

氏名	HAO Xia			
学位の種類	博士（工学）			
学位記番号	博甲第 7518 号			
学位授与年月日	平成27年 7月 24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	数理工学科学研究科			
学位論文題目	Study on Charge Trapping and Recombination of Small Molecule Organic Solar Cells (低分子有機太陽電池における電荷トラップと再結合に関する研究)			
主査	筑波大学教授	理学博士	秋本 克洋	
副査	筑波大学教授	工学博士	重川 秀実	
副査	筑波大学教授	博士(工学)	末益 崇	
副査	東京大学教授	理学博士	増田 茂	

論 文 の 要 旨

化石燃料の枯渇や環境問題の高まりにより、クリーンで再生可能なエネルギーの開発が急務とされている。再生可能エネルギーの中でも太陽光発電は石油代替エネルギーとして最も有望とされているが、発電単価が高くさらなる高効率化、低価格化を実現しなければならない状況にある。材料としてシリコンをベースとした太陽電池はすでに実用化されているが、高効率、低価格化への技術開発は飽和しつつあり、有機物など新規な材料をベースとした太陽電池開発がブレークスルーをもたらすものと期待されている。このような研究開発現況を鑑み、本研究では有機太陽電池の効率向上をめざしたデバイス構造の最適化とそのメカニズムを明らかにした。得られたおもな結果は、1. 従来作成されてきた有機太陽電池の積層を逆積層構造にすることにより効率向上ができることを示した。その際バッファ層の役割が大きくその役割を明らかにした。2. 信頼性(経時変化の安定性)についても逆積層構造が高いことを見出し、その原因を明らかにした。3. 電荷分離界面が二層構造と混合バルク構造では予想に反し二層構造のほうがデバイス特性が勝った。この原因を解明し今後の課題を整理した。以下、それぞれの得られた結果についてまとめる。

有機太陽電池として最もよく研究されている材料系、Ag/BCP/C60/SubPc/MoO3/ITO Sub を基本構造として逆積層構造とその際のバッファ層材料である BCP (Bathocuproine, C₂₆H₂₀N₂) の効果について検討した。なお、SubPc は boron subphthalocyanine chloride である。逆積層構造、すなわち Ag/MoO3/SubPc/C60/BCP/ITO Sub 構造によりエネルギー変換効率が改善されることがわかり、その効果がバッファ層材料BCPの挿入が効いていることを見出した。BCPの働きを明らかにする目的で電気的、光学的測定を行った。フォトルミネセンス測定、量子効率測定等よりBCPが励起子をブロックする層として働いていること、過渡応答光電圧測定、電流電圧測定等により C60/ITO 界面において再結合センター

が形成されており、BCP挿入により再結合センターの影響が消えることを明らかにした。バッファ層BCPはこれら二つの効果によりデバイス特性向上に寄与していると結論付けた。

有機太陽電池として大きな課題とされている経時変化について、従来構造と逆積層構造の違いを検討した。逆積層構造において二桁長い経時変化の安定性が確認された。デバイスの劣化前後のXPS測定、および意図的な空気暴露、酸素暴露実験より、劣化の主原因は酸化であるとした。また、過渡応答光電流測定より劣化後あるいは酸化の後では電荷トラップの存在が確認され、これらが再結合センターとして働きデバイス特性劣化を引き起こしていると解釈した。電荷トラップの存在はC60の酸化のシミュレーションで指摘されており、矛盾のない結果である。

電荷分離を二層構造で行うより混合バルク構造のほうが効率が良いことが知られているため、逆積層構造の吸収層を混合バルク構造で作製を行った。逆積層構造における二層構造と混合バルク構造で特性を比較したところ予想に反し二層構造のほうがデバイス特性がよいことがわかった。過渡応答光電流測定、および電流電圧測定等より、混合バルク構造ではトラップが存在し、これらが再結合センターとして働いていることがわかった。また、AFM像より混合バルク構造では大きなグレインとその隙間を埋める材料が存在し、二層構造の様な表面構造とは異なることから、混合バルク構造は混合しているというより相分離していることが考えられ、C60あるいは SubPc が反対電極に接触していることによりトラップが形成されたと考えられる。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

有機太陽電池の構造最適化に関し、実験に基づいた基礎的考察を通してその原因、理由を明らかにし今後の開発の方向性を示した。基礎的知見は一般化できる普遍的なものであり、導き出された結論は応用上重要である。学術的かつ技術的に高い成果であると評価できる。定性的評価が主であったが、定量評価まで踏み込むことで欠陥濃度の評価や欠陥濃度低減の目標設定ができ、さらにインパクトのある結果が得られたと思われる。これらについては今後に期待する。

〔最終試験結果〕

平成27年 6月 23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、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔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。