

Title	効率的で低コストな有機太陽電池のための作製プロセスの開発
Author(s)	Razali, Nur Tahirah Binti
Citation	
Issue Date	2014-12
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10119/12620">http://hdl.handle.net/10119/12620</a>
Rights	
Description	Supervisor:村田 英幸, マテリアルサイエンス研究科, 博士

氏 名	NUR TAHIRAH BINTI RAZALI			
学 位 の 種 類	博士(マテリアルサイエンス)			
学 位 記 番 号	博材第 363 号			
学 位 授 与 年 月 日	平成 26 年 12 月 24 日			
論 文 題 目	Development of Fabrication Processes for Efficient and Low Cost Organic Solar Cells (効率的で低コストな有機太陽電池のための作製プロセスの開発)			
論 文 審 査 委 員	主査	村田 英幸	北陸先端科学技術大学院大学	教授
		富取 正彦	同	教授
		松見 紀佳	同	教授
		大平 圭介	同	准教授
		松尾 豊	東京大学	特任教授

## 論文の内容の要旨

The development of fabrication processes in terms of morphological changes and vacuum free process for efficient and low cost organic solar cells (OSC) has been studied. The effect of annealing and interlayer to the device performances were investigated. Devices that were post-annealing after top electrode deposition have increased the solar cell performances significantly as compared to that of the devices without post-annealing. Post-annealing induced polymer crystallization and resulting in enhancement in the absorption. Vertical phase segregation also could occur as a result of annealing. In regular bulk heterojunction (BHJ), both polymer crystallization and vertical phase segregation contributed to the better device performance, whereas in the inverted BHJ, the concentration gradient remains unchanged after annealing because of the insertion interlayers. Therefore, the increased in inverted device performances is due to the polymer crystallization. The OSC device performance can be further enhanced by inserting interlayer such as poly(3,4-ethylenedioxythiophene) poly(styrenesulfonate) (PEDOT:PSS) which acts as both hole transporting layer and electron blocking layer, and titanium (IV) oxide ( $\text{TiO}_x$ ) which function as electron transporting layer as well as hole blocking layer. These interlayers promoted charge collection, prevent charge recombination and current leakage. To reduce the device fabrication cost, we investigated inverted bulk heterojunction solar cells fabricated with gold (Au) leaf as laminated top electrodes to replace the costly and time consuming vacuum evaporation process. We demonstrated that the Au leaf can be successfully transferred from a supporting polyethylene terephthalate (PET) substrate to the surface of PEDOT:PSS due to sufficiently higher work of adhesion of Au leaf with PEDOT:PSS compared to PET. By optimizing the lamination conditions by increasing the lamination temperature, the contact between the Au leaf and the PEDOT:PSS becomes homogeneous, thus the power conversion efficiency (PCE) improves. Using Naphtho[1,2-c:5,6-c']bis[1,2,5]thiadiazole based polymer as

the p-type semiconductor, the PCE reached 5.07%. The laminated devices exhibited excellent stability comparable to that of the evaporated devices. Although silver and alloys leaves are cheaper than Au leaf, they exhibit lower PCE because of the oxidation, thus not suitable materials as an electrode. Vacuum free process not only reduced the waste of materials but also shortened the fabrication time, which lead to the low cost OSC.

Keywords: Organic solar cells, Thermal annealing, Lamination, Work of adhesion, Low cost device

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、バルクヘテロ型有機太陽電池において、高い変換効率と低コスト化を両立させる新規素子作製プロセスの構築を目指した応用研究である。高効率化に関しては、順構造型バルクヘテロ太陽電池の変換効率が、熱処理によって 1.48% から 2.47% へと大きく向上する点に着目し、この効率向上の原因を、J-V 特性の等価回路シミュレーション、有機層内部の凝集構造分析から検討した。変換効率の向上は、開放端電圧 ( $V_{oc}$ ) とフィルファクター (FF) の増加に起因しており、これらは暗時の J-V 特性の等価回路シミュレーションからリーク電流の減少と直列抵抗の低下に由来することが分かった。次に、J-V 特性に現れた素子特性の向上と有機層の組織構造との相関性を明らかにするために、走査型透過電子顕微鏡 (STEM) に付属したエネルギー分散型 X 線分析 (EDS) によって解析した。その結果、熱処理によってアクセプター性低分子材料 (PCBM) が陰極近傍に自己組織的に凝集し、電子選択層が形成されることで逆飽和電流が減少したことが分かった。一方、熱処理前後の吸収スペクトルと X 線回折測定 (GIXRD) からは、ドナー型高分子材料 (P3HT) の回折強度の増加と結晶サイズの増加が認められ、P3HT の結晶性向上に伴う移動度の増加と直列抵抗の低下が FF 向上の主要因であることが分かった。これらの知見を、逆構造型バルクヘテロ太陽電池に適用し変換効率の高い有機太陽電池を得ることに成功した。

得られた高効率太陽電池を低価格で製造可能とするため、逆構造型バルクヘテロ太陽電池の電極形成を金薄膜のラミネーション法や金微粒子インク等の非真空プロセスによって実現することを試みた。ラミネーション法による電極形成では、金属箔を保持するための適切な基板の選択が特に重要となる。基板上に保持した金薄膜は、取り扱い時には安定に固定されている必要があるが、素子作製時には有機層側へと容易かつ完全に転写される必要がある。従来、保持基板の選択は試行錯誤的に行われていたが、本研究では、基板と金属箔の表面自由エネルギーから求まる接着仕事 ( $W$ ) を基板選択の指標として用いた。その結果、ラミネーション法で作製した有機太陽電池としては、世界最高の変換効率 (5.07%) を実現した。これに加えて、ラミネーション法で作製した有機太陽電池は、真空蒸着法で電極作製した素子と同等の安定性を示すことも明らかにした。

以上、本研究では高効率化を実現するために重要な素子構造の特徴を熱処理前後の有機層の凝集構造変化から明らかにし、ラミネーション法によって高効率の太陽電池を真空プロセスを用いない新規な製造方法で実現したものであり、学術的および工業的にも貢献するところが大きい。よって博士 (マテリアルサイエンス) の学位論文として十分価値あるものと認めた。