

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 9 月 4 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2019

課題番号：16H03867

研究課題名(和文)新規太陽エネルギー変換材料における光励起キャリア物理の探求

研究課題名(英文) Physics of photoexcited carriers dynamics in novel light-energy conversion materials

研究代表者

小澤 健一 (Ozawa, Kenichi)

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：00282822

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：時間分解X線光電子分光(TRXPS)は、物質表面での励起キャリアの挙動を元素選択的な測定から明らかにできる実験手法である。本研究では、TRXPSを有機太陽電池、量子ドット太陽電池、および強誘電体太陽電池に適用し、ナノ秒からマイクロ秒での光励起キャリアのダイナミクスを実時間追跡した。励起キャリアの挙動を、太陽電池の構成要素、構造、次元性(サイズ)、およびこれらの因子に依存する価電子構造と相関付けて理解できることを示した。さらに強誘電体太陽電池では、自発分極を利用したポテンシャル制御で励起キャリアの長寿命化が成功した。これらの成果は、太陽電池設計において高変換効率化につながる指針となる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、様々なタイプの太陽電池のキャリアダイナミクスを同一手法で比較することで、太陽電池の高効率化に強く関わる因子を浮かび上がらせることができた。この成果は、高効率化を目指した太陽電池の材料探索や構造制御研究に有効な指針を与えよう。太陽光をエネルギー源として利用する太陽電池は、持続可能社会の実現に重要な役割を果たすことから、本研究の社会的意義は高いと言える。学術的には、複雑な構造を持つ複合材料で励起キャリアを実時間追跡するために時間分解X線光電子分光法の元素選択性が有効であることを証明できた点で意義深い。本手法の普及は、光電デバイスの理解を深化させるために不可欠であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Time-resolved X-ray photoelectron spectroscopy (TRXPS) is a powerful tool to elemental-selectively pursuit excited carriers on solid surfaces. The present study focuses on organic photovoltaics (PV), quantum-dot PV, and ferroelectric PV, and photoexcited carrier dynamics has been examined with real time measurements by TRXPS. Carrier dynamics in these PVs can be consistently understood based on the compositions, structures, dimensions (sizes), as well as electronic structures of the PVs. Furthermore, elongation of the excited carrier lifetimes has been successful by controlling the potential profile utilizing spontaneous polarization in the ferroelectric PV. Our results will be useful for designing novel PVs with a high light-electricity conversion efficiency.

研究分野：表面科学

キーワード：太陽電池 キャリアダイナミクス 時間分解測定 光電子分光法 シンクロトロン放射光 キャリア寿命 エキシトン 表面界面物性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

1. 研究開始当初の背景

持続可能社会の実現には、太陽光をエネルギー源として利用することが不可欠である。太陽電池はその解決のための重要なデバイスであることから、高い光電変換効率を目指した材料探索や構造制御の研究開発が精力的に進められてきた。このような研究開発では光励起キャリア(電子と正孔)のダイナミクス制御が不可欠であるため、キャリアダイナミクス物理の理解を深化させることが必要不可欠である。

光励起キャリアのダイナミクス研究には、紫外可視レーザーを用いたポンプ・プローブレーザー分光による実時間観測が主流である。このような研究では、プローブ光レーザーのエネルギーが低い(紫外光)、価電子バンドおよび伝導バンドのキャリアを直接観測している。しかし、こういったバンドの波動関数は空間的に広がっているため、材料中のキャリア輸送を追跡することは困難である。これに対して、プローブ光に大強度 X 線パルスを用いた時間分解 X 線光電子分光 (TRXPS; time-resolved X-ray photoelectron spectroscopy) や時間分解 X 線吸収分光 (TRXAS; time-resolved X-ray absorption spectroscopy) は元素選択的な物性評価ができることから、複数の物質から構成される太陽電池などの半導体デバイス中で移動する励起キャリアを実時間で追跡する手法としては極めて強力である。大強度 X 線パルスにはシンクロトロン放射光の利用が理想的であるため、TRXPS や TRXAS 実験は主に放射光施設で実施されている。しかし、測定システムの特異性、放射光施設利用のために実験期間が限定されている、研究の歴史が浅く研究者数が少ない、といったことが原因で、これらの実験法はさほど積極的に活用されてこなかったというのが現状であった。

2. 研究の目的

本研究は、TRXPS を複雑な多層構造を持つ太陽電池において、光励起キャリアの生成から消失までの過程が何処で起こり、その時間スケールがどのくらいなのかを突き止める。太陽電池では、「電子 - 正孔 (e-h) 対の発生と拡散」、「電荷分離」、「キャリア輸送」の素過程が e-h 再結合過程と競合しつつ発電に寄与する。これらの仮定は太陽電池材料の光吸収層・界面・キャリア輸送層の別々の場所で進行するが、本研究では TRXPS によりこれらの素過程を分離し、各過程のキャリア寿命を解析する。その上で、様々なタイプの太陽電池を検証することで、材料依存性、構造依存性を明らかにして、高効率太陽電池材料の設計への速やかなフィードバックを可能とするデータベース構築を目指す。

本研究ではさらに、太陽電池材料の検証と同時に TRXPS 測定システムの高度化と実験技術の成熟化も推し進める。世界的に見て TRXPS 測定装置が稼働している放射光施設は少なく、ユーザーグループも多くない。そこで、海外のユーザーと連携してそれぞれが持つノウハウを統合しつつ問題解決に取り組む。それにより、TRXPS 技術の世界的な普及を図り、キャリアダイナミクス研究の新局面を切り開いてゆくことを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は、(1) TRXPS システムの高度化、(2) 試料作製、(3) TRXPS 実験の遂行とデータ解析、およびデータベース化、(4) 太陽電池設計へのフィードバックに分割して進めた。

TRXPS システムの高度化と実験は、大型放射光施設 SPring-8 の東京大学放射光アウトステーション物質科学ビームライン BL07LSU で実施した。実験では、高度化の一環として導入した 208kHz の高繰返し周波数レーザーをポンプ光、放射光パルスをプローブ光としたポンプ・プローブ法で TRXPS スペクトルを取得した。ポンプ光は ~400 nm (3.1 eV)、あるいは ~800 nm (1.55 eV) のフェムト秒レーザーを使い分け、プローブ光は 275 - 600 eV の軟 X 線であった。ポンプ光パルスにより励起状態を作り、ポンプ光照射から 0.1 ns 後から最大 4.8 μs 後までの時間(遅延時間)にプローブ光を照射することで、励起状態の時間変化を追跡した。励起状態は、TRXPS スペクトルで観測される太陽電池を構成する元素の内殻準位ピークのシフトから評価した。そして、ピークシフトの時間変化から、励起状態の発生と e-h 再結合速度を求めた。

本研究では、太陽電池として(1)有機太陽電池、(2)量子ドット太陽電池、(3)強誘電体太陽電池を検証した。有機太陽電池は、超高真空中で清浄化したルチル型 TiO₂(110)単結晶表面上に、やはり真空中で n 型有機半導体である C₆₀ と p 型有機半導体であるフタロシアニン[銅フタロシアニン (CuPc) とチタニルフタロシアニン (TiOPc)]を層状に蒸着することで作製した。有機分子の蒸着量は一分子層程度の膜厚になるように調整した。フタロシアニンの中心原子団の違い、ポンプ光エネルギーの違い、C₆₀ とフタロシアニンの積層順を変えることで生ずるキャリアダイナミクスの違いに着目した測定を行った。

量子ドット太陽電池では、量子ドット (QD; quantum dot) として PbS を使い、これをルチル型 TiO₂(110)単結晶表面にスピコートすることで調整した。平均粒径 3 nm と 9 nm の二種類の PbS-QD を用意し、ポンプ光により作り出した励起状態が粒径にどのように依存するのかを検証した。PbS-QD はオレイン酸が保護膜として使われていたが、スピコート後に分子鎖の短い 3-メルカトプロピオン酸に置換した。これにより PbS で発生した励起キャリアが基板に移動しやすくなるようにした。

強誘電体太陽電池では、ペロブスカイト構造を持つ BaTiO₃ の(001)単結晶表面に、パルスレーザー堆積法により(001)配向したアナターゼ型 TiO₂ (a-TiO₂) 薄膜を 10 nm の厚さで成長させたものを用いた。強誘電体タイプの太陽電池にするにはこれを基板とし、この上に有機材料なり QD なりを担持させれば良い。ただし TiO₂/BaTiO₃ 接合系は先行研究が全く行われていなかったため、本研究ではまず基板の光応答性を検証することとした。ここでは、400 nm のポンプ光照射により a-TiO₂/BaTiO₃(001)の表面で発生する光起電力の消失過程を評価した。実験では、BaTiO₃ の自発分極がない状態と自発分極のある状態で表面光起電力 (SPV; surface photovoltage) の減衰速度、すなわち光励起キャリアの寿命を比較した。BaTiO₃(001)の自発分極は、試料表面側 (TiO₂ 成膜側) に鏡面研磨したステンレス製電極を押し当て (試料裏面側はグラウンド)、電極に +400 V、-200 V の電位をかけることで発生させた。

4. 研究成果

4-1. 有機太陽電池

フタロシアニンとフラーレンは有機太陽電池のモデル材料として、精力的に研究されている。フタロシアニンには中心原子団の種類に依らず Q バンドと呼ばれる吸収帯が可視光領域にあるため、太陽電池の受光材料に適している。フタロシアニンが青系統の発色をしているのは Q バンドによるものである。C₆₀ は 345 nm にシャープな吸収ピーク (HOMO → LUMO+1 励起)、450 nm を中心にブロードな吸収ピーク (HOMO → LUMO+1、あるいは HOMO-1 → LUMO) がある。C₆₀ が赤みを帯びているのは、後者の吸収があるためである。

フタロシアニンとフラーレンで構成される有機太陽電池では、フタロシアニンの光吸収によりエキシトンが形成され、フタロシアニン/フラーレン接合界面でエキシトンが解離した結果、フタロシアニンとフラーレンは光吸収後には過渡的に陽イオンと陰イオンになると予想される。この過渡状態を TRXPS で観測できるかを検証した結果が Fig. 1 である。CuPc/C₆₀/TiO₂(110) (TiO₂ 基板の上に C₆₀ 層を蒸着させ、その上に CuPc 層を蒸着させた系) の C 1s TRXPS スペクトルであり、402 nm のポンプ光レーザーを照射しない状態と、照射直 1 ns 後の状態を比較している。C 1s スペクトルは、284.5 eV 付近に極大を持つ C₆₀ と、284 eV 付近の CuPc に由来する成分に分離できる。ポンプ光照射の有無に依らずスペクトルはほぼ同一形状であるが、詳細な検証により、ポンプ光照射で二成分ともに高結合エネルギー側にシフトすることが明らかとなった。シフト量は 10 - 20 meV と非常に小さいが、ポンプ光照射の有無に応じてピーク位置が動き、さらにポンプ光強度に比例してシフト量が大きくなることから、このシフトは C₆₀ と CuPc の励起状態を反映していると結論した。

光電子スペクトルの高結合エネルギー側へのシフトは、原子の価電子密度の減少として解釈される。従って、C₆₀ と CuPc はともに過渡的にカチオンになったと推察される。なお、TiOPc を使って作製した有機太陽電池でも同様の結果が得られた。この結果は予想と反していたが、基板 TiO₂ 表面の電子状態と二種類の有機層の膜厚を考慮することで以下のように説明できる。Fig. 2 は、価電子バンド領域の光電子スペクトル測定から決定した CuPc/C₆₀/TiO₂ のエネルギーダイヤグラムである。TiO₂ は強い n 型半導体、C₆₀ も n 型半導体であるが、CuPc は p 型半導体に特徴的な電子構造を持つ。これを見ると、CuPc では光励起電子が C₆₀ の空準位に移動するとエネルギーの利得があるため、CuPc のカチオン化は説明可能である。一方、C₆₀ もポンプ光照射により電子励起が起こり、また CuPc からの遷移もあるが、これらの電子が TiO₂ の CBM に速やかに遷移すると系の安定化に寄与する。従って、C₆₀ もカチオンになったと考えている。

Fig. 3(a) は、CuPc/C₆₀/TiO₂ 系と TiOPc/C₆₀/TiO₂ 系のポンプ光照射による C₆₀ の C 1s ピークシフト量を遅延時間に対してプロットしたものである (フタロシアニンのデータは誤差が大きく明確な時間変化を読み取ることができなかった)。ポンプ光照射から 0.1 ns 後には既に最大のシフト量となり、10 - 100 ns を境にして減衰している。シフト量が C₆₀^{δ+} (カチオン化した C₆₀) の数密

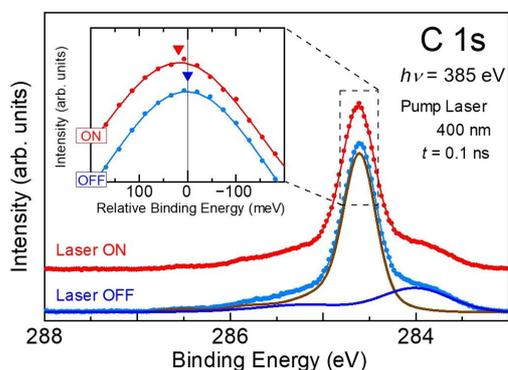


Fig. 1: C 1s spectra of CuPc/C₆₀/TiO₂(110) with and without the pump laser irradiation.

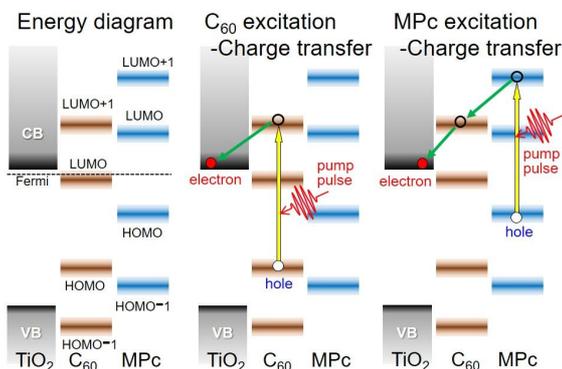


Fig. 2: An energy diagram of CuPc/C₆₀/TiO₂(110) and possible excitation-charge transfer processes.

度に比例するとすれば、 C_{60} に形成されたエキシトンが解離して電子が TiO_2 に遷移するのは 100 ps 以内であり、10 - 100 ns で e-h 再結合により $C_{60}^{\delta+}$ の消失が起きていることが分かる。ただし、この時間オーダーで再結合するキャリアはごく一部であり、大半は 4 μs 以上の長い寿命を持つ。

このようなキャリアの振舞いは、フタロシアニンとフラーレンの積層順を変更すると大きく変わる。Fig. 3(b)は、 $C_{60}/CuPc/TiO_2$ 系における C_{60} の C 1s ピークシフト量を遅延時間に対してプロットしたものである（この系でも CuPc と C_{60} はともにカチオンになる）。シフト量は、遅延時間 0.1 ns では 5 meV、そこから大きくなり、2 - 10 ns で最大となった後に 100 - 200 ns で減衰する。4 μs でもピークシフトが残るので、この系でも長寿命キャリアがあることが確認できる。積層順を変えることで生ずる最大の特徴は 2 ns 以下の立ち上がりであり、 $C_{60}^{\delta+}$ が徐々に増えていることが示唆される。エキシトン解離に伴う C_{60} TiO_2 の電子遷移が抑制されたためであろう。立ち上がり時間が解離の時定数とすると、0.6 ns という結果が得られた。CuPc/ C_{60}/TiO_2 系では 100 ps 以内に解離することを考えると大幅に増大している。一方、e-h 再結合の時定数は 180 ns であった。CuPc/ C_{60}/TiO_2 系では 95 ns であったので、 C_{60} と TiO_2 間のキャリア遷移が強く抑制されていることが確かめられた。

フタロシアニンとフラーレンから構成される有機太陽電池では、エキシトン解離によりキャリア（電子と正孔）が形成されれば、（一部はナノ秒オーダーで消失するが）多くはマイクロ秒の寿命を持つことから、発電効率は本質的に良いと言える。本実験で検証した有機層の膜厚は非常に薄いため（1 - 2 分子層）、二種類の有機分子共にカチオンになったが、これは色素増感太陽電池に似た挙動である。このことを念頭に置くと、色素増感太陽電池でもフタロシアニンやフラーレンは良い増感剤として利用できるが、複数の種類の材料を利用する場合には積層順番が重要であることが明らかとなった。

4-2 量子ドット太陽電池

QD（量子ドット）太陽電池は、QD と光の相互作用の特徴である多重励起を利用することで高い光電変換効率を実現しようとしている。QD 太陽電池の研究では、QD の作成法や光学物性に着目した研究が精力的に行われてきたが、QD で発生したエキシトンの分離過程や、フリーとなったキャリア（電子と正孔）の再結合過程については不明な点が多い。本研究では、光物性が良く分かっている p 型半導体である PbS-QD を n 型半導体である $TiO_2(110)$ 基板に担持させた系で、PbS-QD で発生した光励起電子が p/n 接合界面を横断して電荷分離・再結合する過程を検証した。

Fig. 4(a)は、平均粒径 3 nm の PbS-QD を担持させた PbS-QD/ $TiO_2(110)$ 系のポンプ光未照射時の Pb 4f および S 2p スペクトルである。S 2p スペクトルには 4 つのピークが観測されているが、これはスピン軌道分裂した $2p_{3/2}$ と $2p_{1/2}$ 準位が 2 成分あることによる。低結合エネルギー側の成分は PbS に、高結合エネルギー側成分は保護基である 3-メルカトプロピオン酸に由来するものである。S の酸化物成分が見られないことや、Pb 4f ピークの高結合エネルギー側のテール強度が弱いことから、PbS-QD の酸化は抑制されていることが分かる。Fig. 4(b)は 800 nm (1.55 eV) のポンプ光照射から 1 ns 後に測定した Pb 4f と S 2p スペクトルである。ポンプ光未照射時のスペクトルと重ねて提示することで、Pb 4f と S 2p の両方のスペクトルにおいて、PbS に由来するピーク成分が高結合エネルギー側にシフトしていることが確認できる。ポンプ光照射によるシフトの方向から、光励起電子が PbS-QD から TiO_2 に遷移して、PbS-QD が過渡的にカチオンになったことが分かる。

Fig. 4(b)で観測されているシフトの大きさは ~100 meV である。400 nm のポンプ光を用いた時も同程度の光励起シフトが観測された。一方、Fig. 3 に示されたように、有機太陽電池では C_{60} やフタロシアニンのシフト量は 10 meV 程度である。光吸収する有機分子と PbS-QD の TiO_2 基板上での密度に違いがあるため、二つの太陽電池系を単純に比較することはできないが、QD の多重励起を示唆するよ

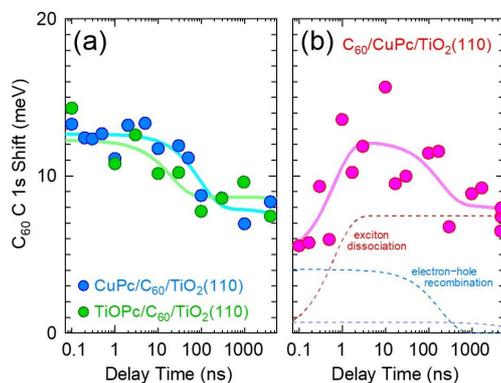


Fig. 3: Delay time dependences of the C_{60} C 1s peak in (a) MPC/ $C_{60}/TiO_2(110)$ (M = Cu and TiO) and (b) $C_{60}/CuPc/TiO_2(110)$.

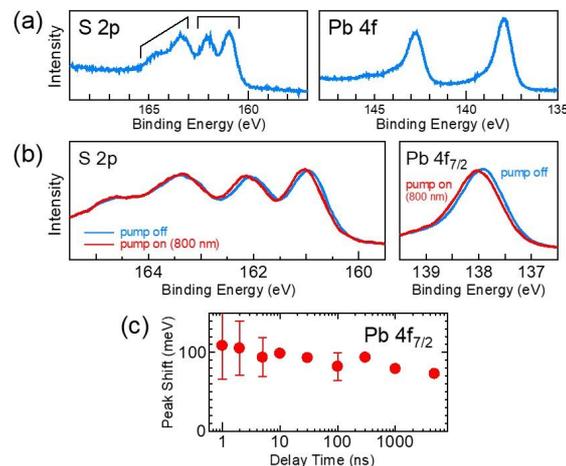


Fig. 4: (a) S 2p and Pb 4f spectra of PbS-QD (3 nm) in the ground state. The photon energy was 370 eV. (b) S 2p and Pb 4f spectra with and without the pump laser (800 nm) irradiation. (c) Delay time dependence of the Pb 4f peak.

うな結果が得られていると考えている。

Pb $4f_{7/2}$ ピークの光励起シフト量は、ポンプ光照射から 1 ns には最大となっており、時間の経過とともにゆっくりと減衰し、4.8 μ s 後に 70 meV になる (Fig. 4(c))。このことから、PbS-QD の励起キャリアについて次のことが分かる。まず PbS-QD 内で発生したエキシトンが分離 (正孔が PbS-QD に残り、電子は TiO₂ に遷移) するのは光照射から 1 ns 以内であり、非常に速い現象である。しかし、一旦解離したキャリアが再び再結合するのはゆっくりであり、TiO₂ から PbS-QD に電子が戻る、あるいは PbS-QD から正孔が TiO₂ に遷移する確率は非常に低いことが分かる。

非常に興味深いことは、QD の粒径の影響である。平均粒径が 9 nm の PbS-QD の場合は観測される光励起シフトは (800 nm ポンプ光照射後 1 ns の時) 50 meV 以下であった。従って、3 nm の PbS-QD を使った太陽電池は、大きなサイズの QD を使うより変換効率が高くなると言える。さらに、Fig. 4(c) に示されているようにこの太陽電池の e-h 再結合速度は遅い。以上から、3 nm PbS-QD/TiO₂ 系は太陽電池としてはフタロシアニン/フラーレン薄層有機太陽電池に比べて高い性能を持つことが期待される。

4-3 強誘電体太陽電池

電極に強誘電体を用いて、その自発分極を利用して光励起キャリアの挙動を制御することで、高変換効率を目指すのが強誘電体太陽電池である。本研究では、厚さ 10 nm の a-TiO₂ 薄膜を BaTiO₃(001) 表面に成長させたものを作製し、この表面での光励起キャリアの寿命が BaTiO₃ の分極の有無、および分極の向きによりどのように影響を受けるのかを検証した。

自発分極をしていない a-TiO₂(001)/BaTiO₃(001) 基板表面に 400 nm のポンプ光を照射し、600 eV のプローブ光で Ti 2p 内殻準位を観測すると、低結合エネルギー側への過渡的な光励起シフトが観測された。これは、TiO₂ 表面にバンドが下方に湾曲してしており、ポンプ光照射により SPV (表面光起電力) が発生したことを意味している。

シフト量は遅延時間 0.1 ns の時に約 0.15 eV であり、SPV は 0.15 V になる。+400 V と -200 V を印加した表面でも、Ti 2p ピークの低結合エネルギー側への 0.15 eV のシフトが観測された (遅延時間 0.1 ns)。自発分極の有無や分極の向きに依らず同程度の SPV が発生しているという事は、3 つの表面には同程度の下方バンドベンディングが形成されていることを意味する。

Fig. 5 は、3 表面で観測された SPV の遅延時間依存性を比較したものである。自発分極のない系では、遅延時間 0.5 ns 以内に SPV がゼロになる。この表面では、非常に速く e-h 対の再結合が起こり光励起キャリアが消失したことが分かる。一方、+400 V の印加で自発分極させたときには SPV は 1 ns でゼロになり、-200 V 印加表面では 10 ns でも完全にゼロにならなかった。以上の結果は、自発分極をした系では光励起キャリアの長寿命化が起きていることを示唆している。

表面で下方ベンディングが起きている表面で光照射により SPV が発生するのは、バンドベンディングのポテンシャルに沿って光励起電子が表面側に、正孔がバルク側に移動するためである。その後、熱拡散によって正孔がポテンシャル勾配に逆らって表面に拡散して、そこで電子と再結合すると SPV が消失する。BaTiO₃ に自発分極があると、a-TiO₂ 薄膜の接合界面側のバンド構造が表面側に比べて大きな影響を受けるので、正孔の挙動がキャリアの寿命を決めたと考えている。自発分極表面では、分極の向きに依らず長寿命化した真の原因は不明であるが、-200 V の印加で長寿命化を達成できたのは、TiO₂/BaTiO₃ 界面に向かって TiO₂ のバンドが継続的に上方に湾曲したためだと考えられる (Fig. 5 挿入図参照)。

BaTiO₃ の自発分極を利用して TiO₂ 薄膜に形成された光励起キャリアの寿命を制御できたという事は、これを電極に利用した強誘電体太陽電池でも光励起キャリアを制御できることを意味する。すなわち、受光体から励起キャリアが TiO₂/BaTiO₃ 基板に移動した後で、このキャリアを速やかに受光体から引き離すようにポテンシャルを調整すれば e-h 再結合が抑えられるので、変換効率の向上につながるであろう。

4-4 まとめ

本研究では、TRXPS 測定システムの高度化を達成したうえで、3 種類の太陽電池、つまり有機太陽電池、量子ドット太陽電池、強誘電体太陽電池における光励起キャリアの挙動を検証した。高い光電変換を達成するためには、受光体の種類や構造の選択だけでなく、光励起キャリアの輸送を制御することも有効な手段であることが示された。本研究は、太陽電池の材料選択や設計に有意義な指針を与える成果を得られたばかりでなく、物質の光物性研究に元素選択的にキャリア挙動を追跡できる TRXPS が非常に有用であることを示せた点でも重要である。フランスのグループとの共同研究も進められたおかげで日仏間での TRXPS 研究の今後の進展が期待できる。

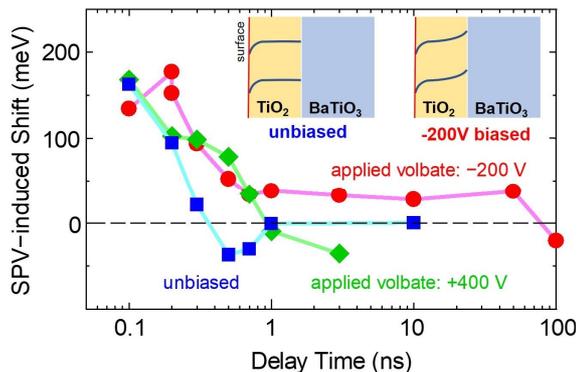


Fig. 5: Pump laser induced SPV on a-TiO₂(001)/BaTiO₃(001) as a function of the delay time. Non-polar and polar states of BaTiO₃ are compared. An inset shows schematic energy diagrams of unbiased and biased (-200 V) samples.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ozawa Kenichi, Yamamoto Susumu, Mase Kazuhiko, Matsuda Iwao	4. 巻 17
2. 論文標題 A Surface Science Approach to Unveiling the TiO ₂ Photocatalytic Mechanism: Correlation between Photocatalytic Activity and Carrier Lifetime	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 130 ~ 147
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/ejssnt.2019.130	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Marie D'angelo, Yuto Natsui, Naoya Terashima, Kazuhiko Mase, and Iwao Matsuda	4. 巻 123
2. 論文標題 Enhanced Photoresponsivity of Fullerene in the Presence of Phthalocyanine: A Time-Resolved X-ray Photoelectron Spectroscopy Study of Phthalocyanine/C60/TiO ₂ (110)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 4388-4395
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b00186	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Ryu Yukawa, Ro-Ya Liu, Naoya Terashima, Yuto Natsui, Hiroo Kato, Kazuhiko Mase, and Iwao Matsuda	4. 巻 122
2. 論文標題 Correlation between Photocatalytic Activity and Carrier Lifetime: Acetic Acid on Single-Crystal Surfaces of Anatase and Rutile TiO ₂	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 9562-9569
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b02259	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yoshihiro Aiura, Kenichi Ozawa, Eike F. Schwier, Kenya Shimada, Kazuhiko Mase	4. 巻 122
2. 論文標題 Competition between Itineracy and Localization of Electrons Doped into the Near-Surface Region of Anatase TiO ₂	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 19661-19669
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b05955	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Ryu Yukawa, Ro-Ya Liu, Naoya Terashima, Yuto Natsui, Hiroo Kato, Kazuhiko Mase, Iwao Matsuda	4. 巻 122
2. 論文標題 Correlation between Photocatalytic Activity and Carrier Lifetime: Acetic Acid on Single-Crystal Surfaces of Anatase and Rutile TiO ₂	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 9562-9569
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.8b02259	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Ryu Yukawa, Roya Liu, Masato Emori, Koki Inoue, Taku Higuchi, Hiroshi Sakama, Kazuhiko Mase, Iwao Matsuda	4. 巻 120
2. 論文標題 What Determines the Lifetime of Photoexcited Carriers on TiO ₂ Surfaces?	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 29283-29289
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.6b10136	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 Kenichi Ozawa, S. Yamamoto, I. Matsuda, T. Miyazawa, K. Yano, K. Mase
2. 発表標題 Carrier Dynamics in Two-layer Organic Solar Cell Probed by Time-resolved XPS
3. 学会等名 The 19th International Conference on Solid Films and Surfaces (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Tetsuya Miyazawa, Keita Yano, Kazuhiko Mase, Iwao Matsuda
2. 発表標題 Photoexcited carrier behavior in ultrathin organic photovoltaics fabricated on TiO ₂
3. 学会等名 12th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '19 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 宮澤徹也, 矢野敬太, 間瀬一彦, 松田巖
2. 発表標題 有機太陽電池におけるp/n有機層の積層順が及ぼすキャリア挙動への影響
3. 学会等名 第33回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 宮澤徹也, 矢野敬太, 間瀬一彦, 松田巖
2. 発表標題 フタロシアニンとフラレン薄膜の積層順が及ぼす光励起キャリアダイナミクスへの影響
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 廣森慧太, 中島伸夫, 小澤健一
2. 発表標題 アナターゼ型二酸化チタン単結晶表面でのエッジとテラスの光触媒活性の比較
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Iwao Matsuda, Marie D'angelo, Yuto Natusi, Naoya Terashima, Kazuhiko Mase
2. 発表標題 Time-resolved X-ray Photoelectron Spectroscopy Study on Photoresponsivity of Phthalocyanine and C60 in Ultrathin Layered Phthalocyanine/C60/TiO2 Systems
3. 学会等名 International Workshop on Trends in Advanced Spectroscopy in Materials Science (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kenichi Ozawa
2. 発表標題 Transient Photoexcited State at p/n Heterojunction in Organic Photovoltaics: A Time-resolved Soft X-ray Photoelectron Spectroscopy Study
3. 学会等名 9th Workshop on Advanced Spectroscopy of Organic Materials for Electronic Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, Marie D'angelo, 夏井祐人, 寺島矢, 間瀬一彦, 松田巖
2. 発表標題 時間分解X線光電子分光による有機太陽電池モデルシステムにおける光応答増強に関する研究
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小澤健一, 相浦義弘, 枝元一之, 大野真也, 近藤寛, 富重圭一, 中山泰生, 間瀬一彦, 山田洋一, 吉信淳
2. 発表標題 BL-13B光電子分光システムのマイクロ測定を目指した高度化と機能性材料の精密物性評価研究
3. 学会等名 2019年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 夏井祐人, 寺島矢, 加藤博雄, 劉若亞, 山本達, 松田巖, 小澤健一
2. 発表標題 時間分解軟X線光電子分光によるフラーレン/チタニア界面の光励起キャリア挙動の研究
3. 学会等名 2017年真空・表面科学合同講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 寺島矢, 夏井祐人, 加藤博雄, 間瀬一彦, 小澤健一
2. 発表標題 単結晶二酸化チタン表面の光触媒活性: 光電子分光による面方位依存性評価
3. 学会等名 2017年真空・表面科学合同講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Ro-ya Liu, Iwao Matsuda, Naoya Terashima, Yuto Natsui, Hiroo Kato, Kazuhiko Mase
2. 発表標題 Orientation Dependence of Photocatalytic Activity and Carrier Lifetime on Single Crystal TiO ₂ Surfaces
3. 学会等名 8th International Symposium on Surface Science (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kenichi Ozawa, Susumu Yamamoto, Ro-ya Liu, Naoya Terashima, Yuto Natsui, Hiroo Kato, Kazuhiko Mase, Iwao Matsuda
2. 発表標題 Carrier Lifetime as a Primary Factor for Crystal-face Dependence of Photocatalytic Activity on Rutile and Anatase TiO ₂
3. 学会等名 The 5th Ito International Research Conference (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 劉若亞, 松田巖, 夏井祐人, 寺島矢, 加藤博雄
2. 発表標題 フタロシアニン/フラレーン/TiO ₂ 界面における光励起キャリア挙動: 時間分解軟X線光電子分光研究
3. 学会等名 第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 劉若亞, 松田巖, 夏井祐人, 寺島矢, 加藤博雄, Marie D'angelo
2. 発表標題 有機太陽電池をモデルとしたフラレン/フタロシアンン積層構造における光励起による過渡的電荷分離状態の検証
3. 学会等名 2017年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小澤健一
2. 発表標題 時間分解X線分光によるダイナミクス研究へのアプローチ
3. 学会等名 ISSP-Workshop「SPRING-8 BL07LSUの現状と次世代軟X線科学創生への戦略」(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 劉若亞, 松田巖, 夏井祐人, 寺島矢, 加藤博雄, Marie D'angelo
2. 発表標題 多分子複合材料における光励起プロセスの解析
3. 学会等名 第73回日本物理学会年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 湯川龍, Ro-Ya Liu, 松田巖, 江森万里, 井上剛貴, 樋口拓, 坂間弘, 間瀬一彦
2. 発表標題 TiO2光触媒の光励起キャリア寿命を決める因子
3. 学会等名 第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小澤健一, Ro-Ya Liu, 山本達, 松田巖, 寺島矢, 夏井祐人
2. 発表標題 C60//TiO2接合界面における光励起キャリア挙動
3. 学会等名 ISSP-Workshop: SPring-8 BL07LSUが照らした物質機能の起源
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小澤健一, 山本達, 湯川龍, Ro-Ya Liu, 松田巖, 江森万里, 井上剛貴, 樋口拓, 坂間弘, 間瀬一彦
2. 発表標題 二酸化チタンの表面光起電力から探る空間電荷層内での光励起キャリアのダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会 第72回年次大会
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	松田 巖 (Matsuda Iwao) (00343103)	東京大学・物性研究所・准教授 (12601)	
研究 分担者	山本 達 (Yamamoto Susumu) (50554705)	東京大学・物性研究所・助教 (12601)	
連携 研究者	坂間 弘 (Sakama Hiroshi) (10242017)	上智大学・理工学部・教授 (32621)	