

## 分子機能研究部門

平 本 昌 宏 (教授) (2008年4月1日着任)

A-1) 専門領域：有機半導体，有機太陽電池，有機エレクトロニクスデバイス

A-2) 研究課題：

- a) 有機半導体の pn 制御の機構解明
- b) ドーピングと第3分子導入との統合による高効率有機薄膜太陽電池の開発
- c) 有機太陽電池用共蒸着膜の結晶化 / 相分離方法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 昨年度までに、ほぼすべての有機半導体に対して、pn 制御が原理的に可能であることを確認した。今年度は、ドーピング機構について詳細に研究した。

ケルビンバンドマッピング法によって、キャリア濃度を正確に評価する方法を確立し、各ドーパントのイオン化率を測定した結果、単独のフラレン ( $C_{60}$ )、フタロシアニン ( $H_2Pc$ ) へのドーピングにおいて、ドナーとして働く  $Cs_2CO_3$  が約 10%、アクセプターとして働く  $MoO_3$  が約 2% であることが分かった。この値は、Si 中のドーパントのイオン化率の 100% よりかなり小さく、有機半導体の比誘電率が無機半導体に比べて小さく、正負電荷が分離しにくいことが原因と考えている。さらに、 $C_{60}:H_2Pc$  共蒸着膜では、 $C_{60}$ 、 $H_2Pc$  各単独膜に比べて、約 10 倍のキャリアが発生し、イオン化率も 50% から 90% まで増大し、ドーピング増感が起こることを発見した。

- b) 伝導度 ( $\sigma$ ) はキャリア濃度 ( $n$ ) とキャリア移動度 ( $\mu$ ) の積で表される [ $\sigma = en\mu$ ]。セル抵抗を減少させて効率向上につなげるには、 $n$  と  $\mu$  の双方を増大する必要がある。キャリア濃度 ( $n$ ) は、上述 (a) のドーピングによって増大できる。キャリア移動度 ( $\mu$ ) は、第3分子を共蒸発させ、共蒸着膜の結晶化 / 層分離を行ってルート形成すれば増大できる。

以上の考えに基づき、第3分子とドーピングを統合して、セル抵抗を本質的に低減し、高効率有機薄膜太陽電池を実現する研究を行った。 $C_{60}:H_2Pc$  共蒸着膜に対して応用したところ、無機太陽電池に近い、 $0.25 \mu m$  もの少数キャリア拡散距離を観測した。さらに、 $C_{70}$  とルプレン誘導体、チオフェン誘導体の共蒸着膜にも適用し、本方法の一般性を検証している。

- c) 有機薄膜太陽電池においては、光生成した電子とホールに対するルートを確保するために、共蒸着膜の結晶化 / 相分離を行って縦型超格子状のナノ構造を形成することが効率向上に不可欠である。今年度は、第3共蒸発分子を用いてルート形成する方法を一般化するため、光学顕微鏡で  $C_{60}$  と  $H_2Pc$  を識別して観測可能な、比較的大きな数 100 nm の幅を持つ縦型超格子構造を作成し、セル特性との関係を探った。今後、超格子幅をナノレベルまで減少させ、どのような有機半導体の組み合わせにも応用できる技術を完成する。

B-1) 学術論文

N. ISHIYAMA, T. YOSHIOKA, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "Tuning of Barrier Parameters of *n*-Type Schottky Junction in Photovoltaic Co-Deposited Films by Doping," *Appl. Phys. Express* **6**, 012301 (3 pages) (2013).

N. ISHIYAMA, M. KUBO, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "Tandem Organic Solar Cells Formed in Co-Deposited Films by Doping," *Org. Electron.* **14**, 1793–1796 (2013).

M. KUBO, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "*pn*-Homojunction Organic Solar Cells Formed in Phase-Separated Co-Deposited Films," *Appl. Phys. Lett.* **103**, 263303 (4 pages) (2013).

M. KUBO, Y. SHINMURA, N. ISHIYAMA, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "Junction Formation by Doping in H<sub>2</sub>Pc:C<sub>60</sub> Co-Evaporated Films for Solar Cell Application," *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **581**, 13–17 (2013).

T. YOSHIOKA, M. KUBO, N. ISHIYAMA, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "Evaluation of Carrier Concentration by C–V Measurements for *p,n*-Controlled C<sub>60</sub> Films," *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **579**, 1–4 (2013).

T. KAJI, S. NAKAO and M. HIRAMOTO, "Effect of Co-Evaporant Induced Crystallization on Needle Growth of Phthalocyanine Thin Films," *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **578**, 63–67 (2013).

Y. SHINMURA, M. KUBO, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "Improved Photovoltaic Characteristics by MoO<sub>3</sub>-Doping to Thick Hole Transporting Films," *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 04CR12 (4 pages) (2013).

K. YOKOYAMA, T. KAJI and M. HIRAMOTO, "Double Co-Deposited Layered Organic Photovoltaic Cells with Sensitivity through the Visible to Near-Infrared," *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 04CR06 (4 pages) (2013).

#### B-3) 総説, 著書

平本昌宏, 嘉治寿彦, 「有機薄膜太陽電池」, 「太陽電池技術ハンドブック」, オーム社(株)第10章 (2013).

嘉治寿彦, 「短絡光電流の増大方法—第3共蒸発分子導入」, 「太陽電池技術ハンドブック」, オーム社(株)第10章細目10 (2013).

平本昌宏, 「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」, *応用物理* **82**(6), 480–486 (2013).

平本昌宏, 新村祐介, 「フタロシアニン単独薄膜におけるpnホモ接合形成」(研究所シリーズ 分子科学研究所) *O plus E* **35**(4), 413–417 (2013).

平本昌宏, 「固体型有機太陽電池の開発動向」, 「2013太陽光発電技術大全」, 電子ジャーナル, 第2編第1章第5節 (2013).

平本昌宏, 「有機薄膜太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」, *月刊ディスプレイ*, 8月号特集「有機系太陽電池」 **19**(8), pp. 55–61 (2013).

平本昌宏, 「有機薄膜太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」, 「人工光合成——システム構築に向けての最新動向技術——」, 福住俊一監修, シーエムシー出版, 第9.1章, pp. 211–220 (2013).

平本昌宏, 久保雅之, 石山仁大, 「有機薄膜太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」, 特集「期待を集める有機光エレクトロニクス」, *月刊オプトロニクス* No. **384**, pp. 50–54 (2013).

嘉治寿彦, 「共蒸発分子誘起結晶化法による有機薄膜太陽電池のドナー:アクセプター混合膜の結晶化」, 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会奨励賞受賞記念寄稿, *Molecular Electronics and Bioelectronics* **24**(4), 230–235 (2013).

#### B-4) 招待講演

M. HIRAMOTO, "Photovoltaic Energy Development—Bandgap Science for Organic Thin-Film Solar Cells—," Chimie Paristech–IMS 3<sup>rd</sup> Joint Symposium: "Frontier in Molecular Science Based on Photo and Material," IMS, Okazaki (Japan), February 2013.

M. HIRAMOTO, "Bandgap Science for Organic Thin-Film Solar Cells," 7<sup>th</sup> International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics, M&BE7, Fukuoka International Congress Center, Fukuoka (Japan,) March 2013.

M. KUBO, "pn-Homojunction Organic Solar Cells Formed in the Thick Phase-Separated Co-Deposited Films by Doping," KJF-ICOME2013 (KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics), Busan (Korea), August 2013.

M. HIRAMOTO, "Bandgap Science for Organic Thin-Film Solar Cells," Global Photovoltaic Conference 2013 (GPVC 2013), The 8<sup>th</sup> Aseanian Conference on Dye-Sensitized & Organic Solar Cells (DSC-OPV8), Busan (Korea), November 2013.

平本昌宏,「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」CREST「太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出」研究領域第1回公開シンポジウム, 豊田工業大学, 名古屋, 2013年1月.

嘉治寿彦,「様々なアクセプタを用いた有機薄膜太陽電池の共蒸発分子誘起結晶化法による光電流向上」電気情報通信学会有機エレクトロニクス研究会(OME)ウイック愛知, 名古屋, 2013年1月.

平本昌宏,「有機薄膜太陽電池太陽電池の現状と将来」第14回自然科学研究機構シンポジウム「分子が拓くグリーン未来」学術総合センター(一橋講堂)東京, 2013年3月.

平本昌宏,「バンドギャップサイエンス」第5回有機薄膜太陽電池サテライトミーティング, かながわサイエンスパーク(KSP)西棟701会議室, 川崎, 2013年3月.

平本昌宏,「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」近畿化学協会機能性色素部会「次世代の色素・顔料技術, その新たな展開」大阪科学技術センター, 大阪, 2013年5月.

平本昌宏,「有機薄膜太陽電池の基礎」先導的物質変換領域(ACT-C)第2回領域会議特別講演, 富士ソフトアキバプラザ5階アキバホール, 東京, 2013年6月.

平本昌宏,「共蒸着膜へのドーピングによる有機薄膜太陽電池」CREST有機太陽電池シンポジウム——用途開発と産業展開への道——, 京都大学宇治構内おうばくプラザ・きはだホール, 宇治, 2013年7月.

平本昌宏,「有機薄膜太陽電池の開発」TECH Biz EXPO2013(第3回次世代ものづくり基盤技術産業展)ポートメッセ名古屋, 2013年10月.

平本昌宏,「有機系太陽電池コース」PV Tutorial(SEMI ジャパン)東京市ヶ谷, 2013年10月.

平本昌宏,「有機薄膜太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」文部科学省「革新的ハイパフォーマンス・コンピューティング・インフラ(HPCI)の構築」HPCI戦略分野2「新物質・エネルギー創成」計算物質科学イニシアティブ(CMSI)計算分子科学研究拠点第3回実験化学との交流シンポジウム, 京都大学福井謙一記念研究センター, 京都, 2013年11月.

平本昌宏,「有機半導体のpn制御と有機薄膜太陽電池」2013年度後期物性研究所短期研究会「エネルギーと新材料の物性・物質科学」東京大学物性研究所, 柏, 2013年11月.

嘉治寿彦,「有機薄膜太陽電池のドナー:アクセプター混合層の共蒸発分子誘起結晶化」有機分子・バイオエレクトロニクス分科会奨励賞受賞記念講演, 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 同志社大学京田辺キャンパス, 京田辺, 2013年9月.

嘉治寿彦,「共蒸発分子誘起結晶化法の研究開発とその有機薄膜太陽電池応用」第4回有機分子・バイオエレクトロニクスの未来を拓く若手研究者討論会, レイクフォレストリゾート, 京都, 2013年9月.

平本昌宏,「有機半導体の基礎, 特に, 有機薄膜太陽電池, pn制御」分子工学特別講演会(京都大学化学研究所)桂キャンパス, 京都, 2013年12月.

平本昌宏,「有機薄膜太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」関西化学フォーラム「次世代太陽電池研究の最前線」関西学院大学神戸三田キャンパス, 三田, 2013年12月.

平本昌宏,「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」高分子学会有機エレクトロニクス研究会「有機薄膜太陽電池の研究最前線」東工大蔵前会館, 東京, 2013年12月.

## B-6) 受賞, 表彰

嘉治寿彦, 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会奨励賞 (2013).

嘉治寿彦, 第31回(2011年秋季)応用物理学会講演奨励賞 (2011).

平本昌宏, 国立大学法人大阪大学教育・研究貢献賞 (2006).

平本昌宏, 応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会論文賞 (2006).

平本昌宏, JJAP(Japanese Journal of Applied Physics) 編集貢献賞 (2004).

平本昌宏, 電子写真学会研究奨励賞 (1996).

## B-7) 学会および社会的活動

### 学会の組織委員等

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会幹事 (1997-1998, 2001-2002).

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会年会講演プログラム委員 (2002-2003).

Korea-Japan Joint Forum (KJF)—Organic Materials for Electronics and Photonics, Organization Committee Member (2003-).

「有機固体における伝導性・光伝導性および関連する現象」に関する日中合同シンポジウム組織委員 (2007-).

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会年会講演プログラム委員長 (2008-2009).

Fifth International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE5)(Miyazaki), Organization Committee Member (2009).

東京大学物性研究所2011年度後期短期研究会「エネルギー変換の物性科学」オーガナイザーメンバー (2011).

有機薄膜太陽電池サテライトミーティング世話人代表 (2009-).

The 37<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2010), Programm Committee Member of the Session “Organic Semiconductor Materials and Devices,” 31 May-4 June 2010, Takamatsu Kagawa, Japan (2010).

The 40<sup>th</sup> International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2013), Program Committee Member, “Organic Semiconductors and Flexible Materials,” Kobe Convention Center, Kobe, Japan, May 19-23 (2013).

応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科会幹事 (2012-2013). (嘉治寿彦)

### 文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

科学技術交流財団(財)「有機半導体の基礎科学と有機太陽電池への応用に関する研究会」座長 (2009-2011).

京都大学化学研究所全国共同利用・共同研究拠点連携基盤専門小委員会委員 (2011-2012).

### 学会誌編集委員

*Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)* 誌 編集委員 (2001-2002, 2004-2007).

*Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)* 誌 ゲストエディター (2005).

### 競争的資金等の領域長等

東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究「有機半導体デバイスの基礎と応用」研究代表者 (2003-2005).

さががけ「太陽光と光電変換」研究領域 領域アドバイザー (2009-).

戦略的創造研究推進研究(CREST)「低エネルギー, 低環境負荷で持続可能なものづくりのための先導的な物質変換技術の創出(ACT-C)」研究領域 領域アドバイザー (2012-).

その他

岡崎ビジネス大賞評価委員 (2012).

岡崎ものづくり協議会学識委員 (2011-).

B-8) 大学での講義, 客員

大阪大学社会人人材教育プログラム, 「有機太陽電池(I)(II) (ナノ高度学際教育研究訓練プログラム講義(2013年度))」, 2013年10月29日.

京都大学大学院エネルギー科学研究科, 「先進エネルギー生成学I(修士)」 「先進エネルギー生成学特論I(博士)」 客員教授, 2013年度後期.

京都大学大学院工学研究科, 「分子工学特論第三」(修士) 2013年12月9日-10日.

B-9) 学位授与

石山仁大, 「Design of the Energy Structures of Photovoltaic Organic Co-deposited Films by Impurity Doping」 2013年9月, 博士(理学)

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(C)(2), 「高効率有機3層接合型固体太陽電池の開発」 平本昌宏 (2006年-2007年).

科研費基盤研究(C)(2), 「垂直接合型有機固体太陽電池の開発」 平本昌宏 (2004年-2005年).

科研費基盤研究(C)(2), 「分子結晶におけるステップ構造制御と増幅型光センシングデバイス」 平本昌宏 (2002年-2003年).

科学技術振興機構特許補完研究プログラム, 「光電流増倍現象等を利用したガス検知方法及びガスセンサー」 平本昌宏 (2003年).

科学技術振興機構シーズ育成試験, 「p-i-n 接合型有機固体太陽電池」 平本昌宏 (2005年).

科学技術振興機構産学共同シーズイノベーション化事業顕在化ステージ, 「高効率有機固体太陽電池の実用化試験」 平本昌宏 (2006年-2007年).

科学技術戦略推進機構アカデミアショーケース研究助成, 「p-i-n 有機太陽電池の開発」 平本昌宏 (2006年).

(財)関西エネルギー研究基金(KRF) 助成, 「有機半導体のpn制御とp-i-n 有機固体太陽電池の開発」 平本昌宏 (2008年).

NEDO 「太陽光発電システム未来技術研究開発」 「超階層ナノ構造を有する高効率有機薄膜太陽電池の研究開発」 平本昌宏(分担)(2006年度-2009年度).

科学技術振興機構CREST 研究, 「二酸化炭素排出抑制に資する革新的技術の創出」 「有機薄膜太陽電池の高効率化に関する研究」 平本昌宏(分担)(2008年度-2009年度).

科研費基盤研究(B)(2), 「有機半導体のイレブンナイン超高純度化による10% 効率有機薄膜太陽電池の開発」 平本昌宏 (2009年-2012年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「直立超格子ナノ構造を組み込んだ高効率有機太陽電池」 平本昌宏 (2009年-2010年).

科研費挑戦的萌芽研究, 「クロスドーピングによる有機薄膜太陽電池」 平本昌宏 (2012年-2013年).

科学技術振興機構CREST 研究, 「太陽光を利用した独創的クリーンエネルギー生成技術の創出研究領域」 「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」 平本昌宏 (2009年-2014年).

科学技術振興機構先端的低炭素化技術開発( ALCA )「有機薄膜太陽電池の結晶性理想構造の共蒸発分子誘起結晶化法による実現と高効率化」嘉治寿彦(2012年-2018年).

科研費基盤研究(B)「共蒸着膜のpn制御による15%効率有機タンデム太陽電池の開発」平本昌宏(2013年-2015年).

科研費若手研究(B)「共蒸発分子誘起結晶化法の異種材料展開と原理探求」嘉治寿彦(2013年-2014年).

#### B-11) 産学連携

共同研究(積水化学(株))「有機・無機半導体界面における半導体物性測定」平本昌宏(2012年-2013年).

#### C) 研究活動の課題と展望

CREST プロジェクト「有機太陽電池のためのバンドギャップサイエンス」(研究代表者:平本)の遂行のために 研究員5名(久保, 新村, 菊池, 山品, 安部)を雇用している。2013年は, 嘉治助教, 中尾研究員, 杉原(秘書)と私の4名とあわせ, 9名のグループで研究を行った。ALCA プロジェクト「有機薄膜太陽電池の結晶性理想構造の共蒸発分子誘起結晶化法による実現と高効率化」(研究代表者:嘉治)の推進のために, セル作製と測定をすべて大気にさらさず行うことのできる, 新型蒸着装置を導入した。有機半導体のドーピングによるpn制御技術はほぼ確立できたので, 多くの有機半導体の組み合わせから成る共蒸着膜に対して一般的有効なセル設計方法を開発している。効率向上を実際に示し, 次の段階のプロジェクトにつなげることが必要である。有機半導体を無機半導体なみに取り扱えるレベルに早期に到達することが必要である。

2週に1度, 1日かけて研究報告とディスカッションを強力に行っている。研究員の2名(久保, 新村)は, 自分で英語論文をかける実力に達している。来年度より, 博士課程学生1名が参加する予定。