

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) 「京都大学・大北」グループ

- ① 主たる共同研究者: 大北 英生 (京都大学大学院工学研究科、教授)
- ② 研究項目: 有機半導体界面における電荷分離・再結合過程の分光学的解明
 - ・ 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
 - ・ 共役高分子相分離膜の高効率電荷輸送構造の評価

(3) 「奈良先端大・辨天」グループ

- ① 研究代表者: 辨天 宏明 (奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科、准教授)
- ② 研究項目
 - ・ 非フラーレン型有機薄膜太陽電池の特性解析

(4) 「東京大学・廣瀬」グループ

- ① 主たる共同研究者: 廣瀬 靖 (東京大学大学院理学系研究科、准教授)
- ② 研究項目
 - ・ 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を利用したバンドエンジニアリング
- ・酸化物-窒化物混晶半導体の光励起キャリアダイナミクスの評価

(5)「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

(6)「日本女子大学・村岡」グループ

- ① 主たる共同研究者:村岡 梓 (日本女子大学理学部、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、研究を推進してきたが、H28 年度は、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し、理論計算による最適化と実験による実証を両輪に研究を推進した。

【有機薄膜太陽電池】

本チームは電子が非局在分子軌道に光励起され、光誘起双極子モーメントが大きくなることで、短絡電流密度および変換効率が大きくなることを見出してきた。これはエキシトン解離が hot process で起きているためと考えられる(図 1 参照)。そこで、本チームでは大規模理論計算により hot process の電荷分離経路を理論的に解明し、hot process がエキシトン解離の主経路であることを過渡吸収実験から実証した。本結果は光電流生成に関する

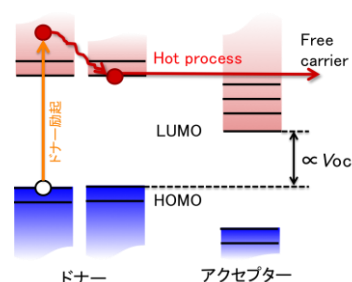


図 1 Hot process の概念図

学理でありながら、光起電力を増大する分子設計指針を新たに見出すことに繋がった。さらに、nm から数十 nm における相分離構造が光電流生成に与える影響について、粗視化 Monte Carlo 法[1]と電流計測原子間力顕微鏡 [2]により p/n 接合界面では正孔輸送性が低く電子受容分子が正孔輸送を阻害していることを明らかにした。

【有機無機ハイブリッド太陽電池】

ペロブスカイト構造材料における構造および電荷分離の理論計算にもとづき、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。その結果、表面回折パターンは、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。さらに、バンドエンジニアリングおよび生成キャリアの高効率利用の確立のため、光励起キャリアダイナミクスの理論解析をもとに提案された高品質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】

[1] Eisuke Kawashima, Mikiya Fujii, Koichi Yamashita, "Thermal effect on the morphology and performance of organic photovoltaics", Phys. Chem. Chem. Phys., 18[38], 26456–26465 (2016).

[2] Miki Osaka, Hiroaki Bente, Hideo Ohkita, Shinzaburo Ito, "Intermixed Donor/Acceptor Region in Conjugated Polymer Blends Visualized by Conductive Atomic Microscopy", *Macromolecules*, 50[4], 1618–1625 (2017).