

# 有機太陽電池の光伝搬解析と反射防止構造の設計

久保田 繁<sup>†</sup>, 鹿又 健作, 初山 克章, 鈴木 貴彦, 廣瀬 文彦

山形大学 大学院理工学研究科 〒992-8510 山形県米沢市城南 4-3-16

E-mail: <sup>†</sup> kubota@yz.yamagata-u.ac.jp

**あらまし** 有機太陽電池の反射防止膜を設計するための実用的な手法を開発した。本設計手法では、あらかじめ使用に供する材料の種類を指定した場合に、短絡電流を最大にする、各層の材料の組み合わせと膜厚の最適解を見つけることができる。さらに、膜厚誤差に対するロバスト性や、使用する材料の層数等の生産上の重要な特性を考慮した、最適に近い解（準最適解）を見つけて、実際の反射防止膜の検討を行うことも可能である。また、提案する設計方法と比較するため、材料を限定せずに屈折率の最適化を行った場合の解の特性、及び反射防止膜の基板に対する相対位置が発電電流に与える影響についても検討を行った。

**キーワード** 有機太陽電池, 反射防止, システム最適化, ロバスト設計法

## Optical analysis and design of the anti-reflection coating for organic solar cells

Shigeru Kubota, Kensaku Kanomata, Katsuaki Momiyama, Takahiko Suzuki, Fumihiko Hirose

Graduate School of Science and Engineering, Yamagata University,

4-3-16 Jonan, Yonezawa, Yamagata, 992-8510 Japan

**Abstract** We developed a practical design method for antireflection coatings for organic solar cells. In this analysis, after the user set the layer number and each optical properties of refractive index ( $n$ ) and extinction coefficient ( $k$ ), the system automatically offers the optimized solution for the best short circuit current density in the solar cell and quasi-optimized solutions. This analysis allows for the evaluation of effects of thickness deviation for each layer on the power generation performance. We studied, for comparison, the cases where the refractive index of the materials used in antireflection coatings is optimized, and also examined the effects of the position of the antireflection coatings, within the solar cells, on their performance.

**Keyword** Organic solar cells, Antireflection coating, System optimization, Robust design method

### 1. はじめに

太陽光発電のコスト削減や、製造プロセスの単純化を目的として、近年、有機太陽電池の開発が活発に行われている[1]。現状の開発項目は、新規材料や製造プロセスに関連する内容が多いが、今後、発電効率をさらに向上させるために、有機太陽電池に適した反射防止技術の必要性が高まると予想される[2]。

一般的な反射防止技術は、古くから広く研究されており、様々な手法が提案されている。従来は、4分の1波長の膜から構成される多層薄膜を用いる手法が中心であったが[3]、最近の研究[4, 5]により、異なる層間で屈折率が徐々に変化する *graded-refractive-index* (GRIN)構造により、広いスペクトル範囲で反射率を低下できることが報告されている。GRIN 構造を実用化するには、屈折率を正確に調節した材料を作成することが困難な課題であるが[6]、Sol-gel を用いたアプローチや、nanoporous 材料を用いた方法が提案されてい

る[4, 5, 6]。その他の重要な反射防止技術には、ナノまたはマイクロ構造を太陽電池表面に付加する手法が挙げられる[2, 6]。このような光波長より小さい構造を持つ材料は、反射防止膜の屈折率を制御するのみでなく、長波長光の光路長も増加させることで、光を太陽電池内部に閉じこめて、性能をさらに向上させることができる[7]。

反射防止構造の光学設計の観点からは、これらの GRIN 及びナノ/マイクロ構造といった近年開発された手法は、材料の屈折率や表面形状の精密な制御を通じて、設計の自由度を高める役割を果たすと考えられる。一方、有機太陽電池の持つ低コスト、単純な製造プロセスといったシリコン太陽電池に対する優位性[1]を十分に利用するためには、製造現場で容易に使用可能なコンベンショナルな材料を選択的に使用し、有機太陽電池に特に適した安価な反射防止膜を設計する技術も依然として重要であると考えられる。また、このよ

うな実用的な反射防止膜の設計手法に対する要求として、製造時の膜厚誤差によって性能が低下する影響を評価し、それを考慮した設計案を見つけられることが望ましいであろう。

このような観点から、本研究では、反射防止膜に使用する材料をあらかじめ限定した場合に、発電により得られる短絡電流( $J_{SC}$ )の増大を図るための、有機太陽電池の反射防止構造の設計手法を提案する。提案する設計手法により、最適解に近い準最適な設計案も同時に見つけることができ、最大発電効率を若干犠牲にする代わりに、膜厚誤差に対してよりロバスタな設計解を得ることもできる。また、比較のため、反射防止膜の屈折率と膜厚を同時に最適化した場合の反射防止構造や、反射防止膜の基板に対する位置が性能に与える影響に関しても検討を行う。

## 2. 提案する設計法

### 2.1 最適化アルゴリズム

本研究では、発電により得られる短絡電流を増加させるように、図1に示すように、P3HT/PCBM型有機太陽電池の基板前後に多層反射防止膜を設計する問題を扱う。設計者が、使用可能な材料をあらかじめ指定した場合に、反射防止膜各層の材料組合せと膜厚を最適化するため、材料の組合せを変化させる outer loop と、各層の膜厚の最適化を行う inner loop から構成されるアルゴリズムを、以下のように構築した。

**STEP 1 (outer loop の開始).** 使用できる材料の中から、全数探索により、反射防止膜の各層の材料の組み合わせを1つずつ選択する。

**STEP 2 (inner loop の開始).** 反射防止膜各層の膜厚の初期値を一様分布に従って、ランダムに決定。

**STEP 3.** STEP 2 で決定した初期値を用いて、準ニュートン法により、 $J_{SC}$  を局所的に最大化する反射防止膜の膜厚を探索する。

**STEP 4 (inner loop の終了).** (STEP 2,3 で) あらかじめ規定された回数(50 回)の準ニュートン法による探索が終了した場合には、探索により得られた解の中で最良の解を保存して STEP5 に進み、そうでない場合には STEP 2 に戻る。

**STEP 5 (outer loop の終了).** STEP 1 で全材料の組み合わせが試されていれば、STEP 6 に進む。そうでなければ STEP 1 に戻る。

**STEP 6.** STEP 4 で保存された全ての解を、 $J_{SC}$  の大きさに従ってソートし、既定個数の上位解(準最適解)について、膜厚誤差を考慮した場合の  $J_{SC}$  の低下量(後述する式1の  $\delta J_{SC}$ )を評価し、結果を出力する。

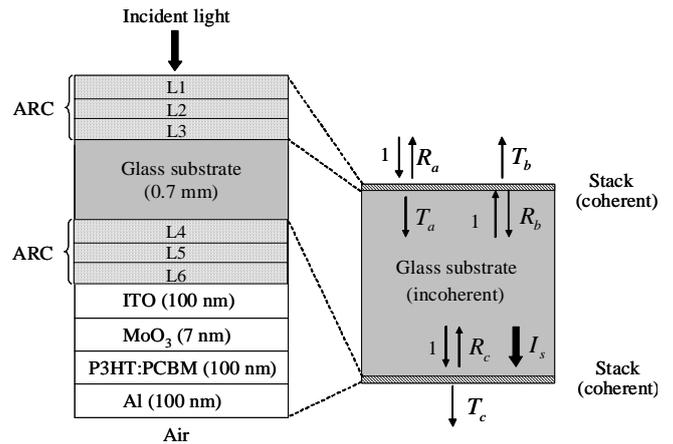


図1 シミュレーションに用いた有機太陽電池の構造。L1-L6(左)が設計により決定される反射防止膜を表す。

Outer loop (STEP 1-5)では、材料の全組合せが順に試されるのに対し、inner loop (STEP 2-4)では、outer loop で選択された材料の各組合せに対し、ランダムサーチと準ニュートン法を組み合わせた Multistart 法[8]により、各層の膜厚に関する大域的最適解を算出する。図1(左)の6層反射防止膜の場合、同じ材料が隣接する場合を除くと、outer loop で選択される材料の組み合わせは144通り存在し、処理時間を主に決定づける準ニュートン法の適用回数は  $7,200(=144 \times 50)$  回となる。この場合、Intel Core i7 2.93 GHz の PC を使用して、約1hの計算時間を要した。

この方法の特徴の1つは、準最適解に対してのみ膜厚誤差を評価する点である。勿論、評価関数に誤差の影響を取り込んで最適化を図ることも可能である。しかし、誤差の影響の評価は、多数層の膜厚を独立に変化させる手順を要するため、評価関数に組み込んだ場合、反射防止膜の層数の増加と共に、計算コストが急激に増加する。しかも、準最適解では、膜厚の1次の変化に対して  $J_{SC}$  の値が停留しており、膜厚誤差に対する鋭敏性が低いため、誤差の影響の低い解を探すには、準最適解の膜厚に対する影響を評価すれば、実用上十分であると考えられる。

上記の方法(STEP1-6)との比較を行うため、反射防止膜の各層の屈折率と膜厚を、Multistartにより最適化する計算も行った。この計算は、屈折率を基本的に任意に制御できる nanoporous 材料[5]を使用する場合に相当し、設計の自由度が高いため、より高い性能の反射防止膜を設計することができる。

### 2.2 膜厚誤差の影響の評価法

提案した最適化アルゴリズムのSTEP6では、反射防止膜の各層の膜厚が、局所最適解を与える膜厚値か

ら独立に変動した場合の、 $J_{SC}$ の低下量の期待値 $\delta J_{SC}$ を、次式により算出した。

$$\delta J_{SC} = \frac{1}{2^p} \sum_{i=1}^{2^p} [J_{SC}(\mathbf{d}^*) - J_{SC}(\mathbf{d}^* + \Delta \mathbf{d}^i)], \quad (1)$$

ここで、 $\mathbf{d}^*$ は、局所的な最適解を与える反射防止膜の各層の膜厚を並べたベクトルであり、その次元は反射防止膜の全層数 $p$ に一致する。 $\Delta \mathbf{d}^i$ は、各層の膜厚のばらつきの方向と大きさを決定するベクトルであり、本研究を通して、各層毎に独立に、膜厚を $\pm 5 \text{ nm}$ だけ変化させるものとする。例えば、 $p = 2$ の場合には、 $\Delta \mathbf{d}^1 = (5 \text{ nm}, 5 \text{ nm})$ ,  $\Delta \mathbf{d}^2 = (5 \text{ nm}, -5 \text{ nm})$ ,  $\Delta \mathbf{d}^3 = (-5 \text{ nm}, 5 \text{ nm})$ ,  $\Delta \mathbf{d}^4 = (-5 \text{ nm}, -5 \text{ nm})$ のように、 $\Delta \mathbf{d}^i$  ( $i = 1, \dots, 2^2$ )は一辺の長さが $10 \text{ nm}$ の長方形の各頂点座標に対応する。 $J_{SC}(\mathbf{d})$ は、反射防止膜の各層の膜厚を並べた $p$ 次元ベクトル $\mathbf{d}$ に対応した短絡電流の値であり、 $J_{SC}^* \equiv J_{SC}(\mathbf{d}^*)$ がSTEP 4で得られた解に対応する。

$\tilde{J}_{SC} \equiv J_{SC}^* - \delta J_{SC} = \frac{1}{2^p} \sum_{i=1}^{2^p} J_{SC}(\mathbf{d}^* + \Delta \mathbf{d}^i)$ を、膜厚誤差を考慮した場合の短絡電流の評価量として使用する。 $J_{SC}^0$ を反射防止を行わない場合の太陽電池の短絡電流値とする時、膜厚誤差が無い状態での得られた解の発電電流の増加率 $\gamma = (J_{SC}^* / J_{SC}^0 - 1) \times 100 (\%)$ と、膜厚を考慮した場合の発電電流の増加率 $\tilde{\gamma} = (\tilde{J}_{SC} / J_{SC}^0 - 1) \times 100 (\%)$ を、反射防止膜の性能評価に使用した。

### 2.3 光伝搬解析による $J_{SC}$ の算出

$J_{SC}$ を算出するため、特性マトリクス法[3]に基づいた光学解析を行った。本研究で検討した反射防止構造

表 1 設計により得られた反射防止膜の特性

No.	L1	L2	L3	L4	L5	L6	$\gamma / \tilde{\gamma}$
1	MgF <sub>2</sub> (92)	ZnS (6)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (104)	MgF <sub>2</sub> (144)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (135)	MgF <sub>2</sub> (35)	+7.51 / +6.97 %
2	MgF <sub>2</sub> (81)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (120)	—	MgF <sub>2</sub> (144)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (135)	MgF <sub>2</sub> (35)	+7.39 / +7.17 %
3	MgF <sub>2</sub> (93)	ZnS (7)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (101)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (195)	ZnS (104)	MgF <sub>2</sub> (31)	+7.26 / +6.59 %
4	MgF <sub>2</sub> (75)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (112)	MgF <sub>2</sub> (172)	MgF <sub>2</sub> (162)	ZnS (106)	MgF <sub>2</sub> (33)	+7.18 / +6.60 %
—	n=1.25 (82)	n=1.05 (12)	—	n=1.08(214)	n=2.19 (118)	n=1.05 (30)	+10.28% / +9.43%

No.  $i$  ( $i=1-4$ )の解は、設計により得られた $i$ 番目に $J_{SC}$ の大きい解を、最下段の解は屈折率の最適化により得られた解を示す。No. 1-No. 4の各行には、各層(L1-L6)で使用する材料及び膜厚(カッコ内)を、最下段には、各層の屈折率の値と膜厚(カッコ内)を示す。L3の“—”の記載は、最適計算の結果膜厚が0となった場合(つまり、5層で十分である場合)を示す。短絡電流の増加率は、左側の数が膜厚誤差の無い場合( $\gamma$ )、右側の数が膜厚誤差を考慮した場合( $\tilde{\gamma}$ )に相当する。

付の有機太陽電池は、2つの多層薄膜構造のアセンブリー(stack)[11]が、stackより非常に厚いガラス基板を挟む構造を持つ(図1右)。そこで、過去の太陽電池の解析計算[10, 11]と同様に、各stackの内部ではcoherentな電磁界の加算が行われるのに対し、基板内部ではcoherenceが失われてirradianceの加算が行われるものと仮定して計算を行った。光学計算の概要を以下にまとめる。

特性マトリクス法では、隣接する層間のinterfaceでの、電界と磁界の境界条件を満足するように、Maxwell方程式の平面波解を重ね合わせた解が代数演算により得られる。この方法では、各stackの反射率 $R$ と透過率 $T$ は、

$$R = \left( \frac{\eta_i B - C}{\eta_i B + C} \right) \left( \frac{\eta_i B - C}{\eta_i B + C} \right)^*, \quad (2)$$

$$T = \frac{\text{Re}(\eta_e)}{\text{Re}(\eta_i)} \left( \frac{2\eta_i}{\eta_i B + C} \right) \left( \frac{2\eta_i}{\eta_i B + C} \right)^*, \quad (3)$$

として与えられる。但し、 $\eta_i$ と $\eta_e$ はそれぞれ、stackに入射する側及びstackから出力する側の媒質のoptical admittanceを表す。 $B, C$ は、layer  $r$ の特性マトリクスを $M_r$ とする時、

$$\begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = M_1 M_2 \cdots M_q \begin{bmatrix} 1 \\ \eta_e \end{bmatrix}, \quad (4)$$

$$M_r = \begin{bmatrix} \cos \delta_r & (i \sin \delta_r) / \eta_r \\ i \eta_r \sin \delta_r & \cos \delta_r \end{bmatrix}, \quad (5)$$

として求められる。ここで、 $\delta_r$ は第 $r$ 層の上下端における光の位相差、 $\eta_r$ は第 $r$ 層の材料のoptical admittanceである[3]。

2つの stack がそれぞれ単独で存在する場合の反射率、透過率を求めた後、発電層(第  $r_p$  層とする)における光吸収率を、

$$A_{r_p} = I_s(\psi_{r_p-1} - \psi_{r_p}), \quad (6)$$

$$\psi_r = \frac{\text{Re}(B_r C_r^*)}{\text{Re}(B C^*)}, \quad (7)$$

$$\begin{bmatrix} B_r \\ C_r \end{bmatrix} = M_{r+1} M_{r+2} \cdots M_q \begin{bmatrix} 1 \\ \eta_e \end{bmatrix}, \quad (8)$$

として算出する。但し、 $\psi_r$  は入射面から第  $r$  層までの subassembly に関する potential transmittance [3, 12] である。  $I_s$  は、全入射光の中で、発電層を含む stack に実際に入射する irradiance の割合であり、基板の両面での繰り返し反射を考慮して、

$$I_s = \frac{T_a T_c}{\psi(1 - R_b R_c)}, \quad (9)$$

として求められる。但し、 $R_b, R_c, T_a, T_c$  は図 1 右に図解する各部の反射率、透過率であり、 $\psi$  は発電層を含む stack 全体の potential transmittance である。

波長  $\lambda$  の光の発電層による吸収率を  $A_{r_p}(\lambda)$  とする時、発電層が吸収する波長  $\lambda$  の光子数は、

$$N_p(\lambda) = A_{r_p}(\lambda) F(\lambda) \frac{\lambda}{hc}, \quad (10)$$

と記述できる。但し、 $F(\lambda)$  は、波長  $\lambda$  の太陽光の irradiance であり、AM1.5 の太陽光スペクトルデータを用いた。 $h$  はプランク定数、 $c$  は真空中の光速である。素電荷  $q_e$  を用いて、光子数を電流に変換して、

$$J_{sc} = \int_{\lambda_{\min}}^{\lambda_g} q_e N_p(\lambda) F_{NR}(\lambda) d\lambda, \quad (11)$$

として、最終的に  $J_{sc}$  が得られる[9]。但し、 $\lambda_g$  は P3HT のバンドギャップに相当する光波長(653 nm)、 $F_{NR}$  は non-recombination factor であり  $F_{NR}=1$  を仮定した[12]。

## 2.4 FDTD 法

2.3 節の光学計算の妥当性を検証するため、FDTD 法 [13]により、各層の光吸収率を算出し、特性マトリクス法による結果と比較した。強い吸収性材料において電磁界が発散するのを防ぐため、Lorentz model [16]により誘電率を記述した。

FDTD 計算では、分厚いガラス基板の存在が、計算時間を大幅に増加させることが知られている[17]。こ

の問題を改善するため、我々は、第  $r$  層の波長  $\lambda$  における吸収率  $A_r(\lambda)$  を、次の関係を利用して算出することを提案する。

$$\begin{aligned} A_r(\lambda) &= E_{d_0}[\hat{A}_r(\lambda; d_0)] \\ &= \frac{1}{D} \int_{d_{0,\min}}^{d_{0,\min}+D} \hat{A}_r(\lambda; d_0) dd_0 \approx \frac{n_0}{\lambda} \int_{d_{0,\min}}^{d_{0,\min}+\lambda/n_0} \hat{A}_r(\lambda; d_0) dd_0 \end{aligned} \quad (12)$$

ここで、 $D$  は十分大きな正数、 $n_0$  は、ガラス基板の屈折率である。 $\hat{A}_r(\lambda; d_0)$  は、基板の厚さを  $d_0$  とした時の (FDTD によって求められる) 第  $r$  層の吸収率であり、 $E_{d_0}[x]$  は  $d_0$  がランダムに変化する際の確率変数  $x$  の平均値を表す。(12)式の最初の等式は、 $d_0$  が完全にランダムに変動する時、ガラス基板は光の位相情報を伝えることができないため、 $E_{d_0}[A_r(\lambda; d_0)]$  の値が、基板が coherence を失った場合の吸収率に一致することを意味している。(12)式の最右辺に示す、異なる  $d_0$  に対する FDTD 計算の結果を平均化する計算法により、小さいレンジの  $d_0$  を用いて FDTD 計算を行うことができるため、計算時間を著しく低く抑えることができる。最終的に、FDTD 計算により得られた各層の吸収率が、マトリクス法により得られた結果と非常によく一致することを確認した。

## 3. シミュレーション結果

提案する手法の有効性を検討するため、図 1 左に示す P3HT/PCBM 型有機太陽電池に対し、典型的な反射防止膜用材料である  $\text{MgF}_2$ ,  $\text{ZnS}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の 3 種類[18]を使用した、6 層 (基板の両面に 3 層ずつ) の反射防止膜の設計を行った。設計により得られた最適な反射防止膜の構成を表 1(No.1)に、この最適解における波長毎の吸収特性を図 2, 3 に示す。図 2 には、比較のために、反射防止無しの場合と、屈折率を直接最適化した場合 (表 1 最下段) も示している。図 2, 3 から、太陽光の irradiance が弱い低波長域(300 ~ 450 nm)では、反射防止の有無に関わらず P3HT/PCBM によって光がよく吸収できるのに対し、太陽光の irradiance が相対的に強い高波長域(>450nm)では、波長と共に P3HT/PCBM による光吸収が徐々に低下する傾向にあり、特に P3HT の band gap に近い 650 nm 付近の領域では、Al による強い吸収が起きて、太陽電池裏側での光反射を妨げていることが分かる。

表 2 から容易に分かるように、高波長域での P3HT/PCBM の屈折率の増加と消衰係数の減少が、この材料の入射側での反射を増加させると共に、内部での吸収を抑制するため、高波長域での吸収量の低下(図 2)の要因となっていると考えられる。さらに、図 3 のように、高波長域で Al による光吸収が起きる理由を検討するため、P3HT/PCBM と Al 間の interface における

光透過を考える．一般に，屈折率  $n_0$ ，消衰係数  $k_0$  の媒質から屈折率  $n_1$ ，消衰係数  $k_1$  の媒質へ光が伝搬する際の透過率  $T$  は，

$$T = \frac{4(n_1/n_0)(n_0^2 + k_0^2)}{(n_0 + n_1)^2 + (k_0 + k_1)^2} \quad (13)$$

で表される．  $n_1$  と  $k_1$  の値として，波長  $\lambda = 400, 500, 600$ ，又は  $700 \text{ nm}$  における Al のデータ(表 2)を用いて， $T$  の値を屈折率  $n_0$  の関数としてプロットした結果を，図 4 に示す．但し図中， $k_0$  の値として，各波長での P3HT/PCBM の値を用いた場合(図 4 実線)と  $k_0 = 0$  (図 4 点線)とした場合の 2 ケースをプロットした．

図 4 の結果は，高波長域での Al の特性 (高い  $n_1/k_1$  比) と P3HT/PCBM の高い屈折率 (大きな  $n_0$ ) の相乗効果により，P3HT/PCBM から Al への光の透過率が大幅に増加することを示している．なお，高波長では，P3HT/PCBM の消衰係数は十分小さく，透過率にはほとんど影響しない(図 4 緑線)．Al の強い吸収により，P3HT/PCBM から Al に侵入した光は，全て Al 内部で吸収されるため，図 4 の透過率の変化が，Al での高波長域での光吸収(図 3)を誘発していると理解できる．

表 1 には，最適解(表 1 No.1)に加えて，本設計法により，最適解と同時に得られる準最適解(表 1 No.2-No.4)を示している．さらに，表には，これらの解に対応した，膜厚誤差が無い場合とある場合の，反射防止による短絡電流の増加率(それぞれ  $\gamma$  と  $\tilde{\gamma}$ )を併記している．表から分かるように，No.2 の解の  $J_{SC}$  の値は，最適値より約 0.1% だけ小さい( $\gamma = +7.51 \%$  (No.1),  $+7.39 \%$  (No.2))のに対し，No.2 の解の  $\tilde{J}_{SC}$  の値は，最適解より約 0.2% 大きい ( $\tilde{\gamma} = +6.97 \%$  (No.1),  $+7.17 \%$  (No.2))．この結果は，最適解の代わりに準最適解を利用した場合，誤差が無い場合の性能は僅かに低下するが，製造時の膜厚誤差に対して，一定程度ロバストになることを意味しており，実用的な反射防止構造の設計を行う上で重要である．

さらに，表 1 の No.2 の解は， $\text{MgF}_2$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の 2 種類の材料のみを使用し，5 層で構成されているのに対し，No.1 の解は 3 種類の材料を全て使用して 6 層で構成されており，No.2 の準最適解は，最適解に比較して製造が容易である．このように，提案する方法では，多くの準最適解を最適解と同時に得て，それらを比較検討することで，膜厚誤差に対するロバスト性や，製造プロセスにおける単純性を考慮した実用的な設計を行うことが可能である．

さらに，太陽電池内部における反射防止層の位置の影響を検討ため，材料の組み合わせ最適化と，屈折率最適化のどちらかの手法を用いて，基板より入力側(図 1 左の L1-L3)に 3 層反射防止膜を導入した場合と，基板より出力側(図 1 左の L4-L6)に 3 層反射防止膜を導

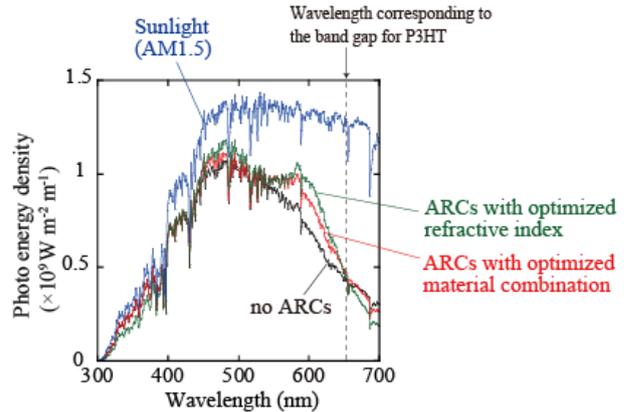


図 2 反射防止膜の導入による P3HT/PCBM の吸収エネルギーの変化．赤：材料の組合せ最適化により得られた反射防止膜を使用した場合．緑：屈折率最適化により得られた反射防止膜を使用した場合．黒：反射防止無しの場合．

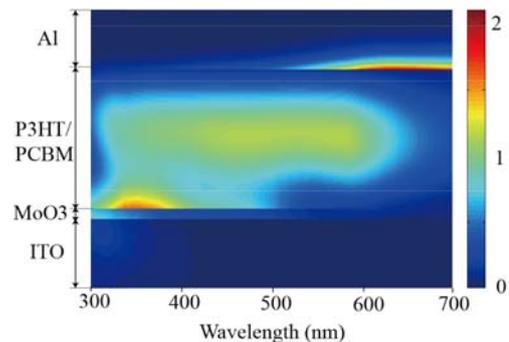


図 3 材料の組合せを最適化した反射防止膜を導入した場合の太陽電池内部の吸収率の分布

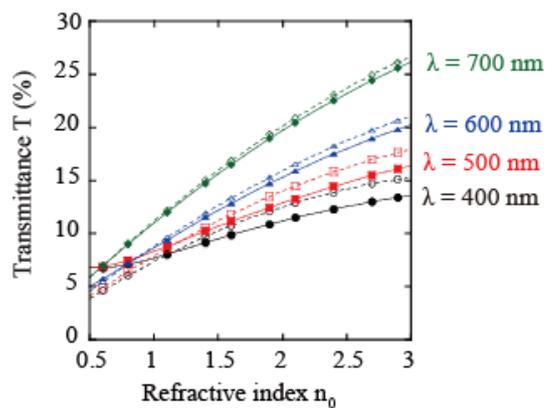


図 4 光が Al に侵入する場合の入射媒質の屈折率  $n_0$  に対する透過率の変化．消衰係数  $k_0$  の値は，P3HT/PCBM の値(実線)又は 0 (点線)を使用．

表 2 P3HT/PCBM と Al の光学パラメータ [14, 15]

波長	P3HT/PCBM		Al	
	n	k	n	k
400 nm	1.90	0.54	0.40	4.45
700 nm	2.72	0.11	1.55	7.00

入した場合の比較を行った(図5)。図より、どちらの最適化法でも、基板より入力側に反射防止を行った場合より、出力側に反射防止を行う方が、発電電流を向上させる効果が高いこと、この性能向上効果の差は、屈折率最適化を行った場合に顕著であることが分かる。図5の結果は、nanoporous材料のような屈折率を自由に制御できる材料は、ガラス基板とITO間の間の屈折率のずれに伴う反射を抑えるのに、特に有効であることを示している。また、図5に示すように、基板の前後の3層の反射防止膜の効果を単純に加えた場合(材料組合せ最適化で7.4%、屈折率最適化で10.3%)に比べて、6層の反射防止膜を使用した場合(材料組合せ最適化で7.5%、屈折率最適化で10.5%)は、0.1~0.2%程度高い性能が得られており、2箇所の反射防止膜の特性を適合させることが重要であることが分かる。

#### 4. 結論

本研究では、使用する材料をあらかじめ指定した場合に、有機太陽電池の反射防止膜を決定するための、実用的な設計手法を提案した。本手法により、基板の前後に3層ずつ(計6層)の反射防止膜を設計した結果、MgF<sub>2</sub>、ZnS、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の組合せで7.51%の発電電流増加が見込めることを示した。また、本設計法では、最適解のみならず、準最適解も検討の対象とすることで、膜厚誤差に対してロバストな性能を有する解が得られることも示した。さらに、反射防止層の基板に対する相対位置に依存した発電電流の増加効果を明らかにした。

#### 文 献

[1] E. Bundgaard, F. C. Krebs, "Low band gap polymers for organic photovoltaics," *Solar Energy Materials & Solar Cells*, 91, 954-985, 2007.

[2] W. C. Luk, K. M. Yeung, K. C. Tam, K. L. Ng, K. C. Kwok, C. Y. Kwong, A. M. c. Ng, "Enhanced conversion efficiency of polymeric photovoltaic cell by nanostructured antireflection coating," *Organic Electronics*, 12: 557-561, 2011.

[3] H. A. Macleod, "Thin-film optical filters," (fourth edition), CRC Press, New York, 2010.

[4] E. Osorio, R. Urteaga, L. N. Acquaroli, G. Garcia-Salgado, H. Juarez, R. R. Koropecski, "Optimization of porous silicon multilayer as antireflection coatings for solar cells," *Solar Energy Materials & Solar Cells*, 95:3069-3073, 2011.

[5] D. J. Poxson, M. F. Schubert, F. W. Mont, E. F. Schubert, and J. K. Kim, "Broadband omnidirectional antireflection coatings optimized by genetic algorithm," *Optics Letters*, 34: 728-730, 2009.

[6] W. Zhou, M. Tao, L. Chen, H. Yang, "Microstructured surface design for omnidirectional antireflection coatings," *Journal of Applied Physics* 102: 103105, 2007.

[7] J. Zhu, Z. Yu, S. Fan, Y. Cui, "Nanostructured photon management for high performance solar cells," *Materials Science and Engineering*, R 70: 330-340, 2010.

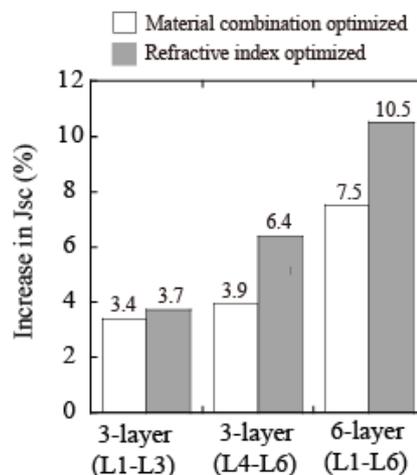


図5 3層ARC(L1-L3又はL4-L6)と6層ARCによるJscの増加率の比較

[8] A. H. G. R. Kan and G. T. Timmer, "Stochastic global optimization methods. Part I: Clustering methods," *Mathematical Programming* 39:27-56, 1987.

[9] M. Ghebrebrhan, P. Bermel, Y. Avniel, J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, "Global optimization of silicon photovoltaic cell front coatings," *Optics Express*, 17: 7505-7518, 2009.

[10] N-K. Persson and O. Inganas, "Simulations of optical processes in organic photovoltaic devices," In: S. S. Sun and N. S. Sariciftci, *Organic Photovoltaics: Mechanisms, Materials, and Devices*, CRC Press, Boca Raton, Florida, 2005.

[11] N-K. Persson and O. Inganas, "Organic tandem solar cells-modeling and predictions," *Solar Energy Materials & Solar Cells*, 90: 3491-3507, 2006.

[12] A. Y. Darkwi, W. K. Lote, and K. Ibrahim, "Computer simulation of collection efficacy of a-Si : H tandem solar cells interconnected by transparent conductive oxide," *Solar Energy Materials & Solar Cells* 60, 1-9, 2000.

[13] A. Taflove, S. C. Hagness, "Computational Electrodynamics: The finite-difference time-domain method," (third edition) Artech house, inc. Norwood, 2005.

[14] E. Lioudakis, A. Othonos, I. Alexandrou, Y. Hayashi, "Optical properties of conjugated poly(3-hexylthiophene)/[6,6]-phenylC<sub>61</sub>-butyric acid methyl ester composites," *Journal of Applied Physics*, 102: 083104, 2007.

[15] D. E. Gray, *American Institute of Physics Handbook* (third edition), American Institute of Physics, McGraw-Hill Book Company, 1972.

[16] J. B. Judkins and R. W. Ziolkowski, "Finite-difference time-domain modeling of nonperfectly conducting metallic thin-film gratings," *Journal of the Optical Society of America*, 12: 1974-1983, 1995.

[17] J. Wang, C-W. Want, Y. Li, F. Zhou, W-M. Liu, "The structure optimization design of the organic solar cells using the FDTD method," *Physica B*, 405: 2061-2064, 2010.

[18] D. Bouhafs, A. Moussi, A. Chikouche, J. M. Ruiz, "Design and simulation of antireflection coating systems for optoelectronic devices: Application to silicon solar cells," *Solar Energy Materials and Solar Cells* 52, 79093, 1998.