

研究成果展開事業
ー戦略的イノベーション創出推進プログラムー
(S-イノベ)

研究開発テーマ「有機材料を基礎とした新規エ
レクトロニクス技術の開発」

研究開発テーマ中間評価用資料

平成25年2月26日

1. 研究開発テーマ

「有機材料を基礎とした新規エレクトロニクス技術の開発」(平成 21 年度発足)

本研究開発テーマは、有機化合物を利用した光電変換技術および有機化合物中の電子制御技術を応用したデバイスなどの研究開発を対象とする。具体的には、有機EL、有機太陽電池、有機トランジスタなどの有機系電子デバイスに係る技術の開発などである。

実用的な技術の創出を目標とした研究開発であるため、本研究開発テーマで対象とする課題については、基礎研究の段階が一定以上進んでいることを前提としている。上記具体例に係る技術についても、基礎的に解決すべき課題は残されているが、一方で、基礎研究において芽吹きつつある優秀な成果を実用化に向けて強力に推進していくことにより、激化する諸外国との技術開発競争に対応し、我が国の産業競争力を強化することを図る。

有機ELディスプレイや有機EL照明については、そのエネルギー効率や製造プロセスの単純さなどによる大きな製造エネルギーの削減や動作エネルギーの削減、ひいては、コスト低減が期待されている。また、有機系太陽電池についても、変換効率や寿命こそ無機系に劣るが、有機物ならではのフレキシブル性を活かし、多用な設置方法、デザイン性も期待できるなど、その可能性は非常に大きいものである。また製造プロセスも印刷プロセス製造により、生産のためのエネルギーの低減が期待されている。有機トランジスタはプリンタブル・エレクトロニクスを支える基礎デバイスとして今後不可欠なものとなると考える。

これらについては一部実用化の始まっているものがあるが、性能的にはまだまだ発展途上であり改善の余地が大きく、また、米国や欧州、韓国なども国を挙げて取り組んでいる研究開発テーマであることから、今後一層競争が激しくなっていくことは想像に難くない。

また本研究開発テーマは「低炭素社会づくり行動計画(平成20年7月29日閣議決定)」にも沿ったものであり、その緊急性・重要性は最早疑問の余地はないものとする。

印刷プロセスによる、初期設備投資の削減、製造のためのエネルギーの削減を10年後の目標とする。また、有機材料ならではのフレキシブル性をいかに実現したデバイス作製を目標とする。しかし、プロジェクト前半では、実用的なデバイスを実現するために、ガラスのような堅い基板を用い、真空蒸着で作製したデバイスも念頭においての開発も行う。

(1) 印刷法有機TFTアレイを基盤とするフレキシブルディスプレイの開発

印刷用有機TFTアレイを基盤としたフレキシブル有機ELディスプレイを開発する。そのために、印刷可能な高性能ポリマー半導体材料の開発を基盤として、印刷プロセスによる高性能ポリマートランジスタとその集積化技術を開発する。3D-FET構造の応用、界面解析・制御技術、さらには種々の印刷手法を活用することでフレキシブル有機ELディスプレイを実現する。

(2) フレキシブル浮遊電極をコア技術とする新規色素増感太陽電池の開発

高コストである透明導電性膜を使用しない円筒型色素増感太陽電池アレイを開発する。そのために、ポーラスチタニアを金属メッシュ上に形成した自立浮遊電極を開発する。さらに、印刷法に適した電極形状の開発を図る。色素増感太陽電池には封止技術がキーポイントとなるが、円筒型では平板に比して封止面積が狭く有利であり、円筒型に適した封止技術を実現する。また、可視光に加え近赤外光を吸収する色素の開発等で、高性能フレキシブル円筒型色素増感太陽電池モジュールを実現する。

(3) 高効率・長寿命フレキシブル有機EL照明の開発

印刷用によるフレキシブルな白色有機EL照明を開発する。そのために、塗布できる高効率・長寿命な白色有機EL材料を開発し、塗布時、層間で混合が起こらない硬化システムを導入する。さらに、それら材料を用いた高精度塗布プロセスの開発を図り、高効率・長寿命なフレキシブル白色有機EL照明デバイスを実現する。

(4) 高効率・長寿命フレキシブル有機薄膜太陽電池の開発

低分子材料を薄膜中にナノ組織化して、塗布プロセスにより高性能フレキシブル有機太陽電池を実現する技術を開発し、高効率・長寿命なフレキシブル有機薄膜太陽電池モジュールを開発する。そのために、フラーレン化合物の最適化と界面制御を実施する。また、近赤外光吸収材料を開発し、可視光吸収層と接合することで高効率化を図る。その接合に使用する陽極・陰極バッファの塗布化を図り、全塗布型フレキシブル素子を実現するとともに3次元曲面へ太陽電池を構成する手法の確立を図る。これらにより高効率・長寿命フレキシブル有機薄膜太陽電池モジュールを開発する。

2. プログラムオフィサー（PO）

氏名 谷口 彬雄

（信州大学 名誉教授・特任教授）

3. 採択課題

採択年度	プロジェクト マネージャー	中間評価時 所属・役職	研究課題
平成 21年度	瀧宮 和男	広島大学 大学院工学研究院 物質化学工学部門 教授	新しい高性能ポリマー半導体材料と印刷プロセスによる AM-TFT を基盤とするフレキシブルディスプレイの開発
	早瀬 修二	九州工業大学 大学院生命体 工学研究科 教授	フレキシブル浮遊電極をコア技術とする新太陽電池分野の創成
	城戸 淳二	山形大学 大学院理工学研究 科有機デバイス工学専攻 教授	印刷で製造するフレキシブル有機EL照明の開発
	中村 栄一	東京大学 大学院理学系研究 科化学専攻 教授	塗布型長寿命有機太陽電池の創出と実用化に向けた基盤技術開発

4. 研究開発テーマのねらい（目標）

エレクトロニクス分野における韓国、台湾、中国勢の台頭の中で、日本の科学技術のイノベーションには、特に、「その地の需要に応じた新たな先端科学技術の開発」が求められている。

そのためには、

①学問的に高度な科学技術、材料技術

②先端技術を駆使した高度なプロセス技術

を前提としながらも、世の中の需要をしっかりと見据えた、それに応じた新たな先端科学技術が求められている。

申請当初からの思いは、次のとおりである。

①人間をより快適にする機械、コンピュータとのインターフェースの必要性が増してくる。

②現在のシリコンデバイスを軸とするエレクトロニクスを情報処理の核としながら、人間との関係をより快適とするデバイスの必要性がある。

③そのための技術は薄くて軽い、まげることが出来、壊れにくい、事がポイントである。

④それに答えうる技術が「有機エレクトロニクス」である。

その信念の上で、軽くて垂直面、屈曲面、設置場所の可能性を拡げる太陽電池、有機EL照明、情報処理の可能性を拡げる有機半導体の研究を進めている。これは省エネルギーへ繋がる生産・技術となり、低環境負荷社会への貢献への挑戦でもある。

そのための産業の礎となる骨格技術としては、印刷技術であり、フレキシブル化技術である。これらの技術は一見プロセス技術に見えるが、その基盤となる技術は日本の得意分野である材料技術である。

本プロジェクトでは「市場展開を見据えた材料技術」を基軸に進めている。

この点の基軸を下に研究開発を進めることによって、日本のエレクトロニクス産業の力強い再生の一助が担えると確信している。

（1）印刷法有機TFTアレイを基盤とするフレキシブルディスプレイの開発

新規アクセプター骨格の利用によりポリマー半導体材料を開発した。また PNDT3BT を改質して溶解性の向上などが確認され、今後の材料研究の方向性の元となる知見を得ている。また、ポリマー半導体薄膜内のキャリア輸送機構の解明など基礎面の進展もある。さらに、プッシュコート法の開発により、超薄膜撥液性絶縁膜上にポリマー半導体膜の塗布が可能になるなどの大きな進展があった。

本分野は材料及び超薄膜の形成プロセスなどブラックボックス化が可能であり海外メーカーにキャッチアップされない技術と考えられ、その方向で技術開発を進める。

（2）フレキシブル浮遊電極をコア技術とする新規色素増感太陽電池の開発

金属メッシュ上にチタニア層を形成し、色素溶液に含漬することで、ポーラスチタニア

自立浮遊電極を形成する。金属メッシュの種類、チタニアの積層方法の検討、片面塗布化による薄膜化、電解質層の膜厚を制御することにより、効率の向上をみた。また円筒型の太陽電池の開発を行い、効率の光の照射角度依存性がほとんどないこと、また、擬似太陽光による出力に比べ、日射での1日の総発電量は平板型の1.28倍となることを見出した。

一方、太陽電池業界では、中国の台頭によりパネル価格の大幅な下落等が起り、再編などが起り始めている。

このようなモジュール価格が低下する情勢で、発電した電気を販売することを主目的とする開発は現状では難しいと考えられる。特徴のある円筒型の色素増感太陽電池（DSSC）に絞って開発し、従来のシリコン系太陽電池では不得意なニッチ領域での製品化から進めべきである。将来的にはグローバル産業として発展させることが望ましい。

（３）高効率・長寿命フレキシブル有機EL照明の開発

様々な可溶性塗布材料を合成し、溶解性と製膜性、エネルギー準位、物性パラメータとの関係を見いだした。その結果、緑・赤色発光層を塗布法にて、青色発光層を蒸着法にて成膜した白色素子において、ステージⅠの目標を達成している。

また、電極以外の層を塗布積層製膜したマルチフォトンエミッション（MPE）型に成功し、初期段階ながら全塗布MPE素子の原理実証に成功している。更に数十mm角発光素子にて、面内輝度ばらつきの目標を達成し、ステージⅡの研究開発項目の一部を前倒しで技術実証できているなどの大きな進展があった。

（４）高効率・長寿命フレキシブル有機薄膜太陽電池の開発

ERATO プロジェクトで開発した、ベンゾポルフィリンプレキューサーとC60誘導体からなる塗布膜を熱変換し、層分離構造による有機薄膜太陽電池を基礎に、適切なエネルギー状態を有する半導体材料を用いて、適切な相分離構造を示すような材料の組み合わせ及びプロセス条件を開発し、さらに適切な素子構造を持たせることにより、目標を大幅に上回る、2012年当時の世界最高の変換効率を示す有機太陽電池を開発することに成功した。また、この素子の光学シミュレーションの結果から、活性層が非常に有効に光を吸収して利用されていることを明らかにした。さらに、タンデム素子開発への基礎的検討を実施した。また、これらの基盤として有機半導体ライブラリーの構築、工業的精製技術を確立した。また、ロールツーロール法（R2R）による有機薄膜太陽電池製造プロセスをイメージして、研究所内に、R2R設備を構築し、試作など大きな進展があった。

一方、太陽電池業界では、中国の台頭によりパネル価格の大幅な下落等が起り、倒産や再編などが起り始めている。このような情勢で、従来のシリコン系太陽電池では不得意なニッチ領域から始め、将来的にはグローバル産業として発展させることを目指す。

5. 研究課題の選考について（3年程度経過後のみ）

提案された多くの課題の中よりの選定基準の

第一は、技術の素性の良さ、

第二は、企業の実績と事業化への意気込み、

であった。応募者にプレゼンをお願いし、独創性、研究成果の産業化への可能性、企業の意欲などの観点から慎重に審査を行った結果、最終的にPOが下記4件を採択した。

①太陽電池2件、薄膜太陽電池と色素増感太陽電池である。これは方式の違いで競い合う構成とした。

中村グループは ERATO の5年間の実績で学術的にも技術的にもすばらしい成果をあげており、その発展としての S・イノベとのマッチングが最適であった。また、参加企業のフラーレンを軸とした材料技術、プロセス技術、デバイス化技術をも高く評価した。

早瀬グループの提案は色素増感太陽電池の最大の問題点であり、事業化において最後の最後まで苦しむと考えられる電解質の漏れの問題に関して解決の可能性が高い技術である点を評価した。また、金属メッシュ電極技術には参加企業の技術が活かせると考えた。

②有機EL照明。経産省の「Cool Earth-エネルギー革新技术計画」、「低炭素社会づくり行動計画」の閣議決定でもうたわれている重要技術である。

城戸グループはこれまでの有機EL分野を牽引してきた実績と可能性を評価した。

参加企業の印刷技術をも高く評価した。

③有機半導体。各種デバイスを動作させる基本デバイスであり、そのための基本材料の技術開発である。

瀧宮グループは開発した材料骨格の素性の良さを活かす開発と参加企業のこの分野での実績を評価した。

6. アドバイザーの構成について

アドバイザー 名	現在の 所属	役職	任期
小出 直之	東京理科大学 理学部	教授	平成 21 年 11 月～現在
鈴木 博之	株式会社国際電気通信基礎技術研究所 (ATR)	常務取締役経営統括部長	平成 21 年 11 月～現在
府川 伊三郎	福井工業大学 産業ビジネス学科	教授	平成 21 年 11 月～現在
柳田 祥三	大阪大学	名誉教授	平成 21 年 11 月～現在
藤堂 安人	株式会社日経ビーピー	主任編集委員	平成 21 年 11 月～平成 23 年 9 月*1)
浜田 恵美子	名古屋工業大学 産学官連携センター	教授	平成 21 年 11 月～平成 23 年 9 月*1)

* 1) の後任として下記 3 名の方に就任いただいている。

安達 千波矢	九州大学 大学院工学研究院	教授	平成 23 年 10 月～現在
染谷 隆夫	東京大学 大学院工学系研究科	教授	平成 23 年 10 月～現在
竹内 安正	技術コンサルタント		平成 23 年 10 月～現在

当初のアドバイザーは、採択課題を検討することが主な目的のため、広い分野に見識のある方々にお願いした。株式会社日経ビーピーの藤堂安人主任編集委員は日経エレクトロニクスの編集長などを歴任されてこられ、記者としての幅広い見識からのコメントを期待した。また、名古屋工業大学 産学官連携センター浜田恵美子教授は前職の太陽誘電株式会社において色素を利用した光記録材料を一から事業化まで成功させた第一人者である。大手の大企業が長年挑戦し、実現できなかった光ディスク CD-R を完成させた経験からのコメントを期待した。

株式会社国際電気通信基礎技術研究所(ATR)の鈴木博之常務取締役経営統括部長は NTT において光技術関連の研究開発を経て、ATR における脳情報通信総合研究所、社会メディア総合研究所全体の研究開発を広い視野で統括されている。研究開発の経営的な視点からのコメントを期待した。

福井工業大学の府川伊三郎教授は、旭化成株式会社当時、中央研究所所長および専務理

事・研究開発企画管理部長の要職に就かれ、研究開発、企画管理部門で活躍された。有機合成やポリマー合成に造詣が深い。また、JST において、産官学ジャーナルの編集委員、産学共同シーズイノベーション化事業および研究成果最適展開支援プログラム（A-Step）の評価委員と、産学連携部門で活躍されており、主に材料系および産学連携の視野からのアドバイスを期待した。

大阪大学柳田祥三名誉教授は、色素増感太陽電池の世界的第一人者であり、現役引退後は、特任教授として有機薄膜太陽電池にも着手、光化学、有機エレクトロニクス幅広い視野からの専門的アドバイスを期待した。

2年後には専門領域の方々を軸にした委員会に再編成した。

安達教授は、早くから有機エレクトロニクスの研究に着手し、現在内閣府による研究資金FIRSTプログラム「スーパー有機ELデバイスとその革新的材料への挑戦」の研究代表者である。

染谷教授は、印刷法によるフレキシブル有機エレクトロニクスで大きな業績を上げており、JSTのERATO「染谷生体調和エレクトロニクス」プロジェクトの代表者でもある。

両教授とも、現役の有機エレクトロニクス関連研究者としてのアドバイスを頂く。

竹内氏は、JSR（株）（旧 日本合成ゴム（株））にて、液晶関連事業を立ち上げ、基礎から事業化まで広い視野と見識を有しており、その後、（株）国際基盤材料研究所の社長としてフラーレンを初めとする有機エレクトロニクスの研究開発を推進していた。現在は技術コンサルタントとして、活躍しており、産業界の観点からアドバイスを頂く。

以上述べたように、アドバイザーの方々は極めて高い研究業績や卓越したマネジメント力を有している。それらの経験を通じて研究推進会議や中間評価において適切な助言、評価を頂いている。

7. 研究開発テーマのマネジメントについて

（1）POの運営方針について

本研究開発を推進するに当たり、

①サイトビジットによる、研究現場での議論を重視する。特に、企業の研究現場の視察と実験設備やパイロットプラントへの進捗状況の確認を行う。

②課題間で共有可能な技術課題を抽出する。

を重視して、研究開発マネジメントを行ってきた。

サイトビジットは、大学等及び企業にわけ、各年1回実施した。また、共有可能な技術課題の抽出のため、これのみを目的としたサイトビジットを別途実施し、共有可能な技術課題をまとめ、テーマ推進会議で提案した。

（2）研究開発テーマの進捗状況の把握・評価

①サイトビジットを重視し、研究開発現場での議論を軸として状況を把握する。特に、企業の研究開発現場の意向を重要視する。

(3) 研究開発テーマの研究開発計画の見直し

- ①年度初めの研究計画による見直し、及び課題の中間評価での見直しを実施する。
- ②個別の打合せによる見直し作業も行う。瀧宮グループに関しては、平成 23 年度に実施した中間評価後の進捗確認などフォローアップを実施した。今後、課題の中間評価時のアドバイザー各位からのアドバイス等を加味し、全体計画の見直し及び、残り 3 課題のフォローアップを行う。

(4) ステージアップのマイルストーン（ステージⅠからステージⅡ）と評価基準（数値目標）、および、ステージアップの根拠

- ①中村グループはステージⅠの目標を大きくクリアし、ステージⅡの目標も前倒しで実施されていることを評価し、ステージⅡへの移行に問題無しとした。
- ②城戸グループはステージⅠの目標をクリアし、ステージⅡの目標も一部前倒しで実施されていることからステージⅡへの移行に問題無しとした。
- ③早瀬グループはステージⅠの目標をほぼクリアしているものの、一部未達の所があるが平成 24 年度中に達成見込みであることと、長寿命化に関しては、ステージⅡの内容を前倒しで実施していることを評価した。条件付ステージⅡへの移行とした。
- ④瀧宮グループ（平成 23 年度中間評価を実施、平成 24 年度にフォローアップを実施）はステージⅠの目標をほぼクリアしているものの、企業側の事業化計画の不明確な部分があり、見直しをお願いし、フォローアップ面接を実施した。条件付ステージⅡへの移行とした。

(5) 課題内・課題間の連携の推進

- ①課題内の連携はいずれのグループも頻繁な情報共有化などが行われており、特に介入する必要性は感じなかった。
- ②課題間の連携は参加企業が全て同業者でもあることから、自社の機密保持の観点で困難を極めた。サイトビジットで抽出した「共有可能な技術課題」、基板材料、保護膜、接着剤などの共通基盤技術に関して、特別に情報交換、必要に応じた研究開発依頼などを検討した。

(6) 研究課題の指導

- ①サイトビジットにて研究開発現場を議論し、状況を把握しつつ、指導・助言を行ってきた。中でも、早瀬グループには、封止技術に関して蛍光灯の技術の導入を強く勧めた。瀧宮グループには、ターゲットに関する助言、事業化計画などに関して議論を深めた。
- ②全課題に対し、特許申請を奨励し、プレスリリースや展示会へのサンプル展示を推奨した。

(7) 研究費の配分について研究開発テーマ運営上の立場からのコメント

- ①予算資金及び加速資金の重点配分及びP O裁量経費の確保と重点配分を実施した。

(8) 今後の取り組み

- ①各課題間で共有可能な技術課題の抽出を実施した。これを活用した推進に課題を残した。今後、基板材料、保護膜、接着剤などの共通基盤材料に関して、特別に情報交換、必要に応じた研究開発依頼などを検討したい。本丸としての機能素子部分に加えて、これらの共通基盤材料の水蒸気バリア性などは素子の寿命を左右する非常に重要な物性である。

8. 研究開発テーマとしての産業創出の核となる技術の確立に向けた状況

8. 1 研究開発課題名 (瀧宮グループ)

【新しい高性能ポリマー半導体材料と印刷プロセスによる AM-TFT を基盤とするフレキシブルディスプレイの開発】

(1) 研究開発成果

2009 年度の研究開始以降は 4 研究開発機関の協同により推進しており、ステージ I の約 2 年半、及びステージ II の約半年間で各機関のもつシーズのブラッシュアップとそれらの融合を図ってきた。即ち、材料、プロセス、及びそれらの解析を各機関で進めるとともに、それらの融合により、他では成しえないフレキシブルアクティブマトリックス (AM) バックプレーンの開発を志向してきた。これまでの研究開発成果を、「技術のブレークスルー」、「社会、経済の発展につながる重要な成果」、および「他事業への波及効果」について、それぞれ、材料、プロセス、解析、融合 (デバイス化) の観点から表 1 にまとめた。

表 1 研究開発成果のまとめ

観点	材料	プロセス	解析	融合
技術のブレークスルー	・高移動度材料の開発 ・安定性、再現性の高い材料の合成技術 ・大量合成のための中間体合成技術の開発	・3D トランジスタ開発 ・プッシュコート (PC) 法の開発	・有機半導体薄膜中のキャリア輸送機構の解明	・新プロセス (3D、PC) への新材料の適用 ・新プロセスを用いた AM 作製 ・新材料素子におけるキャリア輸送機構の解明
社会、経済の発展につながる重要な成果	・環境負荷の大きい有機スズ中間体を回避する半導体ポリマー合成	・産業で広く使われるスピンコート法を代替可能な、材料ロスの無い低環境負	・産業で広く使われる多結晶薄膜の評価法として、解析の原理は広	—

		荷プロセスを開 発 (PC 法)	く応用が可能	
他事業への 波及効果	・有機半導体開発の ための有用ビルデ ィングブロックの 開発	・有機半導体デ バイスを高性能 化するための新 プロセス技術	・有機半導体 デバイスの動 作機構の理解 が飛躍的に進 歩	—

以下、材料、プロセス、解析、および融合の各項目について、これまでの成果を詳述する。

(2) 材料技術

高移動度半導体材料の材料開発は、研究開始時のシーズポリマーである PNDT3BT を出発点として、

- ① シーズポリマーの構造最適化による高移動度化
- ② 新規アクセプターユニットの導入
- ③ 溶解性の向上

の三点を指針として検討してきた。その結果、PNDT3BT 骨格をもつポリマーで、移動度は改善したものの、溶解性、再現性、安定性といった点に問題があった。そこで、新規アクセプターユニットを導入したポリマーを開発し、比較的移動度の良好な特性を示すことを見出した。

上記の一次ポリマー材料からさらに高移動度化を実現するために、二次材料として新規ポリマーの探索も並行して開始し、高い移動度を得ている。本ポリマーは合成が面倒であることや高移動度を得るために高温での熱処理が必要なことなど、未だ問題点はあるものの、二次材料探索のための手がかりとして有力である。

なお、これまでに開発した半導体ポリマーやそのビルディングブロックとなる共役系分子、さらには重合時に用いる反応前駆体などはトランジスタ用途以外のポリマーやオリゴマーを合成する際にも応用可能な技術である。

(3) プロセス技術

1) 3D トランジスタ

本研究開発課題では、オール塗布型有機フレキシブルディスプレイを実現するために、参画企業によるポリマー発光素子を駆動するアクティブマトリックス TFT の開発を計画している。通常の 2 次元型有機 TFT では、特に低ゲートバイアス時の電流密度がポリマー EL 素子を発光させるに必ずしも十分でない。そこで、その数十倍もの電流密度を実現するた

めの 3D 有機トランジスタを参加大学において開発し、参画企業に技術移転を行った。実際に、参画企業製ポリマーEL 素子を発光させるのに必要な電流密度を達成した。

すでに参画企業では、アクティブマトリックス駆動に望ましい、飽和電流特性が得られるように絶縁層を極薄化するなどの試みに成功している。一方、参加大学では、さらに進んだプロセスの開発について成果を得た。即ち、市場への導入をより容易にするため、3D 有機トランジスタ構造をプラスチック基板上に作製する手法の開発、さらにはインプリント法によって一度に大量に 3D 構造を作製するプロセスの開発にも成功した。

2) プッシュコート

本研究開発課題の核となる課題は、高性能なポリマー半導体材料を用いた TFT を印刷法により製造し、かつ集積化する技術を開発することにある。ポリマー半導体を印刷する方法としてこれまで各種提案がなされてきたが、いずれも大面積化・均一性・半導体性能・材料ロス等の点で課題があった。中でも TFT の性能と安定性を向上する上で有効なものは水性の高いゲート絶縁膜上では、表面が液体を強くはじくため、従来の塗布法や印刷法を用いてポリマー半導体を製膜することはきわめて困難であった。

本研究開発では、ポリマー半導体溶液を基板表面に均一に濡れ広がらせ、かつ得られた溶液層から溶媒をゆっくりと抽出し製膜するための新技術として、異なる物性を有する 3 層構造のシリコンゴムスタンプを用いるプッシュコート法を開発した。

このスタンプは溶剤をゆっくり吸収し、表面付近に保持する性質を持つとともに、溶剤吸収に伴う歪みが小さいという特徴を持つ。これによりは水性の高い表面でも材料のロスをほぼゼロに抑えつつ、条件（温度・時間・溶剤種類など）をさまざまに変えた製膜が可能であり、かつ長時間にわたる製膜後もスタンプを完全にはく離でき、スタンプの繰り返し使用も可能になるなど、大面積・均質・高性能なポリマー半導体薄膜を簡易に製造する上できわめて有効なことが分かった。

(4) 解析技術

ポリマー半導体材料を用いた TFT の性能最適化と安定化のためには、半導体層内のキャリア輸送機構を微視的に明らかにし、輸送のボトルネックとなる原因を捉えることが必要である。しかしこれら TFT の評価の多くは電気的特性に限られているのが現状であり、輸送機構の研究は世界的にも未開拓である。本研究開発課題では、ゲート電圧によって TFT 内に蓄えたキャリアを鋭敏に捉えることが可能な、電界誘起電子スピン共鳴 (ESR) を駆使した輸送機構の研究を実施した。これによりポリマー半導体層内のキャリア輸送の主要なボトルネックの原因の定量的な評価が可能な、以下の二つの手法の確立に成功した。

第 1 に、ポリマー半導体層内の伝導性の高い微結晶 (グレイン) どうしをつなぐ粒界のポテンシャル障壁の大きさを定量的に評価する手法を開発した。基板上でポリマー鎖が側鎖を基板に向けて配向する一軸配向性と、これに由来した ESR の g 値の異方性を活用し、

ESR スペクトルの各磁場角度における温度依存性を詳細に測定することにより、グレイン間のホッピング運動による尖鋭化効果を捉え、その解析をもとにグレイン間障壁の大きさを評価することに成功した。

第2に、低温でキャリアがグレイン内トラップに全て凍結された際の電子スピン共鳴スペクトルをもとに、グレイン内トラップ状態の空間広がりや状態密度分布を求める解析法を開発した。特にスペクトル分解のための確率的最適化 (SOM) 法において、ノイズレベルと解析妥当性の関係を詳細に検討し、解析手法として確立した。

(5) 融合

ポリマー半導体は結晶シリコンや IGZO などの酸化物半導体と比較して、移動度が低い傾向にあるため、アプリケーションがローエンドに限定されていた。しかしながら、本課題では高い移動度を示すポリマー半導体が開発されつつある。同時にポリマー半導体膜の解析技術の進歩により、キャリア輸送のボトルネック解明の目処が立ち、材料設計指針の観点から強力なツールとなってくると考えている。

また、塗布性に優れるポリマー半導体にプッシュコート法で成膜する技術を適用すれば、結晶性や配向性の高い薄膜が得られ高移動度化が期待できる。プッシュコート法に適したポリマー半導体の設計なども重要になってくる。一方、3D トランジスタは短チャネル化が容易なため、結果的にポリマー半導体の移動度を大きく向上させたのと同じ効果が期待できる。従来の 2D (二次元型) トランジスタにプッシュコートを適用した技術と並行して開発することにより、より幅広いアプリケーションへの展開も可能となる。

(6) まとめ

本課題は 4 研究機関のもつ、材料、プロセス、解析に関するシーズの融合によるフレキシブルアクティブマトリックス (AM) バックプレーンの開発とその有機 EL ディスプレイへの応用が最終目的である。ステージ I では各機関のシーズのブラッシュアップを中心に研究を進めた。

8. 2 研究開発課題名（早瀬グループ）

【フレキシブル浮遊電極をコア技術とする新太陽電池分野の創成】

（1）研究の概要および成果のまとめ

2009 年度の研究開始以降、本研究開発課題は 2 機関の協同により推進している。すなわち、高コストである透明導電膜を使わない色素増感太陽電池(TCO-less DSSC)を目指し、ポーラスチタニア自立浮遊電極に関する研究開発を行なった。平板型 TCO-less DSSC の構造は④プラスチック基板（透明導電膜なし）、③浮遊電極（メッシュ金属+チタニア/色素層）、②ゲル電解質シート、①Ti シートからなる。③浮遊電極は自立チタニア膜であるため、これらの層を積層するだけで色素増感太陽電池が構成できる。④プラスチック基板から入射した光は、③浮遊電極のチタニア/色素層で電荷分離され、電子はメッシュ金属に集電される。外部回路を通った電子は対極の①Ti シートに到達し、②ゲル電解質シートのヨウ素に移動する。ヨウ素イオンは②ゲル電解質シート、メッシュ電極を通過し、③浮遊電極のチタニア/色素層に戻る。すべての電極がフレキシブルであるため、ロールツーロールプロセスの適用が期待できる。

浮遊電極太陽電池の展開として、円筒型の色素増感太陽電池（DSSC）を開発した。DSSC を大型化する場合、セルの封止面積は平板型 DSSC では比例的に増加することに対し、円筒型 DSSC は一定となり、大型化における封止性が有利である特徴を有する。また、円筒型 DSSC は光の入射方向や角度の影響を受けにくく、発電に有利であると考えられることから開発に着手した。

ステージⅠの成果として、課題開始時の目標設定をステージⅠ実施期間中に前倒し、目標アップ、新規取り組み課題の追加を行い取り組んだ。特に耐久性向上に注力し、ステージⅡ目標を前倒して取り組み、中型セルにて数百日間、効率を維持している、改良したセルで長期間効率保持できることを確認した。

新たに追加した検討項目として円筒型セルの発電性能確認を行い、ソーラーシミュレータの擬似太陽光による出力に比べ、日射での出力は大きくなることを確認した。

（2）高効率化

以下の 3 要素技術を開発し高効率化を行った。

- ① 多孔質半導体層の薄膜化
- ② 電解質層の薄膜化
- ③ 作用極とガラス内壁の密着性

（3）屋外試験

耐久性が得られたため、次に屋外での実際の日射による円筒型 DSSC の発電特性を調べた。

実際の日射では擬似太陽光による発電量よりも多く発電することが確認でき、低光量下

では、垂直設置でも出力が低下しにくいことを確認した。これらから、円筒型 DSSC は実際の日射で多く発電する特性があることを確認できた。

（４）円筒型 DSSC の長所と事業イメージ

有機太陽電池では透明導電膜の使用と封止に大きなコストがかかる。色素増感太陽電池の低コストプロセスのメリットを最大限に出せる構造は蛍光灯状の形状をした円筒端部を封止した円筒型色素増感太陽電池と考えられる。

円筒型の浮遊電極太陽電池利点は、発電量が多いこと、円筒形状によりモジュールが屋外での風圧の影響を受けにくく架台の軽量化が可能であり、低コスト化が期待できる特徴を有する。

円筒型 DSSC は垂直面においても良好な発電出力が得られるという予備的結果を得ている。結晶 Si 系太陽電池垂直面への設置はその重さのため行われず、垂直面設置用太陽電池は競合がない新たな市場と予想され、まず円筒型 DSSC の垂直面への設置を開拓する。

8. 3 研究開発課題（城戸グループ）

【印刷で製造するフレキシブル有機EL照明の開発】

（1）研究開発成果の概要

2009年度の研究開始以降、本研究開発課題は2機関の協同により推進している。

様々な可溶性塗布材料を合成し、溶解性と製膜性、エネルギー順位、物性パラメータとの関係を見いだした。その結果、緑・赤色発光層を塗布法にて、青色発光層を蒸着法にて成膜した白色素子において、ステージⅠの目標値を達成している。

また、電極以外の層を塗布積層製膜したマルチフォトンエミッション（MPE）型の作製に成功し、初期段階ながら全層塗布MPE素子の原理実証ができた。

（2）技術のブレークスルー

1）材料および塗布型リン光有機EL素子

塗布型リン光有機EL素子において、様々な可溶性塗布材料を合成し、溶解性と成膜性に関し検討し、塗布時に層間で混ざり合わないために、熱架橋型ホスト材料を設計・合成し、効果を確認した。また、同目的で、溶剤の選定を行った。さらに、輸送材料などのエネルギー準位、電荷輸送性などの熱・光電子物性パラメータについて検討し、効率と寿命との関係を見いだした。緑・赤色発光層を塗布法にて、青色発光層を蒸着法にて成膜した白色素子において、長時間の輝度半減寿命を達成している。

2）塗布MPE素子

電極以外の層を塗布法により成膜した白色有機EL素子の作成に向けて、高効率・長寿命化を達成する上で必須であるマルチフォトンエミッション型有機EL素子に用いられる電荷発生層の塗布積層成膜に一部成功している。塗布積層マルチフォトンエミッション（MPE）型有機EL素子を作製し、高輝度領域においてではあるが2つのELユニットの塗布積層により高い電流効率(cd/A)を得て、塗布MPE素子の原理実証に成功した。

3）塗布型電子注入層材料

塗布型素子において、これまで発光層は塗布により成膜されるものの、発光層と陰極界面に挿入する電子注入層は、大気中で不安定なカルシウムのような金属や、フッ化リチウムのような絶縁物を極薄膜で真空蒸着により成膜されるのが一般的であり、量産に向かなかったが、塗布できる新たな電子注入層材料の開発に成功した。

4）大面積塗布

大面積塗布法として各種塗布法の中からダイコート法を選定し、本成果を3層塗布積層した塗布と蒸着併用型白色パネル作製に展開し、発光エリア数十mm²にて小さい面内輝度ばらつきを達成し、大面積成膜への展開を一部技術実証している。

(3) 製品イメージ

1) 競合技術の差別化が明確となる製品イメージ

競合技術であるLED照明の普及が先行しているが、同製品は元来、指向性の強い点光源であるため、拡散性の面光源たる有機EL照明とは、用途により棲み分けが進むと考えられる。有機EL照明は、薄型・フラット・軽量・フレキシブル・UVレスといった、LEDでは容易に達成できない付加価値を実現できる。特に、「空間を演出する」といったこれまでにない使い方で、照明の世界を拡大、発展させる可能性を秘めている。

2) 競合他社製品との差別化が明確となる製品イメージ

サンプル出荷、少量産が始まった競合他社の有機EL照明は、ガラス基板上に蒸着プロセスで形成されている。本研究開発課題が目指す全印刷フレキシブル有機EL照明はこれとは異なり、真空プロセスを用いない高タクトなプロセスで生産できるので、エネルギー負荷の小さい、省フットプリントで材料使用効率の高い製造ラインを実現し、原理的に安価な製品を市場に提供できる。

3) ターゲット市場

まず、足元のダウンライト、家具、陳列棚などの狭いスペース内の照明、色や輝度に変化するムード照明などの特殊用途から市場が形成され始め、その普及段階においては、車両、店舗、一般建築物の天井や壁の照明、あるいはその特徴を活かして、鏡や窓と組合せた照明などに用いられていくだろう。さらに、フレキシブル化が実現することにより、ガードレールや円柱上のサイン、車両の曲面上に設置される照明など、これまでにない用途・市場を開拓することになると期待される。

4) S-Iノベ終了後の製品イメージ、事業化戦略

最終的に、一般照明としての使用に耐え、市場に普及し易い安価な高輝度・長寿命・全印刷プロセスで形成したフレキシブルな白色有機EL照明の量産を目指す。

(4) 他事業への波及効果

本研究開発課題で開発する塗布材料・成膜法等の要素技術は、有機EL照明のために限定されない、有機エレクトロニクス製品全般の製造に必要な普遍的なものである。開発した各要素技術や設備リソースを水平展開することにより、印刷で製造するフレキシブル太陽電池、フレキシブルディスプレイ、フレキシブルセンサーなどの実用化に応用することが可能である。

8. 4 研究開発課題名（中村グループ）

【塗布型長寿命有機太陽電池の創出と実用化に向けた基盤技術開発】

（1）研究開発成果

1）研究開発成果の概要

2009 年度の研究開始以降、本研究開発課題は 3 機関の協同により推進している。

ERATO プロジェクトで開発した、ベンゾボルフィリンプレキューサーと C60 誘導体からなる塗布膜を熱変換し、層分離構造による有機薄膜太陽電池を基礎に、適切なエネルギー状態を有する半導体材料を用いて、適切な相分離構造を示すような材料の組み合わせ及びプロセス条件を開発し、さらに適切な素子構造を持たせることにより、目標を大幅に上回る当時の世界最高の変換効率を示す有機太陽電池を開発することに成功した。また、この素子の光学シミュレーションの結果から、活性層が非常に有効に光を吸収して利用されていることを明らかにした。さらに、タンデム素子開発への基礎的検討を実施した。また、これらの基盤としてフラーレン化合物ライブラリーの構築、工業的精製技術を確立した。また、ロールツーロール法（R 2 R）による有機薄膜太陽電池製造プロセスをイメージして、研究所内に、R 2 R 設備を構築し、R 2 R サンプルの試作などを実施した。

2）技術のブレークスルー

参画機関では、適切なエネルギー状態を有する半導体材料を用いて、適切な相分離構造を示すような材料の組み合わせ及びプロセス条件を開発し、さらに適切な素子構造を持たせることにより、単独セルで世界最高の変換効率を示す有機太陽電池を開発することに成功した。

3）産学連携による製造技術のサイエンス基盤の確立

①有機半導体材料ライブラリーの構築

優れた特性をもつジヒドロメタノフラーレン誘導体等の高効率合成を開発し、新規フラーレン誘導体を合成した。これらをアクセプター材料として用いることにより、高い開放電圧とエネルギー変換効率を示すことを実証した。

②高純度有機半導体材料の製造法開発

参画機関で開発された新規フラーレン誘導体および既存のフラーレン誘導体について拡大合成を行い、高純度のフラーレン誘導体を大規模で製造に成功した。これは、参画企業での素子、プロセス開発に利用されると共に、一部は参画大学における素子特性評価のために提供され、産学協同で共通の材料を使用できるようになり、研究効率の向上につながった。

一方、参画企業が保有するスケールアップが可能な精製方法について検討を行った結果、工業的な精製技術として量産化に適応できることを明らかにした。

フラーレン誘導体は、有機薄膜太陽電池実用化の鍵となる重要な化合物であるが、効果的な学連携により、短期間で工業的な製造法の基礎技術を確立できた。

(2) 開発品の製品イメージ

1) 製品イメージ

再生可能エネルギーとしての太陽電池の応用分野は、従来、結晶 Si 太陽電池が開拓してきた屋外用途（住宅用小規模発電）が主流であったが、今後のエネルギーミックスの見直しの中で、再生可能エネルギーの比重が増え、系統連係からの電力のみならず、スマートコミュニティ、スマートビル、電気自動車等の地産地消の電力供給の必要性が高まっていく。電力の地産地消、省エネ、CO₂ 削減の世界的な潮流に沿って、建材（屋内用途含）、電気自動車、学校、工場、商業施設への応用が進展することが予想される。

これらの新規な応用分野では、従来の結晶 Si 太陽電池にはない特性が要求される。すなわち、フレキシブル、軽量、シースルー、デザイン性、低コストである。さらに、エネルギーペイバックタイム（EPT）の観点も持続可能な社会への貢献という点で重要な側面である。

有機薄膜太陽電池の応用としては、従来の結晶 Si 太陽電池でカバーされない領域、新規な市場を創出することを起点として、素子、モジュールの性能向上とともに市場規模を拡大していくシナリオを想定する。

2) 競合技術との差別化

塗布型有機太陽電池はその特徴である軽量、フレキシブル、3次元曲面追随性等の特長を生かし、色素増感太陽電池等では耐久性の点で実現が難しいプラスチック基板でのフレキシブルな分野への用途展開ができる。

9. 総合所見

本テーマの領域は競合する製品が既に存在している。有機エレクトロニクス分野は、それにしか実現できないニッチな産業から出発し、グローバルな産業へと発展するポテンシャルを有している。そのための産業創出の核となる技術の確立へと着実に進んでいる。

課題の選考は重要となる課題をしっかりと選定し、世界をリードする日本の研究の第一人者、事業推進企業を確保している。

ステージⅡからステージⅢへと事業化のステージが上がるに従い、現在の事業推進企業だけでは実現できない課題が見えてくる。また、特性の骨格となる本丸技術だけでは事業化は困難であり、基板フィルム、封止材料、電極材料など周辺技術が益々重要となる。これらの周辺技術の情報共有化、4課題間での協力関係を実現させたい。既にステージⅠにおいて課題の抽出を終えている。

エレクトロニクス分野における韓国、台湾、中国勢の台頭の中で、日本の科学技術のイ

ノベーションには、特に、「その地の需要に応じた新たな先端科学技術の開発」が求められている。このような情勢において、本テーマの重要性が益々高まっている。

本テーマにおいては、

①学問的に高度な科学技術、材料技術

②先端技術を駆使した高度なプロセス技術

の確立を前提としながらも、世の中の需要をしっかりと見据えた研究開発のマネジメントをして行きたい。

ステージⅠにおいて、そのための産業創出の核となる技術の確立へと着実に進んでいる。

谷口は、株式会社日立製作所勤務していた1970年代より、一貫してエレクトロニクス産業における有機、プラスチック材料の研究開発を続けてきている。1984年には「有機エレクトロニクス」の名称を提唱して、各種学会などの定着してきている。そういう意味でも本テーマのPOとして、この分野の核となる技術の事業化に携わることが出来て大変幸せである。

進展が著しいこの分野で、予断を許さず、計画の前倒しを進めて邁進したい。