

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：12102

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21955

研究課題名(和文)次世代高輝度有機発光デバイスの動作機構解明

研究課題名(英文)Elucidation of operation mechanisms of next-generation high-luminance organic light-emitting devices

研究代表者

丸本 一弘 (MARUMOTO, KAZUHIRO)

筑波大学・数理工学系・准教授

研究者番号：50293668

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、青色発光Hostポリマー、三重項-三重項消滅(TTA)ポリマー、それらブレンド膜のMixedポリマーを用いた発光電気化学セル(LEC)の素子駆動時(オペランド状態)での電子スピン共鳴(ESR)研究を行った。素子構造はITO透明陽極/発光層/Ag陰極である。オペランドESRにより、素子駆動時に電気化学ドーピングにより発光層にドーピングされた電荷由来のスピンを直接観測した。ESR解析からドーピング電荷の種類を同定し、その絶対数を評価し、LEC駆動時の電荷ドーピング進行過程を明らかにした。また、HostポリマーとTTAポリマーの比を変えたときの三重項励起子の形成状態と動作機構を研究した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

研究成果の学術的意義は、これまでの有機発光デバイスの研究では殆ど用いられていなかった電子スピン共鳴(ESR)分光を活用し、素子内部を微視的な視点から非破壊で素子動作時(オペランド状態)に観測し、素子動作機構を分子レベルで解明できるようになる点が挙げられる。従来手法では電荷ドーピング状態や形成過程等について直接的な観測が出来ず、素子中の電荷状態や動作機構等を微視的な視点から明らかに出来ない問題点があった。

研究成果の社会的意義は、オペランドESR研究から得られた素子動作機構に基づいて、分子・素子構造の最適化を行え、素子の高特性化が容易となる点が挙げられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have performed an electron spin resonance (ESR) study of light-emitting electrochemical cells (LECs) using a blue emission Host polymer, a triplet-triplet annihilation (TTA) polymer, and a mixed polymer blend of these polymers in the device driving states (operando states). The device structure is ITO transparent anode/emission layer/Ag cathode. The charge-derived spins doped in the emitting layer by electrochemical doping during device operation were directly observed by operando ESR, and the types of doped charges were identified from ESR analysis and their absolute numbers were evaluated to clarify the charge-doping progression process during LEC operation. We also studied the formation states and operation mechanism of triplet excitons when the ratio of Host polymer to TTA polymer was changed.

研究分野：有機無機半導体

キーワード：有機発光デバイス 素子動作機構 電子スピン共鳴 発光電気化学セル 有機イオントロクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

有機発光ダイオード (OLED) は自発光、フレキシブル、高効率といった特長を生かして、近年テレビやスマートフォンのディスプレイに用いられ、注目されている発光デバイスである。その一方で、多重層構造で形成されるため、製造過程が複雑化し、高コスト等の課題も有している。OLED と同様に有機発光材料を用いる発光デバイスとして、発光電気化学セル (LEC) が挙げられる。LEC は OLED と同様の自発光、フレキシブルという特徴を持つ。また、主に陰極、発光層、陽極の三層のみで構成され、OLED と比較して素子構造が単純であり、精密な膜厚制御が不要で作製が容易である上に、駆動電圧が低いという利点を有する次世代有機発光デバイスとして近年注目されている。

上述の通り、LEC は多くの利点を有しており、さらに熱活性化遅延蛍光 (TADF) や三重項-三重項消滅 (TTA) 等を発光に用いることによって発光効率も大幅に増加し、より幅広い応用が考えられる。しかし、TADF や TTA 等を利用した LEC について、微視的な視点から動作機構や三重項励起子形成・移動の過程を調べた研究は報告されていない。LEC の欠点を克服してより高性能な LEC を実現し、実用化を目指すためにも、分子レベルでの LEC の研究が求められる。

本研究の意義は、これまでの有機発光デバイスの研究では殆ど用いられていなかった電子スピン共鳴 (ESR) 分光を活用することにある。これにより素子内部を微視的な視点から非破壊で素子動作時 (オペランド状態) に解析でき、その動作機構に基づいて分子・素子構造の最適化を行え、素子の高特性化が容易となる。従って本研究は、これまでの巨視的な視点からの研究が主であった有機発光デバイスの研究における学術の体系や方向に大きな一石を投じる挑戦的研究と言える。また、LEC では発光層中のイオン移動により発光機能が生じ、このようなイオン移動による機能発現は有機イオン트로ニクスと呼ばれ、イオンと電子の 2 種類の電荷を利用する技術であり最近注目されている分野である。本手法は有機イオン트로ニクスで機能発現に関与するイオン・電子状態を同時に解析できる。従って、本研究は有機イオン트로ニクスに新しい視点からの研究手法を導入することとなり、挑戦的研究として大きな意義を有すると考えられる。

### 2. 研究の目的

本研究では LEC の素子動作機構を分子レベルで解明し、素子高特性化を目指すことを目的とする。電荷ドーピング状態や形成過程等について ESR 分光によるオペランド直接観測を行い、従来手法では成し得なかった微視的な視点から LEC の動作機構の解明を行う。特に、TTA を利用した LEC 動作の過程、および、最も効率よく TTA が起こる Host ポリマーと TTA ポリマーの比を明らかにすることを目的として行った。発光材料として、Host ポリマー、TTA ポリマー、両方のポリマー (Mixed ポリマー) を用いた 3 種類の LEC を作製し、これらの LEC に電圧を印加して、オペランド ESR 分光法により各電圧における長寿命なスピン状態を直接観測し、各 LEC の駆動中の電荷ドーピングの進行過程、および Host ポリマーと TTA ポリマーの比を変えたときの三重項励起子の形成状態と動作機構を研究した。

### 3. 研究の方法

本研究では有機デバイスやその構成材料を分子レベルで解析可能な ESR 分光を活用して研究を行った。ESR 分光法は高感度・高精度であり、研究代表者らが世界で初めて開発した ESR 測

定可能な素子構造を活用し、素子駆動時の LEC 内部のスピン・電荷状態を非破壊にオペランド直接観測し、微視的な観点から動作機構を解明した。研究協力者の電力中央研究所小野博士らとの共同研究により蛍光材料、燐光材料、TADF 材料、TTA 材料を用いた LEC 素子を作製して研究を進めた。電荷（ポーラロン）、ラジカル、スピン三重項励起子等を ESR 法で検出した。この様々な LEC の動作機構を分子レベルで解析し、その知見に基づいて分子・素子構造の最適化を進め、素子の高特性化を達成した。

#### 4. 研究成果

本研究では、青色発光材料 Host ポリマー、TTA ポリマー、それらのブレンド膜である Mixed ポリマーを用いた LEC 素子のオペランド ESR 研究を詳細に行った。Host ポリマーはフルオレン誘導体、フルオレン (F8)、フェニレンジアミンがそれぞれ 50:45:5 の比でランダム重合したポリマーであり、TTA ポリマーは F8 とアントラセン誘導体がそれぞれ 50:50 の比で交互重合したポリマーである。これらのポリマーは本研究で作製する LEC 素子の発光層として用いる。LEC 素子構造は、ITO 透明陽極/発光層/Ag 陰極で構成される。オペランド ESR 法により、素子駆動時に電気化学ドーピングにより発光層にドーピングされた電荷に由来するスピンを直接観測し、その ESR 信号の解析からドーピングされた電荷の種類を同定し、その数の絶対値を評価した。

初めに、Host ポリマー-LEC、TTA ポリマー-LEC、Mixed ポリマー-LEC について、基本的な素子特性評価を行った。電流密度-電圧-輝度 ( $J-V-L$ ) 測定を行った結果、Mixed ポリマーが最も高い輝度を示した。これは Mixed ポリマー-LEC において Host ポリマーの三重項励起子が効率よく TTA ポリマーの三重項にエネルギー移動し、TTA が起きたためであると考えられる。また、エレクトロルミネセンス (EL) スペクトル測定では 3 種類すべての LEC が青色発光を示した。

次に、室温条件で行った ESR 測定より得られた ESR 信号の Fitting 解析を行った結果、3 種類の LEC のドーピング過程を同定することができた。電荷ドーピングの同定には、オペランド ESR 信号の  $g$  因子と密度汎関数理論 (DFT) 計算を用いた。Host ポリマー-LEC は p 型ドーピングが開始した後に n 型ドーピングが開始し、TTA ポリマー-LEC ではそれとは逆に n 型ドーピングが開始した後に p 型ドーピングが開始するという過程が得られた。Host ポリマー-LEC のドーピング過程については、エネルギー準位図から正孔が注入されやすいことを説明できた。TTA ポリマー-LEC のドーピング過程については、エネルギー準位図に加えて、界面におけるプッシュバック効果による相対的なエネルギー準位のずれにより、電子の方が注入されやすいと考えた。Mixed ポリマー-LEC については、Host ポリマーの p 型ドーピング、Host ポリマーの n 型ドーピング、TTA ポリマーの n 型ドーピング、TTA ポリマーの p 型ドーピングの順に電荷ドーピングが進む結果が得られた。これは Host ポリマー-LEC、TTA ポリマー-LEC の各ドーピング過程と一致している。Host ポリマーからドーピングが開始するのは、Host ポリマーの方が TTA ポリマーよりも混合体積が大きく、電極付近に存在する量が多いことが原因と考えた。

また、Host ポリマー-LEC、TTA ポリマー-LEC、および Host ポリマーと TTA ポリマーの混合体積比を変化させた Mixed ポリマー-LEC について低温条件で ESR 測定を行い、三重項励起子の形成状態や励起子移動機構の解明を行った。混合体積比 Host ポリマー : TTA ポリマー = 4:1、9:1、19:1 の Mixed ポリマー-LEC を作製し、ESR 測定を行った結果、Host ポリマー : TTA ポリマー = 9:1 を用いた LEC のみが、他の混合体積比の LEC の場合比較して  $g$  値と線形が異なる信号が得られた。この信号は三重項励起子由来であると考えられ、ESR 測定によっ

て駆動中の有機発光デバイスの三重項励起子を観測した世界初の例となる。Host ポリマー-LEC および TTA ポリマー-LEC についても ESR 測定を行った結果、Host ポリマー : TTA ポリマー = 9 : 1 を用いた LEC の ESR 信号は、TTA ポリマー-LEC の ESR 信号と一致した。一方、Host ポリマー : TTA ポリマー = 4 : 1、19 : 1 を用いた LEC の ESR 信号は、Host ポリマー-LEC の ESR 信号と TTA ポリマー-LEC の ESR 信号の重ね合わせの信号と一致した。これらの結果から、Host ポリマー : TTA ポリマー = 9 : 1 の場合は、TTA ポリマーに多くの三重項励起子が存在しているのに対し、Host ポリマー : TTA ポリマー = 4 : 1、19 : 1 の場合は、Host ポリマーと TTA ポリマーの両方に三重項励起子が存在していることが示唆された。Host ポリマーに三重項励起子が残留すると、TTA ポリマーに残留した場合と比較して、材料劣化が生じやすいことが知られている。よって、Host ポリマー : TTA ポリマー = 9 : 1 を用いた Mixed ポリマー-LEC の場合に、Host ポリマーから TTA ポリマーへ最も効率よく三重項励起子が移動し、材料劣化による素子特性劣化が生じにくいことがわかった。

その他、TADF 材料である緑色発光材料 DACT-II、青色発光材料 TpAT-tFFO と HDT-1、赤色発光材料 TPA-PZTCN を用いた LEC の ESR 研究も実施した。それぞれの LEC の  $J-V-L$  測定やオペランド ESR 測定を行い、電荷ドーピング過程の解析や、動作機構の解明を進めた。特に、HDT-1 を用いた LEC では、純青色超蛍光材料  $\nu$ -DABNA も導入して、Hyperfluorescence 技術による色純度向上も観測できた。よって、LEC においても Hyperfluorescence 技術が有効であることが示された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 8件）

1. 著者名 KIMURA Saho, KANEKO Yuki, MARUMOTO Kazuhiro, SUZUKI Yoshikazu	4. 巻 128
2. 論文標題 Synthesis and color development mechanism of Li <sub>2</sub> CoTi <sub>3</sub> O <sub>8</sub> cyan pigments: effect of synthetic temperature	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 260-266
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2109/jcersj2.20037	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 Nakayama Ami, Kimata Haru, Marumoto Kazuhiro, Yamamoto Yohei, Yamagishi Hiroshi	4. 巻 56
2. 論文標題 Facile light-initiated radical generation from 4-substituted pyridine under ambient conditions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 6937-6940
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0cc02538k	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 Xue Dong, Kamiya Shinpei, Saito Masahiko, Osaka Itaru, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 33
2. 論文標題 Analyses of PTzNTz Polymer Solar Cells Using ESR Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Photopolymer Science and Technology	6. 最初と最後の頁 97-102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2494/photopolymer.33.97	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 Nishihara Yoshihiko, Onozawa-Komatsuzaki Nobuko, Zou Xiangtao, Marumoto Kazuhiro, Chikamatsu Masayuki, Yoshida Yuji	4. 巻 49
2. 論文標題 Effect of Passivation on the Interface between Perovskite and Donor-Acceptor Copolymer-based Hole-transport Layer in Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1341-1344
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.200497	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 Osawa Fumiya, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 10
2. 論文標題 Operando direct observation of spin-states and charge-trappings of blue light-emitting-diode materials in thin-film devices	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 18800-1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-75668-4	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 Meets Bharti, A. Singh, A. K. Debnath, A. K. Chauhan, K. P. Muthe, S. K. Gupta, Kazuhiro Marumoto, T. Mori, D. K. Aswal	4. 巻 16
2. 論文標題 Anionic Conduction Mediated Giant n-type Seebeck Coefficient in Doped Poly(3-hexylthiophene) Free-standing Films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials Today Physics	6. 最初と最後の頁 100307-1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtphys.2020.1000307	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 該当する

1. 著者名 Watanabe Takahiro, Yamanari Toshihiro, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 1
2. 論文標題 Deterioration mechanism of perovskite solar cells by operando observation of spin states	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Materials	6. 最初と最後の頁 96-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s43246-020-00099-7	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 Tsunetomo Naho, Iguchi Shohei, Wierzbowska Malgorzata, Ueda Akiko, Won Yousang, Heo Sinae, Jeong Yesul, Wakayama Yutaka, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 2
2. 論文標題 Spin-states in MoS2 thin-film transistors distinguished by operando electron spin resonance	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Communications Materials	6. 最初と最後の頁 27-1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s43246-021-00129-y	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 丸本一弘	4. 巻 30
2. 論文標題 有機太陽電池の電荷状態のオペランドESR 直接観察と素子特性制御	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 応用物理学会有機分子・エレクトロニクス分科会誌：M&BE	6. 最初と最後の頁 72～75
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Bharti Meetu, Jha P., Singh Ajay, Chauhan A.K., Misra Shantanu, Yamazoe Masato, Debnath A.K., Marumoto Kazuhiro, Muthe K.P., Aswal D.K.	4. 巻 176
2. 論文標題 Scalable free-standing polypyrrole films for wrist-band type flexible thermoelectric power generator	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Energy	6. 最初と最後の頁 853～860
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.energy.2019.04.013	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 Seki Kazuhiko, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 99
2. 論文標題 Motional narrowing under Markovian and non-Markovian hopping transitions in inhomogeneous broadened absorption line shape	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 052115-052115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.99.052115	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 Kobori Yasuhiro, Ako Takumi, Oyama Shinya, Tachikawa Takashi, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 123
2. 論文標題 Transient Electron Spin Polarization Imaging of Heterogeneous Charge-Separation Geometries at Bulk-Heterojunction Interfaces in Organic Solar Cells	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 13472～13481
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b02672	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 Bharti Meetu, Singh Ajay, Saini Gajender, Saha Sudeshna, Bohra Anil, Kaneko Yuki, Debnath A.K., Muthe K.P., Marumoto Kazuhiro, Aswal D.K., Gadkari S.C.	4. 巻 435
2. 論文標題 Boosting thermoelectric power factor of free-standing Poly(3,4ethylenedioxythiophene):polystyrenesulphonate films by incorporation of bismuth	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Power Sources	6. 最初と最後の頁 226758 ~ 226758
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jpowsour.2019.226758	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 Rachmat Vanadian Astari Suci Atina, Kubodera Takaya, Son Donghyun, Cho Yujin, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 11
2. 論文標題 Molecular Oriented Charge Accumulation in High-Efficiency Polymer Solar Cells as Revealed by Operando Spin Analysis	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 31129 ~ 31138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.9b10309	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 Iguchi Shohei, Sakurai Yuki, Fujita Naohiro, Osawa Fumiya, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 1
2. 論文標題 Electrically Controllable Spin States of Holes and Electrons in Organic Semiconductor Materials	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Applied Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 2522 ~ 2530
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.9b00551	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 Xue Dong, Kamiya Shinpei, Saito Masahiko, Osaka Itaru, Marumoto Kazuhiro	4. 巻 3
2. 論文標題 Direct Evidence of Less Charge Accumulation in Highly Durable Polymer Solar Cells Using Operando Electron Spin Resonance Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Energy Materials	6. 最初と最後の頁 2028 ~ 2036
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c00076	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 Sakiho Kimura, Yuki Kaneko, Kazuhiro Marumoto, Yoshikazu Suzuki	4. 巻 -
2. 論文標題 Synthesis and color development mechanism of Li <sub>2</sub> CoTi <sub>3</sub> O <sub>8</sub> cyan pigments: effect of synthetic temperature	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Ceramic Society of Japan	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Dng Xue, Shinpei Kamiya, Masahiko Saito, Itaru Osaka, Kazuhiro Marumoto	4. 巻 -
2. 論文標題 Analyses of PTzNTz Polymer Solar Cells Using ESR Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Photopolymer Science and Technology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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45件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 11件)

1. 発表者名 Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Direct Observation of Charge State and Transfer in Inverted Perovskite Solar-Cell Materials
3. 学会等名 International E-Conference on Green Chemistry for Sustainable Development, Faculty of Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Operand Direct Observation of Charge States and their Transfer in Inverted Perovskite Solar Cells
3. 学会等名 INTERNATIONAL VIRTUAL CONFERENCE ON GREEN CHEMISTRY FOR CLEAN ENVIRONMENT, PAHER University (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Dng Xue, Masahiko Saito, Itaru Osaka and K. Marumoto
2. 発表標題 ELUCIDATION OF DETERIORATION MECHANISM OF TERNARY POLYMER SOLAR CELLS USING LIGHT-INDUCED ESR SPECTROSCOPY
3. 学会等名 The 30th International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-30) & Gloval Photovoltaic Conference 2020 (GPVC2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 丸本一弘
2. 発表標題 オペランドミクロ解析による高効率ペロブスカイト太陽電池の電荷状態の解明と素子性能の制御・向上
3. 学会等名 JST筑波大学新技術説明会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 薛冬、斎藤慎彦、尾坂格、丸本一弘
2. 発表標題 光誘起ESRを用いた三元系高分子太陽電池の劣化機構の解明
3. 学会等名 第59回電子スピンスイエンズ学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村友映、稲井聡志、金子侑樹、秋山陽久、三浦俊明、下位幸弘、今井祐介、島本太介、杉本慶喜、丸本一弘
2. 発表標題 炭素繊維強化プラスチック(CFRP)複合材料の劣化状態のESR分光研究
3. 学会等名 第59回電子スピンスイエンズ学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 戸沢日馨、河村佳歩、勝俣潤哉、福島大介、木暮希望、板東晃徳、濱松浩、下位幸弘、丸本一弘
2. 発表標題 青色発光電気化学セルの電荷状態のオペランドESR分光研究
3. 学会等名 第59回電子スピンサイエンス学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 稲井聡志、金子侑樹、山添昌人、丸本一弘
2. 発表標題 導電性高分子PEDOT:PSSを用いた有機電気化学トランジスタのESR研究
3. 学会等名 第59回電子スピンサイエンス学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鄒 湘濤、渡邊 孝弘、木全 晴、薛 冬、嶋崎 愛、Minh Anh Truong、若宮 淳志、丸本 一弘
2. 発表標題 順構造ペロブスカイト太陽電池の正孔輸送層界面における電荷移動の光誘起ESR研究
3. 学会等名 MRM Forum 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 戴 文超、鄒 湘濤、木全 晴、本橋 真優、薛 冬、中村 智也、若宮 淳志、丸本 一弘
2. 発表標題 P3HTを用いた順構造ペロブスカイト太陽電池の電荷状態の光誘起ESR解明
3. 学会等名 MRM Forum 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Wang Yihuang、本橋 真優、木全 晴、薛 冬、佐伯 昭紀、中村 智也、若宮 淳志、丸本 一弘
2. 発表標題 逆構造スズペロブスカイト太陽電池の界面電荷移動のESR直接観測
3. 学会等名 MRM Forum 2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Operation mechanisms and microscopic characterizations of organic and perovskite solar cells
3. 学会等名 One Week International Faculty Development Programme on Recent Advancements in Chemical Sciences and Environmental Engineering (RACSEE-2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 薛冬、斎藤慎彦、尾坂格、丸本一弘
2. 発表標題 3元系PTzBT高分子太陽電池の光誘起ESR分光及び素子劣化機構の解明
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸沢日馨、河村佳歩、勝俣潤哉、福島大介、木暮希望、板東晃徳、濱松浩、下位幸弘、丸本一弘
2. 発表標題 三重項-三重項消滅を用いた青色発光電気化学セルの電荷・スピン状態のオペランESR分光研究
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 薛冬、中村友映、稲井聡志、金子侑樹、秋山陽久、三浦俊明、下位幸弘、今井祐介、島本太介、杉本慶喜、丸本一弘
2. 発表標題 電子スピン共鳴分光を用いたCFRP複合材料の劣化状態のスピン状態観測と劣化機構研究
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 稲井聡志、金子侑樹、山添昌人、丸本一弘
2. 発表標題 PEDOT:PSS電気化学トランジスタの電荷・スピン状態と分子配向の観測
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 丸本一弘
2. 発表標題 高分子太陽電池の電荷状態のオペランド直接観測と素子特性向上
3. 学会等名 応用化学セミナー（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasuhiro Kobori, TTakumi Ako, Takashi Tachikawa, Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Transient Electron Spin Polarization Imaging of Photoinduced Interfacial Charge Separation Geometries in Organic photovoltaic Cell
3. 学会等名 235th ECS Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丸本一弘
2. 発表標題 有機太陽電池の電荷状態のオペランドESR分光による直接観察と素子特性制御
3. 学会等名 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会 研究会「繋がり広がり深まる有機分子・バイオエレクトロニクス研究」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Operando ESR spectroscopy of organic devices
3. 学会等名 The 6th Awaji International Workshop on "Electron Spin Science & Technology: Biological and Materials Science Oriented Applications" (6th AWEST 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dong Xue, Shinpei Kamiya, Masahiko Saito, Itaru Osaka, Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Light-induced ESR spectroscopy observation of long-lived charge states in PTzNTz polymer solar cells and elucidation of performance deterioration mechanism
3. 学会等名 10th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE10) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 丸本一弘
2. 発表標題 発光電気化学セルの分子配向のオペランド直接観測と動作機構のミクロ解明
3. 学会等名 第68回高分子討論会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Operand direct observation of spin states correlated with device performance in perovskite solar cells
3. 学会等名 Symposium on defects in new organic solar cell materials and power semiconductors (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 薛冬、斎藤慎彦、尾坂格、丸本一弘
2. 発表標題 発光電気化学セルの分子配向のオペランド直接観測と動作機構のミクロ解明
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会 (第58回NMR討論会との連合大会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金子侑樹、山添昌人、勝俣潤哉、丸本一弘
2. 発表標題 発光性有機高分子を用いたトランジスタにおける電荷状態のESR分光研究
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会 (第58回NMR討論会との連合大会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鄒湘濤、渡邊孝弘、木全晴、薛冬、嶋崎愛、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 新規正孔輸送材料を用いた鉛ペロブスカイト太陽電池のESR研究
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会 (第58回NMR討論会との連合大会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Wang Yihuang、本橋真優、鄒湘濤、木全晴、薛冬、佐伯昭紀、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 混合ハロゲンスズペロブスカイト太陽電池材料の電荷移動のESR分光研究
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会（第58回NMR討論会との連合大会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 戴文超、鄒湘濤、木全晴、本橋真優、薛冬、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 P3HT正孔輸送材料を用いた順構造ペロブスカイト太陽電池のESR分光研究
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会（第58回NMR討論会との連合大会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 河村佳歩、祐本晋太郎、勝俣潤哉、神谷晨平、金子侑樹、丸本一弘
2. 発表標題 逆構造有機発光ダイオードのESR分光研究
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会（第58回NMR討論会との連合大会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 本橋真優、木全晴、浅井遥香、薛冬、尾崎雅司、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 スズペロブスカイト太陽電池材料における電荷状態のESR分光研究
3. 学会等名 第58回電子スピンスイエンズ学会年会（第58回NMR討論会との連合大会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 薛冬、神谷晨平、斎藤慎彦、尾坂格、丸本一弘
2. 発表標題 ESR分光法を用いた高耐久性高分子太陽電池の低電荷蓄積の直接観測
3. 学会等名 第4回フロンティア太陽電池セミナー
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dong Xue, Shinpei Kamiya, Masahiko Saito, Itaru Osaka, Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Analysis of Accumulated Charge States in PTzNTz Polymer Solar Cells Using Operando ESR Spectroscopy
3. 学会等名 2nd G'L'owing Polymer Symposium in KANTO (GPS-K2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Direct Observation of Charge Transfer at the Interface between Perovskite and PEDOT:PSS Layers
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Dong Xue, Shinpei Kamiya, Masahiko Saito, Itaru Osaka, Kazuhiro Marumoto
2. 発表標題 Direct Evidence of Less Charge Accumulation in Highly Durable Polymer Solar Cells Using Operando ESR Spectroscopy
3. 学会等名 Asia-Pacific International Conference on Perovskite, Organic Photovoltaics and Optoelectronics (IPEROP20) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 丸本一弘
2. 発表標題 有機無機材料・デバイスの磁性とスピントロニクス応用
3. 学会等名 第1回有機無機スピントロニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tuhin Basu, Ryoma Hayakawa, Mikhail Kabdulov, Thomas Huhn, Naho Tsunetomo, Kazuhiro Marumoto, Yutaka Wakayama
2. 発表標題 Low-temperature carrier transport of purely organic radicals embedded in double tunnel junctions
3. 学会等名 APS March Meeting 2020（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 河村佳歩、祐本晋太郎、勝俣潤哉、和田啓幹、鈴木克明、梶弘典、丸本一弘
2. 発表標題 熱活性化遅延蛍光材料を用いた発光電気化学セルの電荷状態のオペランドESR分光研究
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 薛冬、斎藤慎彦、尾坂格、丸本一弘
2. 発表標題 PTzBT:ITIC:PCBM高分子太陽電池の長寿命電荷状態の光誘起ESR分光観測と素子性能劣化機構の解明
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 戴文超、鄒湘濤、木全晴、本橋真優、薛冬、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 光誘起ESR分光法を用いた順構造ペロブスカイト太陽電池における電荷状態の解明
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金子侑樹、山添昌人、勝俣潤哉、丸本一弘
2. 発表標題 ESR分光法による発光性高分子を用いたトランジスタの電荷状態の解明
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Wang Yihuang、本橋真優、鄒湘濤、木全晴、薛冬、佐伯昭紀、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 混合ハロゲンズペロブスカイト太陽電池界面の電荷移動の直接観察
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鄒湘濤、渡邊孝弘、木全晴、薛冬、嶋崎愛、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 新規正孔輸送材料を用いた鉛ペロブスカイト太陽電池材料の積層膜界面における電荷移動のESR研究
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 本橋真優、木全晴、浅井遥香、薛冬、尾崎雅司、中村智也、若宮淳志、丸本一弘
2. 発表標題 スズペロブスカイト/正孔輸送材料界面の電荷移動のESR分光研究
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 関和彦、丸本一弘
2. 発表標題 ホッピング運動によるESRの不均一幅の尖鋭化に及ぶキャリアのトラップでの滞在時間分布の効果
3. 学会等名 第75回日本物理学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 五反田武志、戸張智博、齊田穰、丸本一弘
2. 発表標題 ガスフロー法を含む成膜法による Snペロブスカイトの成膜
3. 学会等名 第87回電気化学学会大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 丸本一弘 他65名	4. 発行年 2019年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 650
3. 書名 ナノ粒子塗工液の調整とコーティング技術	

〔産業財産権〕

〔その他〕

丸本研究室ホームページ  
[http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~marumoto\\_lab/index.html](http://www.ims.tsukuba.ac.jp/~marumoto_lab/index.html)  
Home page of Marumoto laboratory  
[https://www.ims.tsukuba.ac.jp/~marumoto\\_lab/index-e.html](https://www.ims.tsukuba.ac.jp/~marumoto_lab/index-e.html)

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
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------