

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 9 月 15 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26790021

研究課題名(和文)カーボンナノチューブ電極を用いた半透明有機薄膜太陽電池の開発

研究課題名(英文)Development of semitransparent organic solar cells using single-wall carbon nanotube electrodes

研究代表者

藤井 俊治郎 (Shunjiro, Fujii)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・ナノ材料研究部門・主任研究員

研究者番号：80586347

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ナノ炭素材料の単層カーボンナノチューブを有機薄膜太陽電池の透明電極として用いることにより、半透明な太陽電池を実現することを目的とした。初年度は、予備実験として、金属/酸化物多層膜を透明電極として採用し、発電材料に半導体ポリマーとフラーレン誘導体を用いた半透明な有機太陽電池の作製に成功した。次年度は、この作製技術を基盤として、単層CNT導電膜を上部電極として用いた半透明な有機太陽電池の開発を行った。支持基板上に単層CNT導電膜を塗布成膜した後、ITO付ガラス基板上に活性層まで形成した基板と貼り合わせるといった簡便な作製手法を開発し、新規構造の半透明太陽電池の作製に成功した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this work is to fabricate semitransparent organic solar cells utilizing single-wall carbon nanotube (SWCNT) film, which is one of the nano-carbon materials, as top electrode. During the first year, as a preliminary experiment, we used oxide/thin metal/oxide multilayer structure for the transparent top electrode and succeeded in fabricating semitransparent organic solar cells using semiconducting polymer and fullerene derivative as an active layer. During the second year, based on the fabrication conditions, we carried out a fabrication of semitransparent organic solar cells using SWCNT top electrode. We developed simple method in a way that the active layer on ITO/glass substrate and SWCNT film on PET substrate were laminated together by pressing. As a result, the new semitransparent organic solar cell using SWCNT electrode was successfully fabricated.

研究分野：ナノ材料工学

キーワード：カーボンナノチューブ 透明電極 有機薄膜太陽電池 半透明太陽電池

## 1. 研究開始当初の背景

近年、製造コストが高いシリコン太陽電池の代替技術として、新型太陽電池の研究が活発に行われている。その中でも、有機薄膜太陽電池は、有機半導体を用いた新しい太陽電池の一つであり、軽量でフレキシブルであるという特長を持ち、低コストかつ大面積化が可能であることから、実用化が望まれている。有機薄膜は一般に吸光度が低く、入射光子を全て吸収するためには、厚い膜が必要になる。一方、有機半導体は移動度が低いため、厚膜になると、生成したキャリアを補足できなくなってしまう。この問題を克服するために、2002年にフラーレン誘導体(n型)とp型半導体ポリマーのポリチオフェンをブレンドしたバルクヘテロ接合型有機薄膜太陽電池が登場し、近年もその研究が活発に行われている。しかし、仕事関数の関係で陰極には金属を用いる必要があり透明ではないため、太陽電池セルを多層化した積層構造を作製することが非常に難しい。太陽電池セルを半透明化することができれば積層化が可能となり、積み重ねるだけでセルの発電効率を大幅に向上させることが期待される。半透明な透過型太陽電池を実現するには、上部電極も透明な電極に置き換える必要がある。そこで本研究では、金属電極の代わりに単層カーボンナノチューブ(CNT)導電膜を透明電極として採用することを提案する。本課題で提案する新規太陽電池は、自動車の窓への搭載など新技術分野への応用展開も期待される。

## 2. 研究の目的

本研究では、単層CNTを有機薄膜太陽電池の透明電極として用いることにより、半透明な太陽電池を実現することを目的とする。上部電極として用いられる金属電極の代わりに、炭素材料で高い透過率を持つ単層CNTを採用して、半透明な新規有機薄膜太陽電池の作製を目指す。

## 3. 研究の方法

### (1) 金属/酸化物多層膜を用いた太陽電池

まず、単層CNT薄膜を電極に用いる予備実験として、金属/酸化物多層膜を半透明電極として採用し、デバイス構造の検討を行う。図1(a)に活性層材料を示す。p型半導体として、峽ギャップポリマーのPTB7をn型半導体としてC70フラーレン誘導体(PC<sub>71</sub>BM)を用いる。その混合溶液をITO電極付ガラス基板に塗布することにより、バルクヘテロ構造の太陽電池を作製する。そのデバイス構造は、図1(b)に示すように、ガラス/ITO/バッファ層/活性層(PTB7:PC<sub>71</sub>BM)/酸化モリブデン(MoO<sub>3</sub>)/金薄膜(15nm)/MoO<sub>3</sub>。上部の酸化モリブデンは、金の上にキャッピング層として覆うことにより透過率を増加させるために用いる。太陽電池のセルの面積は0.04 cm<sup>2</sup>である。

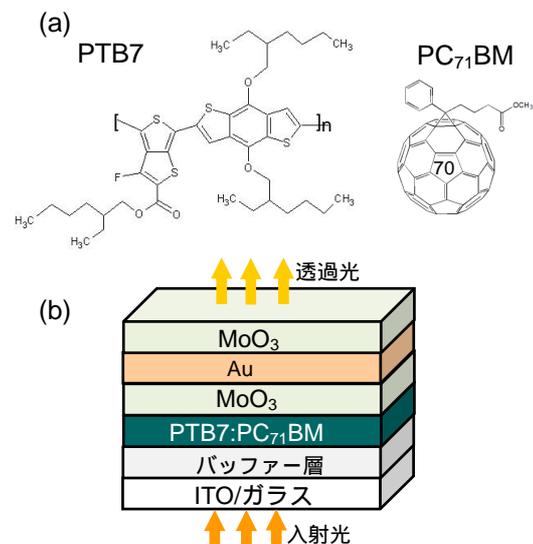


図1 (a)活性層に使用した半導体ポリマーおよびフラーレン誘導体の分子構造。(b)半透明有機薄膜太陽電池の模式図。

### (2) 単層CNT薄膜を用いた太陽電池

まず、活性層までは上記と同じ方法により作製する。次に、活性層上にバッファ層(導電性ポリマー)と単層CNT分散液を直接塗布する方法、あるいは支持基板上に単層CNT導電膜を塗布成膜した後、活性層まで形成した基板と貼り合わせる方法を用いる。

#### 4. 研究成果

##### (1) 金属/酸化物多層膜を用いた太陽電池

図 2(a)に、作製した半透明太陽電池の透過スペクトルを示す。金薄膜/酸化モリブデン電極を用いた場合、入射光 550 nm におけるデバイス全体の透過率は 40%以上を示した。図 2(b)に、基準太陽光照射下で電流密度-電圧 (J-V)特性の測定を行った結果を示す。ITO 電極側 (正面) および酸化モリブデン/金電極側 (背面) から光照射した場合の発電効率がそれぞれ 2.3%、2.8%であり、どちらの側から光を当てても発電した。図 2(c)に示す分光感度特性からも、両面からの発電を確認することができた。

背面より正面から光を入射した場合の方が、短絡電流および変換効率が高かった。これは、正面 (ガラス/ITO/バッファ層)の透過率が、背面 (MoO<sub>3</sub>/Au/MoO<sub>3</sub>)より高く、活性層で吸収される光量が、正面から入射した時の方が多くなるためだと考えられる。比較として、不透明な金電極 (100 nm)を用いて、同条件で作製した太陽電池の変換効率は 3.9%であった。半透明な太陽電池の変換効率が不透明な場合に比べて低いのは、金電極で反射され活性層で再吸収される光量が減少するためである。

##### (2) 単層 CNT 薄膜を用いた太陽電池

金属/酸化物多層膜を半透明有機太陽電池の作製に成功したので、その作製技術を基に、次のステップとして、単層 CNT 導電膜を半透明電極に用いた太陽電池の作製の開発を行った。まず、活性層上にバッファ層 (導電性ポリマー) と単層 CNT 分散液を直接塗布する方法を試した。しかし、単層 CNT 薄膜-活性層間のコンタクトがとれず、発電が確認できなかった。そこで、支持基板上に単層 CNT 導電膜を塗布成膜した後、活性層まで形成した基板と貼り合わせるという作製手法を開発した。この方法では、活性層との間に、接着剤を含有した導電性ポリマーを挿入す

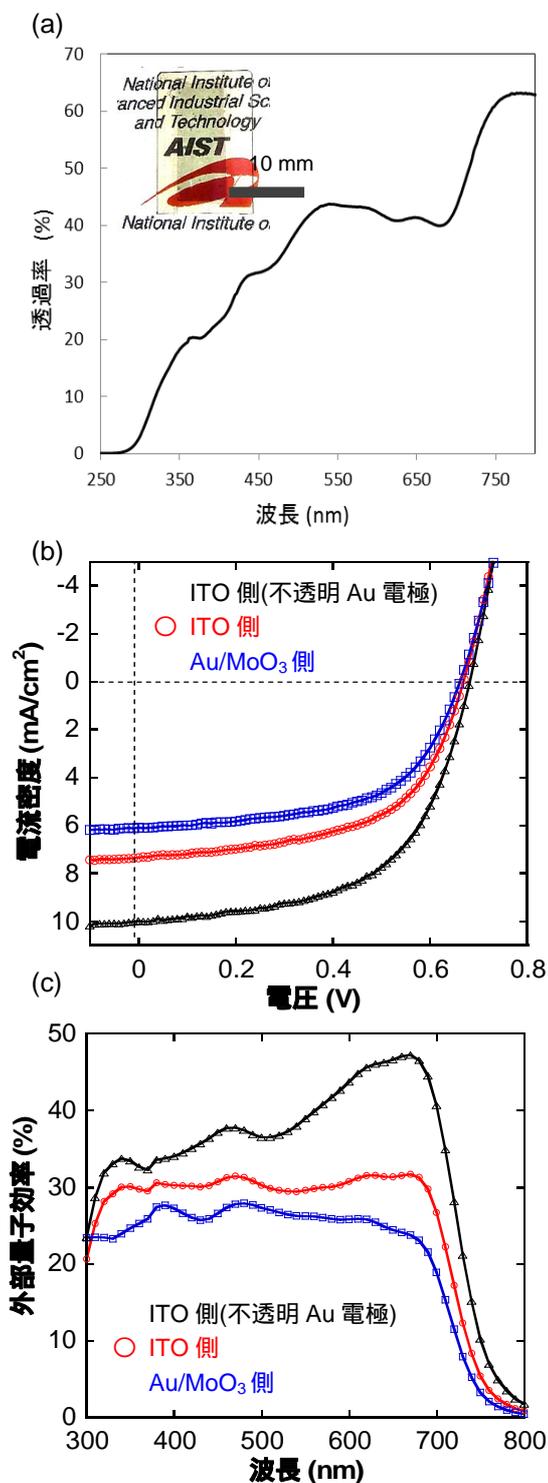


図 2 (a) 半透明有機薄膜太陽電池の透過スペクトル、挿入図は実物の写真. (b) AM1.5G 100 mW/cm<sup>2</sup>における電流密度対電圧 (J-V)特性. (c) 各入射条件での分光感度特性.

るとコンタクトが良くなり、太陽電池の性能も向上することが分かった。最終的なデバイス構造は、図 3(a)に示すように、ガラス/ITO/バッファ層/活性層 (PTB7:PC<sub>71</sub>BM) / PEDOT:PSS/単層 CNT 導電膜/PET基板である。入射光 550nm における透過率は 34%を

示し、両面から発電することを確認することができた。図 3(b)に、基準太陽光照射下で J-V 特性の測定を行った結果を示す。単層 CNT/PET 側および ITO 電極側から光照射した場合の発電効率がそれぞれ 0.2%、0.4%であった。

単層 CNT 電極を PTB7 : PC<sub>71</sub>BM 系太陽電池に適用した半透明太陽電池の作製は、本研究課題が初めてである。本成果を基に、国際学会 The 16th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT15、2015 年 7 月)で発表を行い、高い評価を得た。発電効率のさらなる向上には、CNT 導電膜の導電性(本研究課題では透過率 80%で 400 /sq)を上げる必要があると考えられるが、当初計画していた単層 CNT 導電膜を上部電極に用いた半透明な太陽電池を作製することに成功した。

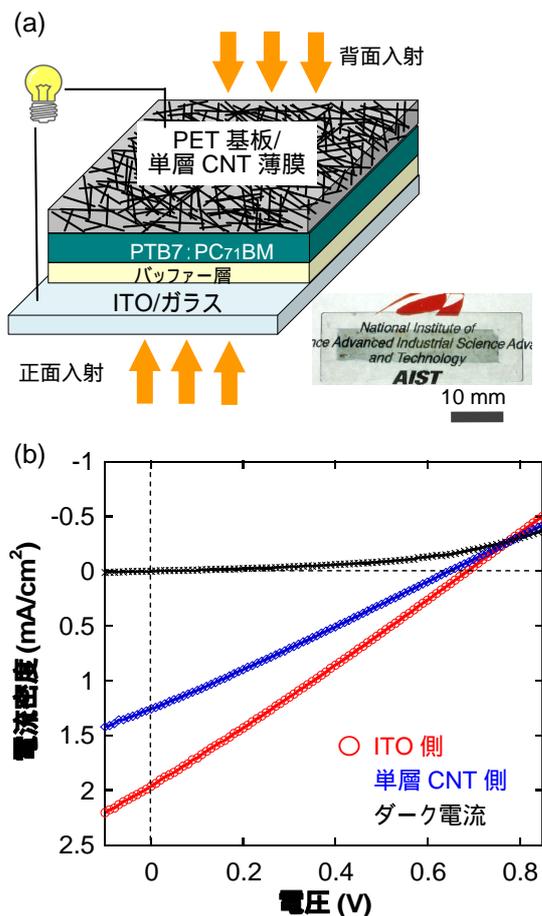


図 3 (a)単層 CNT 電極を用いた半透明有機薄膜太陽電池の模式図および実物の写真。(b) AM1.5G 100 mW/cm<sup>2</sup>における電流密度 J-V 特性。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 5 件)

Shunjiro Fujii, Kosei Hashiba, Tetsuo Shimizu, Yasuhiro Nishioka, Hiromichi Kataura, Semitransparent Inverted Organic Solar Cells Using an Oxide/metal/oxide Transparent Anode, Journal of Photopolymer Science and Technology, in press

Koudai Kiriishi, Kosei Hashiba, Jiayu Qiu, Tatsuki Yanagidate, Masaya Ohzeki, Shunjiro Fujii, Hiromichi Kataura, Yasuhiro Nishioka, Solution-processed NiO layers for PTB7: PC<sub>71</sub>BM Organic Solar Cells, 査読有, 620, 2015, 38-44, DOI: 10.1080/15421406.2015.1094857

Jiayu Qiu, Kodai Kiriishi, Kosei Hashiba, Shunjiro Fujii, Hiromichi Kataura, Yasuhiro Nishioka, Bulk-heterojunction Solar Cells Based on Ternary Blend Active Layers of PTB7, PC<sub>61</sub>BM, and PC<sub>71</sub>BM, Journal of Photopolymer Science and Technology, 28, 2015, 377-383, DOI: 10.2494/photopolymer.28.377

Yurina Ohori, Shunjiro Fujii, Hiromichi Kataura, Yasuhiro Nishioka, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有, 54, 2015, 04DK09-1-8, DOI: 10.7567/JJAP.54.04DK09

Suguru Kobayashi, Daichi Kaneto, Shunjiro Fujii, Hiromichi Kataura, Yasuhiro Nishioka, Bulk Heterojunction Organic Solar Cells Fabricated Using the Push Coating Technique, Journal of the Chinese Advanced Materials Society, 査読有, 3, 2015, 1-8, DOI: 10.1080/22243682.2014.977821

〔学会発表〕(計 8 件)

Shunjiro Fujii, Semitransparent organic solar cells using low-bandgap polymers, 6th New Energy Forum-2016 (NEF-2016), 発表確定, 招待講演, 2016-07-02, Korea International Exhibition Center (South Korea)

Yuta Kaneko, Shunjiro Fujii, Hiromichi Kataura and Yasuhiro Nishioka, Bulk heterojunction solar cells Based on Ternary Blend Active Layer of Two Donors PCDTBT, PTB7 and Acceptor PC<sub>71</sub>BM, The Energy, Materials, and Nanotechnology (EMN) Photovoltaics Meeting 2016, 招待講演, 2016-01-18, the Eaton Hotel in Hong Kong (China)

藤井 俊治郎、田中 丈士、片浦 弘道、  
スタック構造を用いた半透明タンデム  
有機薄膜太陽電池、第 76 回応用物理学  
会秋季学術講演会、2015-09-13、名古  
屋国際会議場（名古屋市）

Shunjiro Fujii, Takeshi Tanaka,  
Hiromichi Kataura, Semitransparent  
organic solar cells using single-wall  
carbon nanotube thin films as top anode,  
The 16th International Conference on  
the Science and Application of  
Nanotubes (NT15), 2015-07-02, Nagoya  
University (Nagoya)

藤井 俊治郎、田中 丈士、片浦 弘道、  
金属/酸化物多層膜を陽極として用いた  
半透明有機薄膜太陽電池の作製、第 62  
回応用物理学会春季学術講演会、  
2015-03-12、東海大学（平塚市）

藤井 俊治郎、田中 丈士、片浦 弘道、  
Fabrication of semitransparent tandem  
organic solar cells using  
multiple-device stacked structure、第  
48 回フラーレン・ナノチューブ・グラフ  
ェン総合シンポジウム、2015-02-23、東  
京大学（文京区）

藤井 俊治郎、田中 丈士、片浦 弘道、  
フレキシブル基板上での逆構造型  
PTB7:PC<sub>71</sub>BM 有機薄膜太陽電池の作  
製、第 75 回応用物理学会秋季学術講演  
会、2014-09-17、北海道大学（札幌市）

藤井 俊治郎、田中 丈士、片浦 弘道、  
Semitransparent PTB7:PC<sub>71</sub>BM solar  
cells using an oxide/metal/oxide  
transparent anode、第 47 回フラーレン・  
ナノチューブ・グラフェン総合シンポジ  
ウム、2014-09-03、名古屋大学（名古屋  
市）

〔その他〕

ホームページ等

<https://staff.aist.go.jp/sh-fujii/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

藤井 俊治郎 (FUJII, Shunjiro)  
産業技術総合研究所・ナノ材料研究部  
門・主任研究員  
研究者番号：80586347