

有機薄膜太陽電池のエネルギー変換効率に関する理論的研究

理研-AICS

○島崎智実, 中嶋隆人

Theoretical Study on Energy Conversion Efficiency of Organic Photocell

○Tomomi Shimazaki, Nakajima Takahito

RIKEN-AICS, 7-1-26 Minatojima-minami-machi, Chuo-ku, Kobe, Japan

t-shimazaki@riken.jp

This presentation discusses an ideal diode model with hot charge transfer (CT) states to analyze the power conversion efficiency of organic photocell. Organic devices based on blends of conjugated polymers and fullerene derivatives have been gathering much attention, because of their low production costs, thin and light structures, flexibilities, designs, and so on. However, the power conversion efficiency of organic photocells still remains low compared with inorganic devices. In order to improve the device performance, we need to more deeply investigate the mechanism to generate electric currents from photons. The free carrier generation mechanism from sunlight in organic photocell device composes of four microscopic processes: photon absorption, exciton dissociation, charge transfer, and charge separation. We previously reported a theoretical method to calculate the charge separation process with the hot CT state effect. [T. Shimazaki et al, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **17**, 12538, 2015. *J. Chem. Phys.*, **144**, 234906, 2016.] In this presentation, we integrate a diode model with the hot CT state mechanism, and calculate several device properties of organic photocell device, such as short circuit current, open circuit voltage, and power conversion efficiency. Our study showed that the hot CT state and the dimensional effect give strong influences on the device performance. [*Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**, 12517, 2017]. In addition, we have opened a web service to search molecules at <http://pccdeb.org>, based on a large-scale molecular database. By using the web service, we can solve inverse problems related to the molecular electronic structure. The database approach together with simulation techniques will be useful to develop organic photocell. The detail of our research will be presented in the conference.

近年、有機薄膜太陽電池はシリコン等の無機系太陽電池を代替・補完するものとして注目を集めている。有機薄膜太陽電池は、シリコンなどの無機太陽電池と比較して簡便かつ安価に作成できることに加え、軽量・フレキシブルなどの特性を生かした新たな太陽電池の活用が期待できるためである。ただし、エネルギー変換効率が低い(10%程度)のため、有機薄膜太陽電池の実用化にはエネルギー変換効率の向上が望まれている。エネルギー変換効率向上のためには、有機薄膜太陽電池のメカニズムを解明し、開発・設計に生かせるシミュレーション技術の開発が必要不可欠となっている。有機薄膜太陽電池のメカニズムは大きく分類して、①太陽光吸収(励起子生成)、②生成した励起子のドナー・アクセプター界面への拡散、③アクセプター領域への電子の移動、④電子とホールの分離からなる。

本研究では有機薄膜太陽電池の開発・設計に生かせるようなシミュレーション技術の開発を行った。特に、電荷分離過程の詳細なメカニズムが不明なことが、変換効率向上を妨げていた。これは、電荷分離過程をシミュレーションするための基礎的なシミュレーション法が整備されていなかったことが要因の1つとなっている。有機薄膜太

陽電池中では、ドナー・アクセプター界面のバンドオフセットから、電子に対して過剰なエネルギーが与えられ、電子は過剰エネルギーを持った状態(hot state)になると考えられる。この hot state が有機薄膜太陽電池中で電子とホールが分離するために重要な寄与をする。しかし、Onsager や Frenkel らの従来シミュレーション手法では、外部電場が電荷分離のためのドライビングフォースとして仮定されており、hot state を適切に取り扱えていなかった。そこで、本研究では、hot Charge Transfer (CT) state を扱えるシミュレーション手法を新たに開発することによって、電子とホールの分離過程を詳細に調べた。その結果、ホールと電子が効率的に分離するためには、hot CT state (バンドオフセット)と、デバイスの次元性が協調的に作用することが重要であることを見出した。さらに、エネルギー変換効率をシミュレーションするための方法論を構築した。開発を行った手法は有機薄膜太陽電池のダイオードモデルをベースとしているが、hot CT state を扱えるようにモデルを拡張した。結果、hot CT 状態とアクセプター材料の次元性がデバイスの性能を向上させるために重要な働きをしていることを見出した

また、有機材料の探索のためのシステムを構築し、公開した(<http://pccdb.org>)。開発したシステムでは、現在のところ約 200 万分子の第一原理計算 (B3LYP) 法によって得られた計算結果を検索することが出来る。従来の第一原理計算では、分子を指定してから電子状態を得るが(順問題)、開発した web システムを用いれば、HOMO-LUMO gap や励起エネルギーに関するプロパティ値を指定することによって分子を探索すること出来る。いわば、構築したシステムを用いることによって、電子状態に関する逆問題を解くことが可能となる。公開したシステムは有機薄膜太陽電池材料に必ずしも特化したものではないが、太陽電池で使われているポリマー材料のビルディング・ブロックの設計等にも応用可能であると考えられる。

今後は、有機薄膜太陽電池のシミュレーション技術および第一原理計算といった順問題を扱う手法に加えて、電子状態に関する検索システムを中心とした逆問題を扱う手法を複合的に用いることによって、より効率の高い有機薄膜太陽電池の開発を行っていく。

1. T. Shimazaki and T. Nakajima, "Theoretical Study on Hot Charge-Transfer States and Dimensional Effects of Organic Photocells based on the Ideal Diode Model", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**, 12517, 2017.
2. T. Shimazaki, K. Kitaura, D. G. Fedorov, and T. Nakajima, "Group molecular orbital approach to solve the Huzinaga subsystem self-consistent- field equations", *J. Chem. Phys.*, **146**, 084109, 2017.
3. T. Shimazaki and T. Nakajima, "Application of the dielectric-dependent screened exchange potential approach to organic photocell materials", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **18**, 27554, 2016.
4. T. Shimazaki and T. Nakajima, "Theoretical study on the cooperative exciton dissociation process based on dimensional and hot charge-transfer state effects in an organic photocell", *J. Chem. Phys.*, **144**, 234, 2016.
5. T. Shimazaki and T. Nakajima, "Theoretical study of exciton dissociation through hot states at donor-acceptor interface in organic photocell", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **17**, 12538, 2015.
6. M. Nakata and T. Shimazaki, "PubChemQC Project: A Large-Scale First-Principles Electronic Structure Database for Data-Driven Chemistry", *J. Chem. Inf. Model.*, **57**, 1300, 2017.
7. Public Computational Chemistry Database (PCCDB) project. A project web site is opened at <http://pccdb.org>. The query system to search molecules (solve inverse problems) based on our database is available at http://pccdb.org/search_pubchemqc/query.