

THE IEICE TRANSACTIONS ON ELECTRONICS (JAPANESE EDITION)

**IEICE** 電子情報通信学会  
**論文誌** エレクトロニクス

VOL. J106-C NO. 7

JULY 2023

本PDFの扱いは、電子情報通信学会著作権規定に従うこと。  
なお、本PDFは研究教育目的（非営利）に限り、著者が第三者に直接配布することができる。著者以外からの配布は禁じられている。

**エレクトロニクスソサイエティ**

一般社団法人 **電子情報通信学会**

THE ELECTRONICS SOCIETY

THE INSTITUTE OF ELECTRONICS, INFORMATION AND COMMUNICATION ENGINEERS

## 表面ナノ構造を用いた有機薄膜太陽電池の光閉じ込め技術

久保田 繁<sup>†a)</sup> 有馬ボシールアハンマド<sup>†</sup> 廣瀬 文彦<sup>†</sup>

Light Trapping with Surface Nanostructure for Organic Photovoltaics

Shigeru KUBOTA<sup>†a)</sup>, Bashir Ahmmad ARIMA<sup>†</sup>, and Fumihiko HIROSE<sup>†</sup>

あらまし 有機薄膜太陽電池は低コスト、高デザイン性、軽量、フレキシブル、無毒性といった優れた特徴を併せもつ次世代の太陽電池であるが、薄い（～100 nm）発電層に光を十分に吸収するのが困難であるという技術的な課題が存在する。このため、波長と同程度の空間スケールを有するナノ構造を用いて光の流れを制御することで、発電層内の電界を局所的に強化することにより光吸収を促進する光閉じ込め技術の開発が、今後特に重要になると考えられる。本論文では、筆者等がこれまで行ってきた、表面ナノ構造による有機薄膜太陽電池の光閉じ込めに関する研究について、薄膜太陽電池特有の光制御技術に関する知見と合わせて紹介する。

キーワード 有機太陽電池、光制御技術、周期ナノ構造、光学解析、最適化

## 1. ま え が き

脱炭素社会の実現に必要な様々なエネルギー関連技術の開発が、各国で活発に行われている [1], [2]. その中でも太陽電池の低コスト化は、再生可能エネルギー比率の向上に関する短中期的な目標を達成するためにも、エネルギーミックスの長期的な最適化を実現する上でも重要な技術課題である。

有機半導体を発電層に使用した有機薄膜太陽電池は、近い将来の低コスト太陽電池の主要な候補として注目されている [3], [4]. 有機半導体材料は化学合成により安価に製造できる上に、有機溶媒に溶かして液体化することが可能である。このため、ロールツーロールの印刷技術により大面積デバイスを大量生産することで、有機薄膜太陽電池の量産コストを既存のデバイスに比べて大幅に低減できると期待されている [3]. しかもコスト面に加えて、高デザイン性（着色・半透明化が可能）、軽量化・フレキシブル化が可能なこと、材料が無毒であること（安全性が高く廃棄も容易）といった多くの優れた特徴を併せもっている [3], [5], [6].

10 年程度以内の近い将来に有機薄膜太陽電池の適

用が拡大する分野として特に有望視されるのは、筆者の見解では、家屋やビルの壁面に使用する建材一体型太陽電池（BIPV）としての利用と IoT（Internet of Things）デバイスの電源としての応用である。日本や欧州では、建物のエネルギー収支をゼロにすることを目指す環境規制の取り組み（ZEB）が進められており、発電量を更に増やすために、建物の壁面等を利用した太陽光発電が増加すると予想される [2]. このため色を付けて建物の景観に配慮できるとともに、軽量で垂直な壁にも容易に貼り付けられる有機薄膜太陽電池の需要が高まると考えられる [7], [8]. 実際、ZEB 規制が進む欧州では、有機薄膜太陽電池の主な市場として BIPV への展開が進められている [7].

また、有機薄膜太陽電池は屋内環境の弱い光に対しても比較的高い効率を維持できること、有機半導体の吸収波長域が屋内光源（LED、蛍光灯）の照射スペクトルと一致することから、屋内用の太陽電池としても期待されている [9], [10]. 実際、屋内環境の試験により商業用の単結晶シリコン太陽電池に比べて大幅に高い発電効率を示すことが報告されている [11]. しかも屋内では、紫外線や温度変化による性能劣化の程度が少なく、有機太陽電池の開発における課題である耐久性に対する要求があまり高くないため、実用化に向けた技術的な障壁も低い。このため屋内用デバイス、特に今日急速に開発が進められている IoT デバイス（各種センサー、アクティブ RFID タグ等）の電源として、

<sup>†</sup> 山形大学大学院理工学研究科, 米沢市

Graduate School of Science and Engineering, Yamagata University, 4-3-16 Jonan, Yonezawa-shi, 992-8510 Japan

a) E-mail: kubota@yz.yamagata-u.ac.jp

DOI: 10.14923/transleij.2022JCI0032

有機太陽電池の普及が進む可能性が高い [12], [13]. しかも有機太陽電池の材料に毒性がない点も, 生活に密着した家庭環境で広く利用する際の長所である.

このように, 有機薄膜太陽電池は実用面で様々な優れた特徴を有しているが, 今後, 発電性能を更に改良していく上での主な制約の一つは, 有機半導体の電荷移動度が低い, つまり材料の電気抵抗が高いことである [14]~[16]. このため, 電荷の取り出しを促進するため, 発電層の厚さを非常に薄く (~100 nm) せざるを得ず, 発電電流量に直結する発電層での光吸収を十分に行うことが困難である. このため, 今後の開発においてますます重要になると考えられるのが, このような極めて薄い発電層に光を閉じ込めることを可能にする光制御技術である. しかも, 各種の太陽電池の中で最も発電層が薄い有機薄膜太陽電池のための高度な光閉じ込め技術が確立できれば, シリコン薄膜太陽電池やペロブスカイト太陽電池といった, その他の薄膜太陽電池にも広く展開することが可能であろう.

筆者のグループでは, このような観点から有機薄膜太陽電池の光制御に関する研究を, 理論と実験の双方から展開してきた. 本総説では, これまでの研究で得られた薄膜太陽電池特有の光制御技術に関する知見とともに, 表面ナノ構造を利用した光制御構造に関する筆者等の研究 [17]~[20] について紹介する.

## 2. 薄膜太陽電池の光制御技術の基礎

### 2.1 光制御におけるナノ構造の機能的役割

太陽電池の光制御を理解する上で必要となる, 光と物質 (特に誘電体) の相互作用を大きく分類すると, a) 散乱 (scattering), b) 反射 (reflection), c) 屈折 (refraction), d) 回折 (diffraction) の四つの現象が挙げられる [21], [22]. これらの現象は, 屈折率の空間的变化に伴って入射光の光路が変化する現象であると総じて述べることができるが, 屈折率変化が起きる空間スケールによって特徴づけられる.

散乱は主に, 波長と同程度かそれ以下のマイクロな物質により, 光路が分散して曲げられる現象であるのに対し, 反射と屈折は, 波長と同程度かそれ以上のマクロな物質に入射する際に, 光の流れが分岐する現象である. 一方, 回折は波長と同程度のスケールで屈折率が周期的に変化する場合に, 光路が特定の方向に曲げられる現象である. ここで重要な点は, これらの現象が起きる屈折率変化の空間スケールは波長に対する相対サイズによって規定されており, 波長付近では全て

の現象が同時に出現することである.

太陽光や屋内光源に含まれる光の波長と同等レベルの数 100 nm の空間スケールを有する周期ナノ構造 (図 1 (a)) を使用することの光学的な意義は, 端的に言えば, a)~d) の現象全てを同時かつ空間的に混合した形で誘起して利用できることにある. こうすることで光の流れを非常に高い自由度で制御することが可能となり, 入射光が局所的に分岐したり曲げられたりすることで生じる多数の光波の重ね合わせを通じて, コヒーレンス (周波数の揺らぎがない状態) が保たれた空間内で光波間の強い干渉を引き起こすことができる [22]. この方法で, 発電層内の電界強度を局所的に増強する光閉じ込め効果を通じて, 発電に寄与する光吸収を促進すると同時に, 表面反射や発電層以外での吸収によるエネルギー損失を抑えることが, ナノ構造による光制御の役割である.

### 2.2 ナノ構造と多層干渉膜の光学特性の比較

従来より, デバイス表面の反射防止として多層 (単層) 干渉膜 (図 1 (b)) を用いた手法が一般的に利用されており, 現在でも産業的には最も広く使用されている [23]. 多層干渉膜は, 屈折率の異なる透明な薄膜の界面で起きる反射により, 入射光を複数の光波に分離

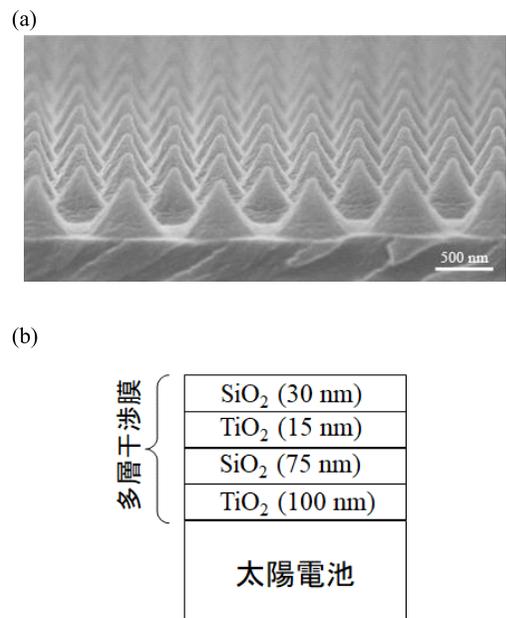


図 1 (a) 周期ナノ構造 (モスアイ構造, 久保田研究室にて作成) の電子顕微鏡写真, (b) 多層干渉膜の例

Fig. 1 Examples of (a) periodic nanostructure (moth eye structure) and (b) multilayer interference film.

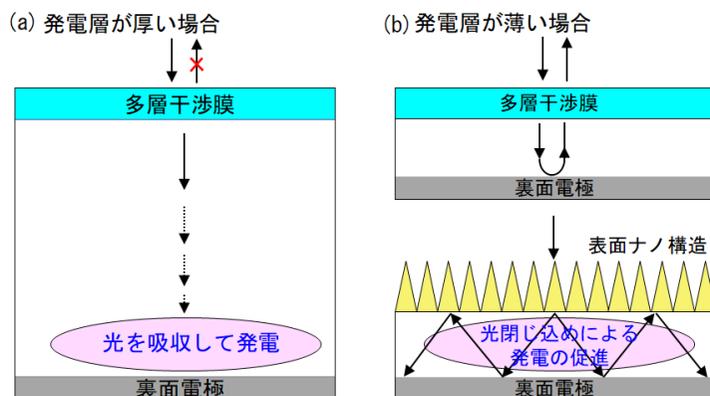


図2 (a) 発電層が厚い場合、(b) 発電層が薄い場合の多層干渉膜及び表面ナノ構造の光学的機能の比較

Fig. 2 Optical function of interference multilayer and nanostructure for (a) thick and (b) thin-film photovoltaics.

することで、光波間の干渉を通じて表面反射を抑える働きをもつ。多層薄膜の光学応答は、特性マトリクス法（または伝達マトリクス法）[23], [24] により数値積分を経ずに高速に算出できるため、多層干渉膜の膜厚等の構成は比較的容易に設計可能である。

しかし、多層干渉膜による反射防止効果は、発電層の厚さに大きく依存する。図2(a)に模式的に示すように、太陽電池の発電層が十分に厚い場合には、多層干渉膜によって表面反射を抑制しさえすれば、厚い発電層の内部で光を十分に吸収することが可能である。しかし、図2(b)(上)のように発電層の厚さが非常に薄い場合には、多層干渉膜により表面反射を抑制したとしても、光は吸収されずに裏面電極に当たって跳ね返り、電池表面から再び外部に飛び出してしまう。このように、光の吸収に必要な長さに比べて発電層が薄い薄膜太陽電池の場合には、多層干渉膜は反射を抑制する効果を十分に発揮することが困難である。

このため、有機薄膜太陽電池を含む薄膜太陽電池では、図2(b)(下)のように周期ナノ構造を用いて回折を起こして光を曲げることが、光吸収を促進する上で大変重要となる[25]。回折により光路を曲げることで、以下に示す三つの効果を期待できる。まず第一に、光が発電層を斜めに横切ることにより、発電層内を通過する際の光路長を伸ばして吸収を増やす効果がある。第二に、図2(b)(下)に示すように発電層の両端で繰り返し反射を発生しやすくすることで、発電層に閉じ込められるエネルギーの割合を増加させる効果が期待できる。更に第三の（最も重要な）効果として、周期ナノ

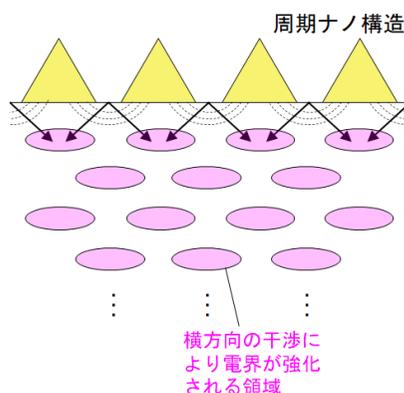


図3 周期ナノ構造による横方向の干渉の模式図

Fig. 3 Illustration for the lateral interference caused by periodic nanostructure.

構造により回折波を周期的に発生させることは、図3に模式的に示すように複数の光波の横方向も含めた干渉を利用できることを意味する。横方向の干渉の効果は、ナノ構造から離れたデバイスの奥深くまで到達して発電層の電界強度を局所的に制御することが可能である（後述）。

太陽光のコヒーレンスの特性を調査した研究によれば、光の進行方向（縦方向）におけるコヒーレンス長は  $1\ \mu\text{m}$  以下であるのに対し、それと垂直な横方向のコヒーレンス長は数  $10\ \mu\text{m}$  の長さを有することが報告されている[26]~[28]。この長さは光制御で使用されるナノ構造の周期（数  $100\ \text{nm}$ ）より十分に大きく、 $10\ \mu\text{m}$  オーダーの直径をもつ広い断面積の円を通過す

る多くの光波間の干渉を利用して、光閉じ込めが起きる領域やその強度を緻密に制御することが原理的に可能である。したがって、今後の技術的發展により、例えば様々な周期の成分を同時に含むような複雑な形状をもつ表面ナノ構造を実現することで、従来より大幅に高い自由度で光の干渉を制御して、光閉じ込め効果を更に強化できる可能性がある。

このように、周期ナノ構造と多層干渉膜による光制御の最も本質的な違いは、横方向のコヒーレンスを利用して干渉を制御できるかどうかにあると筆者は考えている。従来は、多層干渉膜により縦方向のコヒーレンスを利用して干渉の制御を行うことが主流であったが、今後の研究ではナノ構造により、縦方向と横方向のコヒーレンスを合わせた概念であるコヒーレンス体積（可干渉な光波に相当する空間の体積）[29]に含まれる光波の3次元的な干渉を利用することが重要になると考えられる。この分野のこれまでの研究で解析の対象となったナノ構造は、比較的単純な形状に限定されており、今後、より複雑で多様な形状のナノ構造を用いてコヒーレンス体積内に含まれる光波を効果的に制御するための解析法及びナノ加工技術を開発することが、この分野における一つの重要な方向性であろう。

### 3. 表面ナノ構造の形状最適化による高効率光閉じ込めの実現

各種の表面ナノ構造の中でも、数 100 nm の高さの円錐を周期的に配置したモスアイ構造（図 1 (a)）は、太陽電池の光制御の研究で頻繁に使用される [30]~[33]。モスアイは、蛾の眼の角膜表面で観察されるナノ構造を模した生体模倣構造の一種であり、優れた反射防止性能を示すことが知られている。夜間に飛行する蛾は、暗い中で視界を確保するために眼の表面反射を抑える必要があるため、このような特殊な構造を自然選択によって獲得したと考えられている。

モスアイ構造の光学特性を調べた数値計算 [32], [33] により、モスアイの反射防止性能は円錐の高さや周期といった幾何形状に大きく依存することが報告されている。そこで、筆者等の研究 [17] では、モスアイ表面を有機薄膜太陽電池に導入したデバイス（図 4 (a)）において、モスアイの幾何形状を最適化することで発電性能の改善を図った。

有機薄膜太陽電池の発電電流を算出するために、電磁界解析のための代表的な数値積分法である有限差分時間領域法（FDTD 法）を使用した。しかし、有機薄

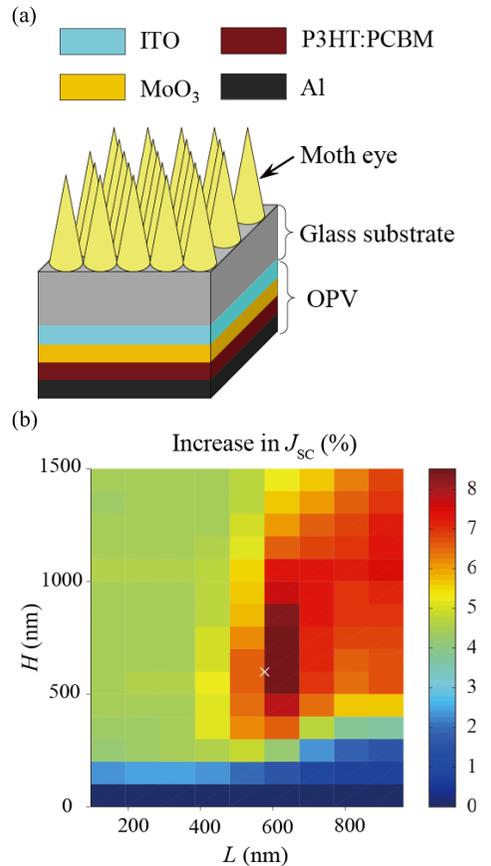


図 4 (a) モスアイ構造を導入した有機薄膜太陽電池の光学モデル。 (b) モスアイの周期  $L$ 、高さ  $H$  に対する有機薄膜太陽電池の短絡電流密度 ( $J_{sc}$ ) の増加率 (%) の変化。白い×印が最適解を表す（文献 [17] より許可を得て引用）

Fig. 4 (a) Optical model of organic photovoltaics (OPVs) with moth eye surface. (b) The change in  $J_{sc}$  as function of the period  $L$  and height  $H$  of moth eye.

膜太陽電池のように光がガラス基板を通過するデバイスの FDTD 解析では、波長に依存した特殊な振動応答（図 5 の黒い実線）が生じることが知られている [34]。この振動応答は、ガラス両端での繰り返し反射に伴う干渉の効果に起因するものであり、実際のデバイスでは発生しないという意味で“人工的”な現象である。実際には、mm オーダーの厚いガラス基板の内部では光のコヒーレンスが失われるため、このような干渉の効果は生じないのである。そこで、この研究では包絡線法と名づけた独自のアルゴリズムを用いて、FDTD 法で得られた応答から人工的な振動成分を取り除いた（図 5） [17], [18]。包絡線法は、一種の平均化により余

計な振動成分を除去するアルゴリズムであるが、単純平均や低周波フィルタといった一般的な平均化アルゴリズムと比較して正確に光学応答を予測でき、なおかつ主要なパラメータの変化に対してロバストに結果が得られることが示されている [18].

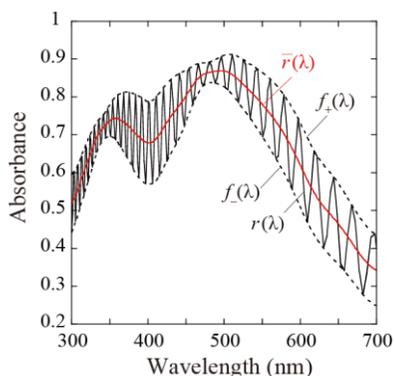


図5 包絡線法を適用して発電層の吸収率スペクトルを算出した例。実線（黒）：FDTD法により得られた振動応答。実線（赤）：包絡線法により人工的な振動を除去して得られた応答。点線：FDTD 応答の包絡線（文献 [17] より許可を得て引用）

Fig. 5 An example for obtaining the spectrum of absorbance in the active layer using the envelope method.

この研究では、FDTD法で得られた光学応答に包絡線法を適用することで、モスアイの周期  $L$  と高さ  $H$  に対する短絡電流密度  $J_{sc}$  の変化を解析した（図 4 (b)）。また、グリッド探索とパターン探索から構成される 2 段階の最適化アルゴリズムを考案してモスアイ形状の最適設計を行った。その結果、周期  $L = 592 \text{ nm}$ 、高さ  $H = 601 \text{ nm}$  のときに  $J_{sc}$  が最大となり、このときにモスアイ無しの場合と比較して 9.05%（相対値）の発電電流の向上が得られることが判明した。ここで得られた最適な周期（592 nm）は、反射防止のために使用される一般的なモスアイの周期（300 nm 以下）に比べてかなり大きい。このような長周期のモスアイが性能向上に資する理由を調べるため、有機太陽電池デバイス内部の光伝搬を解析した（図 6）。この解析では、(Case 1) 最適形状のモスアイ ( $L = 592 \text{ nm}$ ,  $H = 601 \text{ nm}$ ) (Case 2) Case 1 に比べて周期を短くした一般的な形状のモスアイ ( $L = 240 \text{ nm}$ ,  $H = 601 \text{ nm}$ ) を使用した場合の 2 ケースについて、電界の空間分布を比較した。図 6 は、有機半導体が本来吸収しにくい波長である、バンドギャップ波長（653 nm）に近い 626 nm の波長の光を入射した際の電界の位相（図 6 (a, b)）及び発電層付近の振幅（図 6 (c, d)）を表して

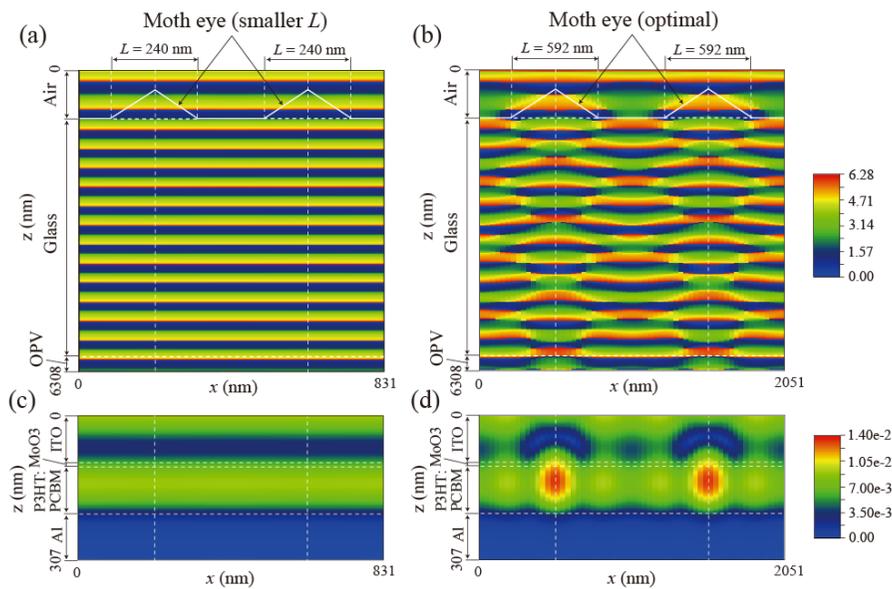


図 6 モスアイ表面を導入した有機太陽電池デバイス内部の電界の空間分布（入射波の波長は 626 nm）。(a, b) は電界の位相、(c, d) は発電層付近の電界の振幅の分布を表す。(a, c) 一般的に使用される短周期のモスアイ (Case 2) を使用した場合。(b, d) 最適形状のモスアイ (Case 1) を使用した場合（文献 [17] より許可を得て引用）

Fig. 6 Spatial distribution of electrical field within an organic photovoltaic device with moth eye surface.

いる。この図から分かるように、Case 2 の短周期のモスアイを使用した場合 (図 6(a, c)) には、太陽電池内部に光が直進するため、電界の水平方向の変化は生じない。一方、Case 1 の最適なモスアイを使用した場合 (図 6(b, d)) には、入射光が回折によって大きく曲げられることで、発電層内の電界強度が局所的に大幅に増加することが分かる。

この結果は、最適化されたモスアイを使用することで、入射光が発電層に局所的に閉じ込められる効果により、電界の増強を通じて光吸収が促進されることを明らかにしている。また、前述のように横方向の干渉の効果 (図 3) が、モスアイ表面からガラス基板を隔てて (波長のオーダーに比べて) 遠く離れた位置にある有機太陽電池の発電層まで到達し、電界強度を局所的に制御可能であることを示唆している。

実験的な検証を行うため、シミュレーションで得ら

れた最適形状と近い準最適なモスアイ構造 (図 7(a)) を有機薄膜太陽電池の表面に実際に導入して、発電性能を調べた [20]。モスアイの作成には、ナノオーダーの凸凹を有する型を樹脂薄膜に押し当てた状態で樹脂を固める手法であるナノインプリントを使用した (樹脂の屈折率は 1.53 (波長 500 nm) である)。モスアイを導入した場合の有機太陽電池の電流-電圧特性 (J-V 特性) を計測した結果、モスアイ無しの場合に比べて 8.29% (相対値) の大幅な発電効率の増加が得られることが明らかとなった (図 7(b))。この値は、比較的短い周期のモスアイを使用した過去の同様の実験 [31] による効率変化 (2.5~3%) に比べてもかなり大きな値であり、モスアイ形状の最適化による効果を明らかに示している。実験に用いたナノインプリントは、大面積ナノ構造を安価に積層することが可能な産業応用性の高い技術であり、本研究の成果は、薄膜太陽電池のための低コストで実用的な光閉じ込めの手法を提示している。

#### 4. 表面ナノ構造と高屈折率ガラスの統合によるデバイスの屈折率分布の制御

光の波長より短い周期をもつサブ波長のモスアイ構造は、等価屈折率が空間的に滑らかに変化する性質をもつため、斜入射の場合も含めて優れた反射防止性能を示す [35]。したがって、サブ波長のモスアイ表面を利用することで、デバイス前面での反射を幅広い入射

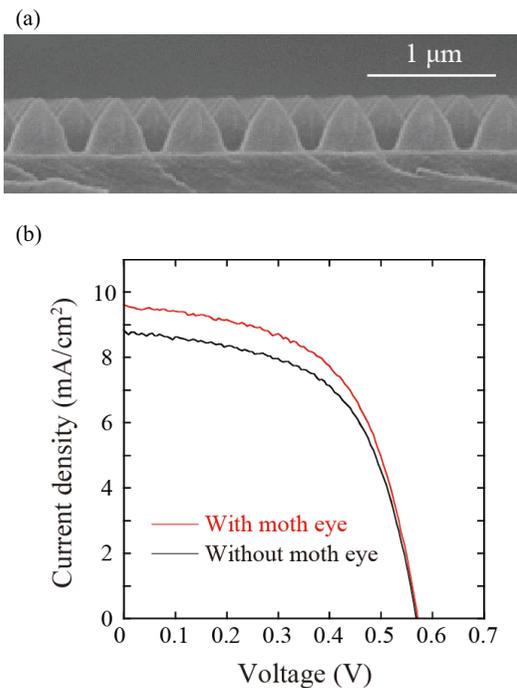


図 7 準最適形状のモスアイ構造を導入した有機薄膜太陽電池の実験結果。(a) 実験で使用したモスアイ構造の電子顕微鏡写真。(b) モスアイの導入による有機薄膜太陽電池の J-V 特性の変化。(a) の画像により得られたモスアイ形状 (周期  $L = 611$  nm, 高さ  $H = 450$  nm) は、シミュレーションによる最適解 ( $L = 592$  nm,  $H = 601$  nm) と比較的近く、準最適な特性を有する (文献 [20] より許可を得て引用)

Fig. 7 Experimental results obtained by using organic photovoltaics with near-optimal moth eye structure.

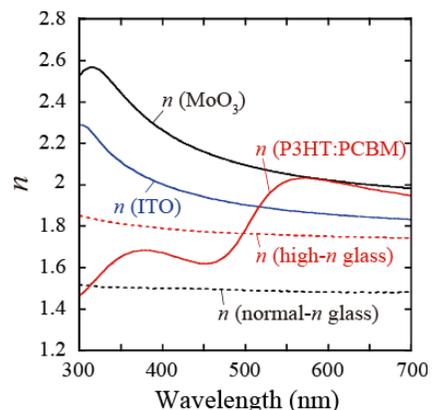


図 8 有機太陽電池に使用する各材料の屈折率 ( $n$ ) の波長依存性 (実線)。点線は一般的なガラス (黒) と高屈折率ガラス (赤) の屈折率を示す (文献 [19] より許可を得て引用)

Fig. 8 The change in refractive index as function of wavelength for the materials and glass used in organic photovoltaics.

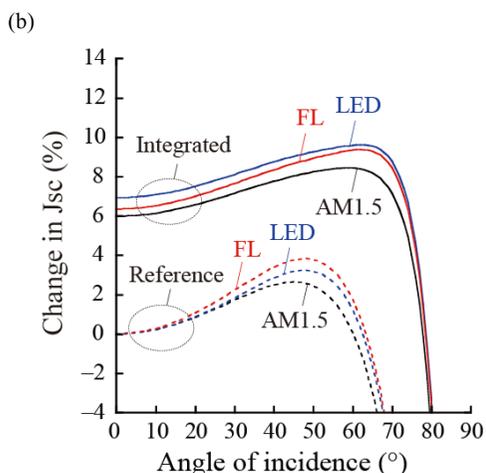
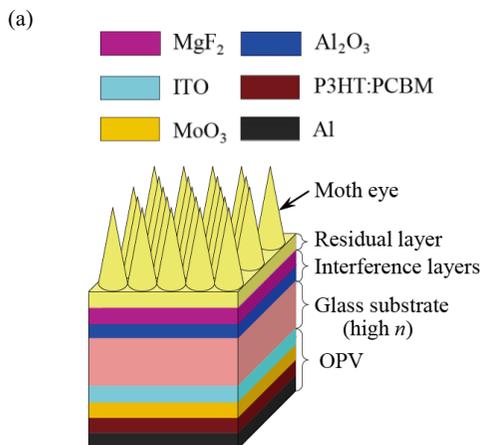


図9 (a) 有機薄膜太陽電池の統合型デバイスの光学モデル。(b) シミュレーションで得られた入射角に対する発電電流 ( $J_{sc}$ ) の変化。統合型デバイスの場合 (実線)、通常のデバイスの場合 (点線) のそれぞれについて、LED、蛍光灯 (FL)、太陽光 (AM1.5) の照射スペクトルを用いて得られた結果を記載 (文献[19]より許可を得て引用)

Fig. 9 (a) Integrated device of organic photovoltaics (OPVs). (b) The incident angle-dependent change in  $J_{sc}$  for the integrated device (solid line) and reference device (dashed line).

角で抑制する効果が期待できる。一方、有機太陽電池で使用する各材料の屈折率を比較した場合、ガラスの屈折率が他の材料 (P3HT:PCBM, ITO,  $\text{MoO}_3$ ) に比べて低いことが、ガラス基板と有機太陽電池本体の間の光学アドミッタンス [23] のずれを通じて、ガラス後面での反射を誘発する要因となることが分かる (図 8)。そこで筆者等の研究 [19] では、

(1) サブ波長のモスアイ表面を使用することでデバイ

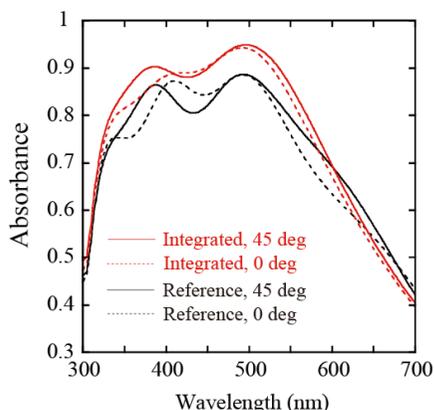


図10 入射角  $0^\circ$  (点線) 及び  $45^\circ$  (実線) における発電層の吸収率スペクトル。赤線：統合型デバイスの場合、黒線：通常のデバイスの場合 (文献[19]より許可を得て引用)

Fig. 10 Spectra of the absorbance in the active layer for incident angle  $0^\circ$  (dashed line) and  $45^\circ$  (solid line). The red and black lines show the cases of the integrated device and reference device, respectively.

ス前面での反射を抑制

- (2) 高屈折率ガラス (屈折率 1.8 程度) を使用することでガラス基板後面での反射を抑制
- (3) モスアイとガラス基板の間に多層干渉膜を挟むことでガラス基板前面での反射を抑制

という三つの基本方針により、デバイス各部の屈折率分布を調節して全体の反射率を低減した統合型デバイス (図 9(a)) を提案した。

特性マトリクス法 [23], [24] による光学解析を行った結果、統合型デバイスを使用することで、太陽光及び屋内光源 (LED、蛍光灯) の双方において、幅広い入射角で性能が顕著に向上することが明らかとなった (図 9(b))。この結果は、可視光の広いスペクトル域で、発電層における光の吸収が大幅に促進されることに起因している (図 10)。

光学シミュレーションの妥当性を検証するため、実際に高屈折率ガラス上に有機薄膜太陽電池を構築し、サブ波長のモスアイ (周期 260 nm, 高さ 320 nm) を積層したガラス基板と組み合わせることで、統合型デバイスを試作した。デバイスの構成の違いによる外部量子効率 (EQE) の変化を計測した結果、可視光の広い波長域で光学解析による予測とよく一致する EQE 特性の変化が得られた (図 11)。

この研究では、短波長での高屈折率ガラスの光吸収が通常のガラスに比べて大きい傾向にあるため、利用

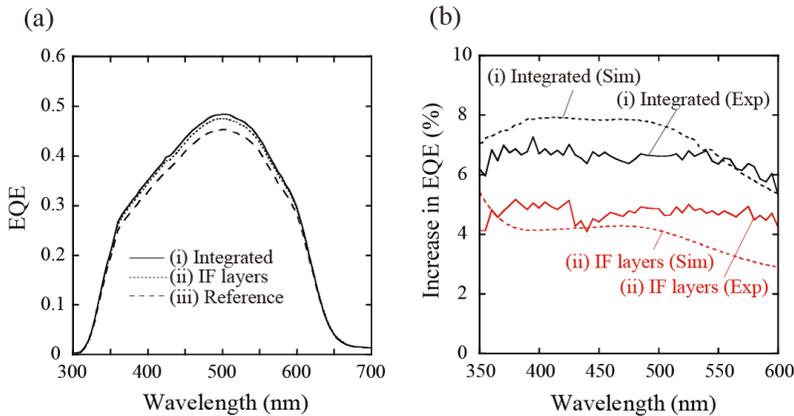


図 11 統合型デバイスに関する実験結果. (a) 実験で得られた各波長における外部量子効率 (EQE). (i) 統合型デバイスの場合 (実線), (ii) 高屈折率ガラスと多層干渉膜のみを適用したデバイスの場合 (破線), (iii) 高屈折率ガラスのみを適用したデバイスの場合 (点線). (b) 各ケースの EQE の増加率について実験データとシミュレーションを比較した結果. 黒線: (i) のケースの (iii) に対する EQE の増加率 (%). 赤線: (ii) のケースの (iii) に対する EQE の増加率 (%). 実線は実験結果 (Exp), 点線はシミュレーション結果 (Sim) をそれぞれ示す (文献 [19] より許可を得て引用)

Fig. 11 Experiments for the integrated device of organic photovoltaics. (a) The change in EQE as function of wavelength, which is obtained by experiment. (b) The comparison of relative changes in EQE obtained by experiment and simulation.

できる高屈折率ガラスの材料特性によって、実現可能な効率に制約があることも判明している [19]。しかし、透明で高い屈折率を有するガラスの開発は様々な観点から進められており [36], [37], この研究で提案したデバイスの屈折率分布の制御法を進展させることで、性能の更なる改善に結びつくと期待される。

## 5. むすび

本論文では、有機薄膜太陽電池の高効率化を目指して、筆者等が取り組んできた表面ナノ構造による光制御の研究を紹介した。波長と同程度の空間スケールを有するナノ構造が引き起こす光学応答は、散乱・反射・屈折・回折が空間的に混合した形で誘起される複雑な現象である。このため、高効率の光閉じ込めを実現するには、利用可能なナノ加工技術を制約条件として課しながら、デザイン空間内の最適化探索を行うことで、実現可能でかつ優れた光制御構造を見出す設計プロセスが不可欠である。しかし、ナノ構造を含むデバイスの 3 次元的な光伝搬の解析は、一般に膨大な計算時間を要することから、現状では依然として比較的簡単な構造についてしか解析が行われていない。薄膜太陽電池の大幅な高効率化を実現するための実用的な光閉じ込め構造を明らかにするには、言わば“干し草の中から針を探す”ような広大なデザイン空間の探索を行う

ことが必要であり、今後の研究ではこのような問題に適した数理解析の手法の開発が、一つの重要な鍵になると筆者は考えている。

## 文 献

- [1] 資源エネルギー庁, “エネルギーに関する年次報告 (エネルギー白書 2022),” June 2022.
- [2] 国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構, “太陽光発電開発戦略 2020 (NEDO PV Challenges 2020),” Dec. 2020.
- [3] K.A. Mazzio and C.K. Luscombe, “The future of organic photovoltaics,” *Chem. Soc. Rev.*, vol.44, pp.78–90, 2015.
- [4] S.H. Park, A. Roy, S. Beaupre, S. Cho, N. Coates, J.S. Moon, D. Moses, M. Leclerc, K. Lee, and A.J. Heeger, “Bulk heterojunction solar cells with internal quantum efficiency approaching 100%,” *Nat. Photonics*, vol.3, pp.297–303, 2009.
- [5] Y. Wang, P. Shen, J. Liu, Y. Xue, Y. Wang, M. Yao, and L. Shen, “Recent advances of organic solar cells with optical microcavities,” *Sol. PRL*, vol.3, 1900181, 2019.
- [6] N. Schopp and V.V. Brus, “A review on the materials science and device physics of semitransparent organic photovoltaics,” *Energies*, vol.15, p.4639, 2022.
- [7] V. Stoichkov, T.K.N. Sweet, N. Jenkins, and J. Kettlea, “Studying the outdoor performance of organic building-integrated photovoltaics laminated to the cladding of a building prototype,” *Sol. Energ. Mat. Sol. Cells*, vol.191, pp.356–364, 2019.
- [8] S. Berny, N. Blouin, A. Distler et al., “Solar trees: First large-scale demonstration of fully solution coated, semitransparent, flexible organic photovoltaic modules,” *Adv. Sci.*, vol.3, 1500342, 2016.
- [9] B. Minnaert and P. Veelaert, “A proposal for typical artificial light

- sources for the characterization of indoor photovoltaic applications,” *Energies*, vol.7, pp.1500–1516, 2014.
- [10] R. Steim, T. Ameri, P. Schilinsky, C. Waldauf, G. Dennler, M. Scharber, and C.J. Brabec, “Organic photovoltaics for low light applications,” *Sol. Energ. Mat. Sol. Cells*, vol.95, pp.3256–3261, 2011.
- [11] C.A. Reynaud, R. Clerc, P.B. Lechene, M. Hebert, A. Cazier, and A.C. Arias, “Evaluation of indoor photovoltaic power production under directional and diffuse lighting conditions,” *Sol. Energ. Mat. Sol. Cells*, vol.200, 110010, 2019.
- [12] J. Panidi, D.G. Georgiadou, T. Schoetz, and T. Prodromakis, “Advances in organic and perovskite photovoltaics enabling a greener Internet of Things,” *Adv. Funct. Mat.*, vol.32, 2200694, 2022.
- [13] S.S. Yang, Z.C. Hsieh, M.L. Keshtov, G.D. Sharma, and F.C. Chen, “Toward high-performance polymer photovoltaic devices for low-power indoor applications,” *Solar RRL*, vol.1, 1700174, 2017.
- [14] M. Niggemann, B. Blasi, A. Gombert, A. Hinsch, H. Hoppe, P. Lalanne, D. Meissner, and V. Wittwer, “Trapping light in organic plastic solar cells with integrated diffraction gratings,” *Proc. 17th Eur. Photovoltaic Solar Energy Conf.*, Munich, Germany, 2001.
- [15] M. Niggemann, M. Riede, A. Gombert, and K. Leo, “Light trapping in organic solar cells,” *Phys. Status Solidi A*, vol.205, pp.2862–2874, 2008.
- [16] A. Raman, Z. Yu, and S. Fan, “Dielectric nanostructures for broadband light trapping in organic solar cells,” *Opt. Express*, vol.19, pp.19015–19026, 2011.
- [17] S. Kubota, K. Kanomata, B. Ahmmad, J. Mizuno, and F. Hirose, “Optimized design of moth eye antireflection structure for organic photovoltaics,” *J. Coat. Technol. Res.*, vol.13, pp.201–210, 2016.
- [18] S. Kubota, K. Kanomata, B. Ahmmad, J. Mizuno, and F. Hirose, “FDTD analysis for light passing through glass substrate and its application to organic photovoltaics with moth eye antireflection coating,” *J. Photopolym. Sci. Technol.*, vol.2, pp.209–214, 2016.
- [19] S. Kubota, Y. Harada, T. Sudo, K. Kanomata, B. Ahmmad, J. Mizuno, and F. Hirose, “An integrated antireflection design using nanotexture and high-refractive-index glass for organic photovoltaics,” *J. Coat. Technol. Res.*, vol.14, pp.1209–1224, 2017.
- [20] S. Kubota, K. Hiraga, K. Kanomata, B. Ahmmad, J. Mizuno, and F. Hirose, “Efficient light trapping structures for organic photovoltaics fabricated by nanoimprint lithography,” *J. Photopolym. Sci. Technol.*, vol.33, pp.103–109, 2020.
- [21] S.J. Fonash, “Introduction to light trapping in solar cell and photo-detector devices,” Elsevier, London, 2015.
- [22] E. Hecht, “Optics,” 5th ed., Pearson Educational Limited, Harlow, 2017.
- [23] H.A. Macleod, “Thin-film optical filters,” 4th ed. CRC Press, Boca Raton, 2010.
- [24] 小椋山光信, “光学薄膜の基礎理論,” 増補改訂版, オプトロニクス社, 2011.
- [25] A. Saffar, Y. Wang, C. Reardon et al., “Interplay between optical and electrical properties of nanostructured surfaces in crystalline silicon solar cells,” *IEEE Photonics J.*, vol.11, 4900907, 2019.
- [26] A. Donges, “The coherence length of black-body radiation,” *Eur. J. Phys.*, vol.19, pp.245–249, 1998.
- [27] S. Divitt and L. Novotny, “Spatial coherence of sunlight and its implications for light management in photovoltaics,” *Optica*, vol.2, pp.95–103, 2015.
- [28] H. Mashaal, A. Goldstein, D. Feuermann, and J.M. Gordon, “First direct measurement of the spatial coherence of sunlight,” *Opt. Lett.*, vol.37, pp.3516–3518, 2012.
- [29] E. Wolf, Introduction to the theory of coherence and polarization of light, Cambridge University Press, Cambridge, 2007. (邦訳 “光のコヒーレンスと偏光理論,” 白井知宏訳, 京都大学出版会)
- [30] R. Brunner, O. Sandfuchs, C. Pacholski, C. Morhard, and J. Spatz, “Lessons from nature: biomimetic subwavelength structures for high-performance optics,” *Laser Photonics Rev.*, vol.6, pp.641–659, 2012.
- [31] K. Forberich, G. Dennler, M.C. Scharber, K. Hingerl, T. Fromherz, and C.J. Brabec, “Performance improvement of organic solar cells with moth eye anti-reflection coating,” *Thin Solid Films*, vol.516, pp.7167–7170, 2008.
- [32] S.A. Boden and D.M. Bagnall, “Optimization of moth-eye antireflection schemes for silicon solar cells,” *Prog. Photovolt. Res. Appl.*, vol.18, pp.195–203, 2010.
- [33] A. Deinega, I. Valuev, B. Potapkin, and Y. Lozovik, “Minimizing light reflection from dielectric textured surfaces,” *J. Opt. Soc. Am. A*, vol.28, pp.770–777, 2011.
- [34] J. Wang, C.W. Wang, Y. Li, F. Zhou, and W.M. Liu, “The structure optimization design of the organic solar cells using the FDTD method,” *Physica B*, vol.405, pp.2061–2064, 2010.
- [35] M. Chen, H.C. Chang, A.S.P. Chang, S.Y. Lin, J.Q. Xi, and E.F. Schubert, “Design of optical path for wide-angle gradient-index antireflection coatings,” *Appl. Opt.*, vol.46, pp.6533–6538, 2007.
- [36] Z. Mao, J. Duan, X. Zheng, M. Zhang, I. Zhang, H. Zhao, and J. Yu, “Study on optical properties of  $\text{La}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5$  glasses prepared by containerless processing,” *Ceram. Intern.*, vol.41, pp.S51–S56, 2015.
- [37] H. Xiang, L. Guan, Z. Peng, and J. Li, “Preparation of high refractive index  $\text{La}_2\text{O}_3\text{-TiO}_2$  glass by aerodynamic levitation technique and effects of  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  substitution on its thermal and optical properties,” *Ceram. Intern.*, vol.40, pp.4985–4988, 2014.

(2022年12月20日受付, 2023年2月28日再受付,  
3月22日早期公開)



久保田 繁 (正員)

1994 東京大学工学部航空宇宙工学科卒。  
1996 同大学院工学系研究科修士課程了。  
自動車メーカーを経て, 2003 博士(工学・東京大学)。  
2004 山形大学工学部助手。2009  
ピッツバーグ大学客員研究員(併任)。2011  
山形大学院理工学研究科准教授。現在  
に至る。専門は数理工学, 有機エレクトロニクス, 計算論的神経科学。  
有機薄膜太陽電池の光制御技術, 脳の数理モデルに関する研究に従事。



有馬ボシールアハンマド (正員)

1998 シャジャラル科学技術大学理学部卒。2008 鹿児島大学大学院博士後期課程了。日本学術振興会特別研究員、岡山大学特任助教、九州大学研究員を経て、現在、山形大学大学院理工学研究科准教授。半導体ナノ光触媒を用いた水分解による水素製造と量子ドット太陽電池の研究に従事。博士(理学)。



廣瀬 文彦 (正員)

1989 東北大学大学院工学研究科博士課程後期了。博士(工学)。同年三菱重工(株)入社。2003 山形大学工学部助教授。2006 同教授。現在、界面制御型太陽電池、室温原子層堆積法の開発と応用研究に従事。