Phys. 7 (2014) 7501. [3] T.F. et al., J. Phys. Chem. Lett. 7 (2016) 1374. [4] S. Tanaka et al., Phys. Chem. Chem. Phys. 16 (2014) 10310. [5] K. J. Fujimoto, J. Chem. Phys. 137 (2012) 034101. [6] X. Zhong and Y. Zhao, J. Chem. Phys. 138 (2013) 014111.