未来社会創造事業（探索加速型）
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域
終了報告書（探索研究）

令和2年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:尾坂 格]

[広島大学 大学院先進理工系科学研究科・教授]

[研究開発課題名:革新的有機半導体の開発と有機太陽電池効率20%への挑戦]

実施期間：令和2年11月1日～令和7年3月31日

§1. 研究実施体制

(1) 「材料開発」グループ(広島大学)

① 研究開発代表者:尾坂 格 (広島大学大学院先進理工系科学研究科、教授)

② 研究項目

- ・p型(ドナー性)半導体ポリマー材料の開発
- ・n型(アクセプター性)半導体分子およびポリマー材料の開発
- ・有機薄膜太陽電池素子の作製・評価

(2) 「発電機構解析」グループ(京都大学)

① 主たる共同研究者:大北 英生 (京都大学大学院工学研究科、教授)

② 研究項目

- ・電荷生成ダイナミクスの解析
- ・電圧損失機構の解析

(3) 「電子構造解析」グループ(千葉大学)

① 主たる共同研究者:吉田 弘幸 (千葉大学大学院工学研究院、教授)

② 研究項目

- ・精密電子構造解析
- ・励起子束縛エネルギー解析
- ・電荷解離エネルギー解析

(4) 「素子作製プロセス」グループ(理化学研究所)

① 主たる共同研究者:但馬 敬介 (理化学研究所創発物性科学研究センター、チームリーダー)

② 研究項目

- ・素子作製プロセス
- ・状態密度分布の解析

§2. 研究開発成果の概要

本研究開発課題では、有機薄膜太陽電池(OPV)では未踏のセル変換効率 20%達成に向け、新規有機半導体の開発を推進した。変換効率 20%達成に向けて重要な課題は、低電圧損失と高効率電荷生成の両立、すなわち、最小化されたドナー・アクセプター(D/A)間エネルギーオフセットを有する材料系において効率的な電荷解離を実現することである。そのためには、D/A 界面にて電荷非局在化を促進することが重要との仮説を立て、尾坂 G にて、剛直な平面ロッド型 π 電子系骨格を用いることを指針に、有機半導体として非フラーレン系アクセプターおよびポリマー系ドナーを開発した。特に新規ドナーを開発することで、研究開発開始当初は 12%程度であった変換効率は、約 19%まで大きく向上した。また、共同研究グループにおいて種々解析を行うことで、開発した

ドナーは、剛直なポリマー構造に由来して構造欠陥が抑制され、これまで報告された電圧損失が小さい材料としては最も高い電荷生成効率を示すことが明らかになった。これは、従来ボトルネックであった電圧と電流のトレードオフが解消し得ることを示しており、今後の高効率化に向けて極めて重要な知見である。さらに、材料やセル構造・作製プロセス技術の開発により目標値である 20% を達成できる道筋を見出した。また、アモルファス性混合状態におけるポリマー鎖の秩序向上や凝集性の制御による結晶化促進、厚膜発電層における高 FF 実現など、高効率化に繋がる多くの重要な知見を見出した。以上のように、本チームは、本未来社会創造事業の探索研究期間において、独自の分子設計戦略に基づいて開発した新材料により世界トップクラスの OPV 変換効率を達成するとともに、今後の高効率化に向けた新たな材料設計指針やセル開発指針を得るなど重要な成果を挙げた。

【代表的な原著論文情報】

- (1) K. Yamanaka, M. Saito, T. Koganezawa, H. Saito, H.-D. Kim, H. Ohkita, I. Osaka, “Interplay Between π -Conjugated Polymer Donors and Acceptors Determines Crystalline Order of Their Blends and Photovoltaic Performance” *Advanced Energy Materials*, **2023**, *13*, 2203443.
- (2) M. Saito, H. Yamada, K. Kranthiraja, T. Mikie, A. Saeki, H. Ohkita, I. Osaka, “Ordered π -Conjugated Polymer Backbone in Amorphous Blend for High Efficiency Nonfullerene Organic Photovoltaics” *Communications Materials*, **2023**, *4*, 72.
- (3) S. Kamimura, M. Saito, Y. Teshima, K. Yamanaka, H. Ichikawa, A. Sugie, H. Yoshida, J. Jeon, H.-D. Kim, H. Ohkita, T. Mikie, I. Osaka “Manipulating the Functionality and Structures of π -Conjugated Polymers Utilizing Intramolecular Noncovalent Interactions Towards Efficient Organic Photovoltaics” *Chemical Science*, **2024**, *15*, 6349–6362.
- (4) H. Iwasaki, K. Yamanaka, Y. Sato, T. Mikie, M. Saito, H. Ohkita, I. Osaka, “Efficient Derivatization of a Thienobenzobisthiazole-Based π -Conjugated Polymer Through Late-Stage Functionalization Towards High-Efficiency Organic Photovoltaic Cells” *Angewandte Chemie International Edition*, **2024**, *63*, e202409814.
- (5) T. Mikie, T. Morioku, S. Suruga, M. Hada, Y. Sato, H. Ohkita, I. Osaka, “Dithienonaphthobisthiadiazole Synthesized by Thienannulation of Electron-Deficient Rings: An Acceptor Building Unit for High-Performance π -Conjugated Polymers” *Chemical Science*, **2024**, *15*, 19991–20001.