Efeito de desordem energética na dinâmica de éxcitons em cristais de tetraceno

Marina Pinheiro Dourado^{1*} (dourado.marina@hotmail.com) (PG), Demétrio Antônio da Silva Filho¹ (PQ), Leonardo Evaristo de Sousa¹ (PG), Pedro Henrique de Oliveira Neto¹ (PQ).

¹Instituto de Física, Universidade de Brasília, 70919-970, Brasília, Brasil.

Palavras-chave: tetraceno, espectro de emissão, desordem.

Introdução

A eficiência de dispositivos tais como células fotovoltaicas e *LEDs* está relacionada à dinâmica de éxcitons dentro do material. Mesmo sendo estudado teoricamente durante décadas, a observação de difusão desses e dos efeitos de desordem na transferência de energia ainda são recentes^[1]. Akselrod *et al.* verificaram dois tipos preferenciais de transporte dessas quase-partículas em cristais moleculares de tetraceno. Além disso, o estudo mostra, através dos espectros de absorção e emissão, como a transferência de energia é impedida por efeitos de desordem. Neste trabalho, estudamos a desordem energética provocada pela atenuação no espectro de emissão de cristais de tetraceno.

Metodologia

Na primeira etapa do estudo, calculamos a geometria de equilíbrio do tetraceno, tanto para o estado fundamental (S0), quanto para o primeiro estado excitado (S1). Para isso, foram realizados cálculos, no programa *Gaussian 09*^[2], de otimização e frequência para cada estado usando os funcionais B3LYP, M062X e WB97XD dentro da teoria da funcional densidade com a base 6-31G (d,p). Uma vez encontradas as geometrias de equilíbrio, obtivemos os espectros de emissão e absorção através do *software* *Newton-X*^[3].

Resultados e Discussão

Em cristais de tetraceno, a transferência de energia é do tipo Förster. Isso foi verificado devido à presença de sobreposição dos espectros de absorção e emissão. Como esse mecanismo é dado por interação dipolo-dipolo entre moléculas a uma distância (raio de Förster)^[4], calculamos o momento de dipolo, o qual está associado ao fator de orientação do cristal, e o raio de Förster, através dos espectros.

O raio de Förster foi calculado por meio da equação abaixo, em que c é a velocidade da luz; k , um fator que varia de 0 a 2 e está relacionado com a orientação entre dipolos; n , índice de refração do meio e ω , frequência. A integral foi avaliada numericamente na região de *overlap* entre os espectros de emissão e absorção $I_D(\omega)$ e $\alpha_A(\omega)$ respectivamente.

$$R_F^6 = \tau_D^0 \frac{9c^4 k^2}{8\pi n} \int_0^\infty \frac{d\omega}{\omega^4} I_D(\omega) \alpha_A(\omega)$$

Posteriormente, simulamos pela atenuação do espectro de emissão e verificamos a sua influência no raio de Förster. Por fim, o estudo acerca da dinâmica é feito pelo Monte Carlo cinético, onde encontramos o comprimento de difusão do éxciton e a difusividade.

Conclusão

Através de atenuação do espectro de emissão de cristais de tetraceno, observamos como a dinâmica de éxcitons nesse material é influenciada pelos efeitos de desordem energética. Além disso, obtemos dados que permitem compreender o funcionamento de materiais com mecanismo de transferência de Förster.

Agradecimentos

Os autores agradecem à CAPES, à FAP-DF e ao CNPq o apoio financeiro.

Referências

- [1] AKSELROD, G. M.; et al. **Visualization of exciton transport in ordered and disordered molecular solids**. Nature Communications, volume 5, 2014.
- [2] FRISCH, M.J.; et al. Gaussian 09, Revision A.02. In., Series Gaussian, Inc., Wallingford CT; 2009
- [3] BARBATTI, M; et al. **Wiley Interdiscip. Rev.: Comput. Mol. Sci.** 4, 26; 2014.
- [4] DE PAULI, M. . **Fenômenos de interfaces e aplicações em sistemas orgânicos**. Tese de Doutorado. Universidade Federal de Minas Gerais, 2016.