

山下晃一

東京大学大学院工学系研究科
教授

エネルギー変換計算科学による相界面光誘起素過程の設計

§ 1. 研究実施体制

- (1) 「東京大学・山下」グループ
 - ① 研究者代表者: 山下 晃一 (東京大学大学院工学系研究科、教授)
 - ② 研究項目: 有機系太陽電池のエキシトン・ダイナミクスとナノスケールモルフォロジー
 - ・ 有機薄膜太陽電池および有機無機ハイブリッド太陽電池のエキシトンダイナミクスのための分子動力学計算および量子化学計算

- (2) 「東京大学・久保」グループ
 - ① 主たる共同研究者: 久保 貴哉 (東京大学先端科学技術研究センター、特任教授)
 - ② 研究項目: 有機系太陽電池における遷移金属酸化物表面構造の設計と材料探索
 - ・ 半導体によるナノ構造構築と物性評価
 - ・ ハイブリッド構造の構築及び物性評価
 - ・ 太陽電池の作製および特性評価

- (3) 「京都大学・伊藤」グループ
 - ① 主たる共同研究者: 伊藤 紳三郎 (京都大学大学院 工学研究科、教授)
 - ②
 - ・ 有機半導体界面における電荷対再結合機構の解明
 - ・ 有機半導体界面における高効率自由電荷生成機構の解明
 - ・ 共役高分子相分離薄膜の高効率電荷輸送構造の評価

- (4) 「東京大学・廣瀬」グループ
 - ① 主たる共同研究者: 廣瀬 靖 (東京大学理学系研究科、准教授)

- ② 研究項目: 光触媒材料のエピタキシャル薄膜合成と物性評価による理論計算の実証
 - ・遷移金属酸化物光触媒の薄膜合成
 - ・酸化物-窒化物混晶半導体のエピタキシャル成長

- (5) 「日本女子大学・村岡」グループ
 - ① 主たる共同研究者: 村岡 梓 (日本女子大学、講師)
 - ② 研究項目: 有機系太陽電池のエキシトン・ダイナミクスとナノスケールモルフォロジー
 - ・有機薄膜太陽電池のエキシトンダイナミクスのため量子化学計算

§ 2. 研究実施の概要

太陽光エネルギーの利用拡大のカギを握る技術を“相界面光誘起素過程”の観点からとらえ、各技術で求められる相界面光誘起素過程の制御と最適化について理論化学・計算化学先導により研究を行っている。相界面における光誘起素過程として『エキシトンの生成と解離』、また『生成したキャリアの緩和過程』に注目し、電子構造論・反応論に基づいた分子レベルの基礎学理を確立し、さらに超高速計算に基づく計算科学と実験実証により高効率光エネルギー変換に向けた高機能相界面を探索・創出する。これまで有機系太陽電池と水分解光触媒を取り上げエネルギー変換計算科学を推進してきたが、H27年度後半以降は、有機薄膜太陽電池・有機無機ハイブリッド太陽電池用の界面材料に注力することとし、山下 G による基礎学理および界面設計指針について久保 G、伊藤 G、廣瀬 G が実証実験を行っている。

【有機薄膜太陽電池】

山下 G では、非局在分子軌道に光励起する時、誘起双極子モーメントが大きくなり、短絡電流密度および変換効率も大きくなることを見出した^{Y1,Y2}。この結果はエキシトン解離が hot process で起きていることを意味し、高効率化の指針になるものである(図 1)。

hot process については伊藤 G の検証実験をおこない、村岡 G によってさらなる発展的研究を継続して行っている。さらに、エキシトン解離と競合する生成キャリアの再結合過程の研究においては、分子軌道の非局在性とドナー/アクセプター間での分子軌道の重なりが速度定数のオーダーを主に決めることを見出し、伊藤 G の過渡吸収実験によって実証を行った。

村岡 G は、山下 G と伊藤 G が提案・実証してきた hot process の優位性をより発展させ、光エネルギー変換に有効に働く起因子、自由電子キャリアのメカニズムを解明するために、光電変換指標が異なる PTB 系 π 共役高分子の解析を行った。その結果、hot process によるエキシトン解離がより広範な分子群にたいして進行していることを見出している。伊藤 G では、上述の実証に加えて、共役高分子の中でも、高い正孔移動度を有する P3HT と電子移動度を有する N2200 を対象とし、高効率電荷輸送を担う薄膜の微細構造を電流計測原子間力顕微鏡(C-AFM)により明らかにし、P3HT/N2200 ブレンド薄膜系へと研究を展開することで、D/A 相分離膜に固有の正孔・電子両輸送構造を数十 nm の空間分解能で可視化することに世界で初めて成功した。

【有機無機ハイブリッド太陽電池】

山下 G ではペロブスカイト構造材料における電荷分離などの理論計算を精力的に進めており^{Y3}、その結果に基づき、久保 G が、有機金属ペロブスカイト($\text{PbCH}_3\text{NH}_3\text{I}_{3-x}\text{Cl}_x$)を中心にナノ構造体の構築と構造評価を行った。表面の回折パターンは、ペロブスカイト層表面構造を反映した金属薄膜表面形状に起因し、様々なペロブスカイト層の諸物性と粒界構造との比較検討が可能であると見出した。廣瀬 G は、酸化物半導体における光励起キャリアのダイナミクスに注目し、バンドエンジニアリングの確立および生成キャリアの高効率利用に向けた指針確立のため、山下 G により提案さ

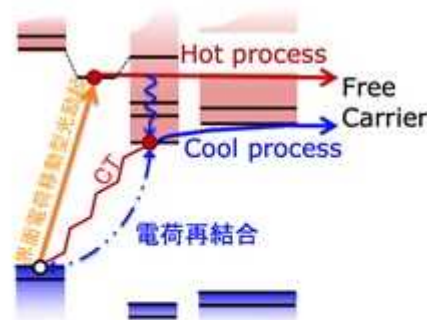


図1エキシトン解離におけるhot processとcool processの概略

れた物質の高品質な単結晶薄膜を反応性パルスレーザー堆積法やスパッタリング法により合成した。

【代表的な原著論文】

- [Y1] Mikiya Fujii, Woong Shin, Takuma Yasuda, Koichi Yamashita, "Photon-absorbing Charge-bridging States in Organic Bulk Heterojunctions Consisting of Diketopyrrolopyrrole Derivatives and PCBM", *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 18, pp.9514 - 9523, 2016
- [Y2] Shohei Koda, Mikiya Fujii, Shintaro Hatamiya, Koichi Yamashita, "Dipole Analyses for Short-Circuit Current in Organic Photovoltaic Devices of Diketopyrrolopyrrole-Based Donor and PCBM", *Theor. Chem. Acc.*, 135, 115-124, (2016)
- [Y3] Giacomo Giorgi, Koichi Yamashita, "Zero-Dimensional Organic-Inorganic Halide Perovskite Modeling: Insights from First Principles", *Journal of Physical Chemistry Letters*, vol. 7, pp.888-899, 2016, Perspective article