



Title	An Investigation of Molecular Designs of Donor-Acceptor Copolymers Incorporating Benzotrithiophene and Benzobisthiazole Units Toward High-Performance Organic Photovoltaics
Author(s)	Al-Naamani, Eman
Citation	大阪大学, 2018, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/69543
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

Abstract of Thesis

Name (Al Naamani Eman Rashid Said)	
Title	An Investigation of Molecular Designs of Donor-Acceptor Copolymers Incorporating Benzotrithiophene and Benzobisthiazole Units Toward High-Performance Organic Photovoltaics 有機太陽電池の高効率化を指向したベンゾトリチオフェンあるいはベンゾビスチアゾールを有するドナー・アクセプター共重合体の分子設計に関する研究
Abstract of Thesis Proposition belonging to this thesis is a design, synthesis, and characterization of new donor-acceptor (D-A) copolymers composed of benzotrithiophene (BTT) or benzobisthiazole (BBT), which is intended to improve the efficiency of organic photovoltaics. From the device parameters, charge dynamics, and energy-loss process, a coarse bulk heterojunction rather than bulk recombination was identified as the main cause for the low current density in BTT copolymers (<i>vice versa</i> in BBT copolymers). Moreover, the D-A manipulation in BTT polymers resulted in a cascade of HOMO levels and allowed for investigating the major influence of charge transfer state in the device performance. On the other hand, alkyl side chain engineering in BBT polymers revealed importance in determining the charge transport mechanism in a BHJ to a similar extent of the design of π-conjugated backbone. The study resulted in a significantly improved power conversion efficiency of BBT polymers bearing different length alkyl chains. Therefore, this work illustrates how the design of polymer backbone and side alkyl chains affects the energetics, charge transport associated with mobility, and morphology as well as the polymer orientation.	

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (Eman Rashid Said Al-Naamani)			
論文審査担当者		(職)	氏 名
	主 査	准教授	佐伯 昭紀
	副 査	教授	木田 敏之
	副 査	教授	真嶋 哲朗
	副 査	教授	安蘇 芳雄
	副 査	教授	生越 専介
	副 査	教授	神戸 宣明
	副 査	教授	芝田 育也
	副 査	教授	茶谷 直人
	副 査	教授	鷹巣 守
	副 査	教授	三浦 雅博
	副 査	教授	安田 誠
論文審査の結果の要旨			
本論文は、有機太陽電池の高効率化を指向し、ベンゾトリチオフェン (BTT) あるいはベンゾビスチアゾール (BBT) を有するドナー・アクセプター共重合体の分子設計と基礎物性評価に関する研究をまとめたものである。BTT を π 共役ドナー基とし、3 種類の π 共役アクセプター基と組み合わせた新規共重合体を合成し、可溶性フラーレン誘導体 (PCBM) との混合膜の光電気物性および太陽電池素子性能の評価を行った。また、それぞれの太陽電池素子の暗電流解析から、電圧損失過程の詳細を明らかにした。さらなる高効率を目指して、上記の共重合体の中で最高効率を得られたナフタレンビスチアジアゾール (NTz) をアクセプター基とし、BBT をドナー基とする共重合体を設計し、一連の物性・素子評価を行った。側鎖アルキル基の長さや形 (直鎖・分岐) を変えることで高分子膜の結晶性と配向、さらには PCBM との混合膜形態が大きく変化することを見出した。変換効率は 6.6% まで向上させることに成功し、電荷ダイナミクスや膜形態観察結果と併せて特性を議論した。得られた主な結果を次に示す。 (1) BTT をドナー基、ピリジノチアゾール (PT)・フルオロチアゾール (FT)・NTz をアクセプター基とする 3 種類の共重合体を設計・合成し、光吸収・電気化学・分子量に関する基礎物性評価を行った。また、時間分解マイクロ波伝導度 (TRMC) 法を用いて共重合体と PCBM との混合比率・溶媒の種類・熱アニールの効果を検討し、BTT-NTz 共重合体において最高効率 2.8% が得られた。 (2) 上記 3 種類の共重合体の太陽電池素子において、開放電圧が大きく異なる要因を検討するため、室温から低温 (100 K) での暗電流測定と Shockley ダイオードモデルによる解析を行った。その結果、開放電圧は暗電流因子よりも電荷移動状態のエネルギー準位が支配的であることを明らかにし、損失成分を定量することができた。 (3) 以上の結果を基に BBT をドナー基、NTz をアクセプター基とし、2 種類の側鎖アルキルの長さや形の異なる 6 種類の新規共重合体を合成した。2 次元微小角 X 線回折 (2D-GIXRD) の結果から、側鎖に応じて高分子の結晶性と基板上的主鎖配向、さらに PCBM との混合膜の形態が大きく変化した。直鎖・分岐アルキル鎖の BBT-NTz 共重合体で最高変換効率 6.6% が得られ、他の共重合体の変換効率と TRMC で得られた過渡伝導度との相関を見出した。アルキル鎖によって膜形態や素子性能が異なる点は、今後の分子設計における指標となる。 以上のように、本論文は BTT あるいは BBT を有するドナー・アクセプター共重合体の設計と合成、および太陽電池素子評価と暗電流解析から高分子骨格と光電変換機能の関係を明らかにすると共に、TRMC 法による電荷ダイナミクスや 2D-GIXRD による高分子配向から構造―機能の相関に基づく分子設計指針を提案するものである。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。			