

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)「山下」グループ

- ① 研究代表者: 山下 晃一 (東京大学大学院工学系研究科、教授)
- ② 研究項目
  - ・ 有機系太陽電池と光触媒相界面におけるエキシトン・ダイナミクスとバンドエンジニアリングの設計制御

### (2)「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
  - ・ 太陽電池や機能材料作製及び特性評価

### (3)「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 研究項目
  - ・ 有機ヘテロ界面の精密設計と構造評価
  - ・ 有機バルクヘテロ接合界面における電荷分離、電荷再結合過程の分光研究
  - ・ 共役高分子ナノ相分離構造の評価

### (4)「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、助教)

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

## §2. 研究実施の概要

本研究課題山下 G は、有機薄膜太陽電池・有機無機ハイブリッド太陽電池・光触媒の界面材料について理論計算を用いて創電過程の解明と有望な材料候補の提案を行うことを目的とする。

高効率有機薄膜太陽電池については材料分子の理論設計を行い、特に分子構造レベルで候補分子を特定することにより実際に合成可能な分子としての提案を狙いとしている。これまで、種々の有機薄膜太陽電池の異種有機分子界面について電子状態計算、マーカス理論、量子マスター方程式法を用いてドナー励起状態から電荷移動状態への電子緩和ダイナミクスを解析し、H25年度は最適なドナー分子の理論的設計を進めた。また伊藤 G と共同で PCBM/P3HT 系において側鎖長や PCBM の分散濃度を変更した際に電荷移動状態が如何に変化するかの解析と、久保 G が合成する酸化亜鉛ナノロッド/P3HT 系に対応した界面モデルについて基底状態および励起状態の電子状態計算を行った。

光触媒相界面については、高効率水分解光触媒の開発を目標とし、光触媒となる半導体材料の基礎物性に関する理論的研究に取り組んだ。密度汎関数理論及び多体摂動理論に基づく第一原理計算手法を用いて、化合物半導体の混晶構造と、その電子状態や光吸収特性の関係について調べ、理論計算の結果から得られた知見を薄膜合成を行っている廣瀬 G に提案し、理論と実験の協力によって光触媒材料の物性制御の手法確立を目指す。研究対象として、可視光に応答する水全分解型光触媒として知られる  $(\text{GaN})_{1-x}(\text{ZnO})_x$  に着目し、多体摂動理論の手法によって正確な励起状態計算を実施し、様々な混晶構造の計算結果を通して、光吸収特性を決定する因子の解明を目指した。

久保 G は、山下 G の理論計算により有望視される相界面材料を用いて、有機分子による金属酸化物表面を修飾するなどして、ハイブリッド構造を有する光誘起電子移動系を構築し、その物性や機能性を評価し、太陽電池や光触媒など機能性材料への応用を行う。H25年度は、ハイブリッド構造を作製するための基盤材料として、酸化亜鉛ナノワイヤからなるアレイ構造の構築ならびに、それらと導電性高分子材料や量子ドットとのハイブリッド構造を構築し、光物性研究を進めた。

伊藤 G は、有機相界面の実体モデル系構築と分光解析とを実施することにより、山下 G が主導する相界面の理論設計、光誘起素過程の計算化学に対する実験的検証を行う。具体的には、有機、無機半導体材料を用いた積層型ヘテロ界面の精密設計と分光測定により界面電子移動反応の基礎的知見を確立する。また、有機系太陽電池におけるバルクヘテロ接合界面の構造評価を行うとともに、界面電荷分離・再結合過程を分光的手法により解明することで、光電変換の高効率化につながる相分離界面構造を実証する。平成 25年度は ①有機ヘテロ界面の精密設計 ② P3HT/PCBM ブレンド膜系における電荷再結合 ③ P3HT 薄膜のマイクロ電荷輸送特性の評価を実施した。

廣瀬 G は、高効率な光触媒材料の開発を目標とし、山下 G により提案さ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する。具体的には、酸化物-窒化物混晶半導体のバンドエンジニアリングに注目し、吸収・発光スペクトルや XPS・X線吸収などの分光測定を用いて理論計算の結果を検証する。H25年度は、H24年度に引き続き  $(\text{GaN})_{1-x}(\text{ZnO})_x$  混晶薄膜の結晶成長に取り組んだ。合成に関する大きな成果として GaN ターゲ

ットとZnOターゲットの交互堆積により、GaN:ZnO比の異なる一連の $(\text{GaN})_{1-x}(\text{ZnO})_x$ 混晶薄膜のエピタキシャル成長に成功した。

### §3. 成果発表等

#### (3-1) 原著論文発表

##### 論文詳細情報(国際)

B-1. Haibin Wang, Takaya Kubo, Jotaro Nakazaki, Takumi Kinoshita, Hiroshi Segawa, “PbS-Quantum-Dot-Based Heterojunction Solar Cells Utilizing ZnO Nanowires for High External Quantum Efficiency in the Near-Infrared Region”, J. of Phys. Chem. Lett., vol. 4, pp. 2455–2460, 2013 (DOI: 10.1021/jz4012299).

C-1. Miki Osaka, Hiroaki Benten, Li-Ting Lee, Hideo Ohkita and Shinzaburo Ito, “Development of Highly Conductive Nanodomains in Poly(3-hexylthiophene) Films Studied by Conductive Atomic Force Microscopy”, Polymer, vol. 54, pp.3443-3447, 2013 (DOI: org/10.1016/j.polymer.2013.04.061)