

氏名(本籍地)	今井 孝彦 (愛媛県)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第6650号
学位授与年月日	平成25年4月30日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	高速ダイコーティングを応用した薄膜成膜法による光電変換素子形成

主査	筑波大学教授	理学博士	中村 潤児
副査	筑波大学教授	理学博士	白石 賢二
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	丸本 一弘
副査	筑波大学准教授	博士(理学)	野村 晋太郎

論 文 の 要 旨

今井孝彦氏は、本学位論文において繊維状基材の加工と集積による平面デバイスの形成に着目し、繊維状基材に電子デバイス構成要素としての機能を付加させるための連続成膜技術の開発に取り組んだ。成膜手法として、繊維状基材への高速成膜に実績のある密閉型ダイコート法を用いることとした。成膜種としては塗布形成の研究が盛んな有機薄膜太陽電池の正孔注入層およびバルクヘテロ活性層を選択し、これらの薄膜をダイコーティング法によって成膜することで電子デバイスへの成膜手法の適用を実証することを目標として研究を進めた。

ところが、従来の密閉型ダイコート利用は溶液粘度数 Pa・s、乾燥後膜厚数十 μm といった範囲のものであるのに対し、本研究で目指すのは数 mPa・s、数百 nm 以下となり、より精密な領域へのプロセス範囲の拡大が要求された。また、基材の長さ方向での厚さ変動も成膜対象とした PET 基材では $\pm 5\mu\text{m}$ などとなり無視できず、この変動に対して能動的に塗膜厚を制御する塗布工プロセスの実現が必要であった。解決の手段として、まず密閉型ダイコートの塗布モデルについて解析を行い、精密塗布に活用可能なパラメータとしてダイス出口端のギャップと溶液圧力の関係性を見出し、これを証した。これを基に、数 m/min 以上の高速で搬送される基材の厚さ変動に対応可能な膜厚制御手段を新規に開発し、ITO/PET 長尺基材上にそれぞれ膜厚 150 nm の PEDOT:PSS 正孔注入層および P3HT:PCBM バルクヘテロ活性層を膜厚精度 $\pm 5\%$ ($\pm 7.5\text{nm}$)以内で連続成膜することに成功した。

また、塗布成膜について実証までの研究を行うにあたり、コアとなる塗膜形成部装置構成要素(長尺基材搬送、基材前処理、熱処理)についても各種検証を行い、一連の工程をパッケージングしたリールツール成膜プロセスを構築した。

ダイコート法による PEDOT:PSS 正孔注入層および P3HT:PCBM バルクヘテロ活性層の成膜を適用した有機薄膜太陽電池を作成し、基材として ITO/PET を、P3HT:PCBM の溶媒としてオルト-ジクロロベンゼンを用いたサンプルでスピコートによって作成したサンプルに近い発電効率 0.49%を持つサンプルの作製に成功した。ITO/ガラス基板上での試作との比較から、ITO/PET 基材の高い表面抵抗がエネルギー

変換効率減少の要因であることが示唆された。基材の導電性以外にも各成膜層の厚さや組成、形成中の熱処理条件などを最適化していくことでより効率よく光電変換が可能と考えられる。本研究の手法を用いて達成した P3HT:PCBM バルクヘテロ活性層の成膜で達成した 20m/min の成膜速度は印刷法など従来の塗布手法における数十 cm/min～数 m/min の値をおよそ100倍上回る。また、PEDOT:OSS については基材線速 50 m/min での成膜にも成功しており、本手法を用いた低コストでの電子デバイス形成の可能性を実験室レベルで実証したものである。

有機太陽電池をこれほど高速かつ大面積に作成した例は世界的に見ても初めての発表である。本研究はまさに有機太陽電池技術のブレークスルーとなる可能性のあるレベルの高い研究であり、その波及効果は計りしれないものになるほど大きなものになる可能性を秘めている。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本論文では有機太陽電池の作製速度を飛躍的に向上させることを目指して、これまで有機デバイスに用いられたことのない高速ダイコート法の技術を有機デバイス作製に用いるという斬新なアイデアをもとに研究を進め、成功をおさめたものである。これまでのダイコート法は膜厚制御の制度が悪く有機電子デバイスにそのまま使えるものではなかったが、今井氏は精密塗布に活用可能なパラメータとしてダイス出口端のギャップと溶液圧力の関係性を見出しこれを基に、数 m/min 以上の高速で搬送される基材の厚さ変動に対応可能な膜厚制御手段を今井氏自身が新規に開発し、本手法を有機太陽電池に応用した。さらに、従来法で作製した有機太陽電池との性能比較も行い、従来法を遜色のない特性が得られていることも確認し、有機太陽電池の超高速作製に道を拓いたものである。以上のように新規に見出された科学技術的知見が十分に議論されており、本論文は博士（工学）に相当するものである。

〔最終試験結果〕

平成25年2月14日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、博士論文において、従来技術と本論文の技術の比較を博士論文の中で丁寧に行う改訂をすることを条件に合格という条件つき合格の判断が審査委員全員によってなされた。その後、3月28日に今井孝彦氏より従来技術と本博士論文の技術の比較を行った博士論文の提出がされ、審査員全員によって博士論文の適切な改定を確認した。上記確認を行った上で、平成25年4月4日、審査員全員によって今井孝彦氏の博士論文審査を合格とした。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。