# (12)公表特許公報(A)

### (19)日本国特許庁(JP)

## (11)公表番号 **特表**2023-510973 (P2023-510973A)

(43)公表日 令和5年3月15日(2023.3.15)

(51)国際特許分類	FI			テーマコード(参考)
H01L 31/055(2014.01)	H 0 1 L	31/04	622	5 F 1 5 1
C09K 11/06 (2006.01)	C 0 9 K	11/06		

		審査	<b>查請</b> 求	未請求	予備審査請求 未請求 (全67頁)
(21)出願番号	特願2022-544125(P2022-544125)		(71)出願	人	502243376
(86)(22)出願日	令和3年1月19日(2021.1.19)				ボード オブ トラスティーズ オブ ミシ
(85)翻訳文提出日	令和4年9月16日(2022.9.16)				ガン ステート ユニバーシティ
(86)国際出願番号	PCT/US2021/013946				アメリカ合衆国 ミシガン州 48824
(87)国際公開番号	WO2021/150504				イースト・ランシング
(87)国際公開日	令和3年7月29日(2021.7.29)		(74)代珥	赵	110000338
(31)優先権主張番号	62/963,455				弁理士法人 HARAKENZO WOR
(32)優先日	令和2年1月20日(2020.1.20)				LD PATENT & TRADEMA
(33)優先権主張国・対	也域又は機関				RK
	米国(US)		(72)発明	諸	ルント , サード , リチャード アール .
(81)指定国・地域	AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA				アメリカ合衆国,48895 ミシガン
	,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(				州,ウィリアムストン,トロッターズ
	AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,A				レーン 1400
	T,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR		(72)発明	諸	ヤン , チェンチェン
	,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,				アメリカ合衆国,48842 ミシガン
	最終頁に続く				最終頁に続く

(54)【発明の名称】 高性能近赤外取込み透明発光型太陽光集光器

#### (57)【要約】

透明発光型太陽光集光器(TLSC)(10)を提供 する。TLSCは、発光団、および、発光団(26)か ら発せられる光を導く導波路(12)を含む。TLSC の光利用効率(LUE)は約1以上である。



Fig. 1B

【特許請求の範囲】 【請求項1】 透明発光型太陽光集光器(TLSC)であって、 発光団、および、 前記発光団から発せられる光を導く導波路、を含み、 TLSCの光利用効率(LUE)が約1以上である、TLSC。 【請求項2】 平均可視光透過率(AVT)が約50%以上であり、 前記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である、請求項1 に記載のTLSC。 10 【請求項3】 電力変換効率(PСЕ)が約1%以上であり、 │ b<sup>\*</sup> │ 値が約25以下である、請求項1に記載のTLSC。 【請求項4】 平均可視光透過率(AVT)が約60%以上である、請求項1に記載のTLSC。 【請求項5】 前記発光団が、前記導波路内に埋め込まれている、前記導波路上に直接配置されている 、または、前記導波路上に配置されているフィルムに備えられている、請求項1に記載の TLSC。 【請求項6】 20 前記導波路に作動可能に連結されている光起電構成要素をさらに含む、請求項1に記載 **Ø**TLSC. 【請求項7】 前記発光団の最大吸収極大および最大ピーク発光が約650nm以上である、請求項1 に記載のTLSC。 【請求項8】 ヘイズが約10%以下である、請求項7に記載のTLSC。 【請求項9】 前記発光団が、非フラーレンアクセプタ、ボロン-ジピロメテン(BODIPY)、ま たはそれらの組合せである、請求項7に記載のTLSC。 30 【請求項10】 前記発光団が前記非フラーレンアクセプタであり、 前記非フラーレンアクセプタが、2,2'-[[4,4,11,11-テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 1 1 - ジヒドロチエノ[2 ' , 3 ' : 4 , 5 ] チエノ[2 , 3 - d ] チエノ [ 2 ' ' ' ' , 3 ' ' ' ' : 4 ' ' ' , 5 ' ' ' ] チエノ [ 2 ' ' ' , 3 ' ' ' : 4 ' [2'',3'':4',5']チエノ[2',3':4,5]チエノ[3,2-b]ピラン-2 , 9 - ジイル ] ビス [ メチリジン( 5 , 6 - ジフルオロ ) ( C O i 8 D F I C )、 3 , 9 - ビス(2 - メチレン - (3 - (1,1 - ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5,5 , 3' , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - ジチエノ[2 , 3 - d:2 ' - d '] - s - インダセノ[1 , 2 - b : 5 , 6 - b '] ジチオフェン)(ITIC)、 2 40 , 2 ' - [ [ 4 , 4 , 9 , 9 - テトラキス ( 4 - ヘキシルフェニル ) - 4 , 9 - ジヒドロ - s - インダセノ[1,2-b:5,6-b`]ジチオフェン-2,7-ジイル]ビス[ [4 - [(2 - エチルヘキシル)オキシ] - 5 , 2 - チオフェンジイル]メチリジン(5) , 6 - ジフルオロ - 3 - オキソ - 1 H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン)]]ビ ス[プロパンジニトリル](IEICO-4F)、またはそれらの組合せである、請求項 9に記載のTLSC。 【請求項11】 第2の発光団、および、 前 記 第 2 の 発 光 団 か ら 発 せ ら れ る 光 を 導 く 第 2 の 導 波 路 、 を さ ら に 含 み 、

前記第2の導波路が前記導波路と隣接して配置されることによって、前記第2の導波路 50

を通過する光を前記導波路が受容し、 空気によって満たされている、または、視覚的に透明である材料によって満たされてい るギャップによって前記導波路と前記第2の導波路とが分離されている、請求項7に記載 **Ø**TLSC. 【請求項12】 前記視覚的に透明である材料の屈折率(n)が約1.3以下である、請求項11に記載 のTLSC。 【請求項13】 前記第2の発光団の量子収率(QY)が約50%以上である、請求項11に記載のTL SC. 10 【請求項14】 前記第2の発光団は、 最大吸収極大が約450nm以下であり、 最大ピーク発光が約650nm以上である、請求項11に記載のTLSC。 【請求項15】 前 記 第 2 の 発 光 団 が ナ ノ ク ラ ス タ ー を 含 む 、 請 求 項 1 4 に 記 載 の T L S C 。 【請求項16】 入射光がまず前記第2の導波路を通過してから前記第1の導波路を通過するように、前 記導波路および前記第2の導波路が構成されている、請求項14に記載のTLSC。 【請求項17】 20 透明発光型太陽光集光器(TLSC)であって、 発光団、および、 前記発光団から発せられる光を導く導波路、を含み、 TLSCの電力変換効率(PCE)が約1%以上であり、 | b<sup>\*</sup> | 値が約25以下である、TLSC。 【請求項18】 平均可視光透過率が約50%以上であり、 前記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である、請求項1 7に記載のTLSC。 【請求項19】 30 光利用効率(LUE)が約1以上である、請求項17に記載のTLSC。 【請求項20】 平均可視光透過率(AVT)が約50%以上である、請求項17に記載のTLSC。 【請求項21】 前記発光団が、前記導波路内に埋め込まれている、前記導波路上に直接配置されている 、または、前記導波路上に配置されているフィルムに備えられている、請求項17に記載 **の**TLSC。 【請求項22】 前記導波路に作動可能に連結されている光起電構成要素をさらに含む、請求項17に記 載のTLSC。 40 【請求項23】 前 記 発 光 団 の 最 大 吸 収 極 大 お よ び 最 大 ピ ー ク 発 光 が 約 6 5 0 n m 以 上 で あ る 、 請 求 項 1 7 に記載のTLSC。 【請求項24】 ヘイズが約10%以下である、請求項23に記載のTLSC。 【請求項25】 前記発光団が、非フラーレンアクセプタ、ボロン-ジピロメテン(BODIPY)、ま たはそれらの組合せである、請求項23に記載のTLSC。 【請求項26】 前記発光団が前記非フラーレンアクセプタであり、

(3)

10

20

30

40

前記非フラーレンアクセプタが、COi8DFIC、3,9-ビス(2-メチレン-( 3 - (1,1-ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5,5,11,11- テトラキス (4 - ヘキシルフェニル) - ジチエノ「2,3 - d:2',3'- d'] - s - インダセノ [1,2-b:5,6-b'] ジチオフェン) (ITIC)、2,2'-[[4,4,9, 9 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 9 - ジヒドロ - s - インダセノ [ 1 , 2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン - 2 , 7 - ジイル ] ビス「「4 - 「(2 - エチルヘキ シル)オキシ]-5,2-チオフェンジイル]メチリジン(5,6-ジフルオロ-3-オ **キ**ソ - 1 H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン ) ] ] ビス [ プロパンジニトリル ] (IEICO-4F)、またはそれらの組合せである、請求項25に記載のTLSC。 【請求項27】 第2の発光団、および、 前 記 第 2 の 発 光 団 か ら 発 せ ら れ る 光 を 導 く 第 2 の 導 波 路 、 を さ ら に 含 み 、 前記 第 2 の 導 波 路 が 前 記 導 波 路 と 隣 接 し て 配 置 さ れ る こ と に よ っ て 、 前 記 第 2 の 導 波 路 を通過する光を前記導波路が受容し、 空気によって満たされている、または、視覚的に透明である材料によって満たされてい るギャップによって前記導波路と前記第2の導波路とが分離されている、請求項23に記 載のTLSC。 【請求項28】 前記視覚的に透明である材料の屈折率(n)が約1.3以下である、請求項27に記載 **の**TLSC。 【請求項29】 前 記 第 2 の 発 光 団 の 量 子 収 率 ( Q Y ) が 約 5 0 % 以 上 で あ る 、 請 求 項 2 7 に 記 載 の T L SC. 【請求項30】 前記第2の発光団は、 最大吸収極大が約450nm以下であり、 最大ピーク発光が約650nm以上である、請求項27に記載のTLSC。 【請求項31】 前記第2の発光団がナノクラスターを含む、請求項30に記載のTLSC。 【請求項32】 入射 光 が ま ず 前 記 第 2 の 導 波 路 を 通 過 し て か ら 前 記 第 1 の 導 波 路 を 通 過 す る よ う に 、 前 記導波路および前記第2の導波路が構成されている、請求項30に記載のTLSC。 【請求項33】 最 大 吸 収 極 大 お よ び 最 大 ピ ー ク 発 光 が 共 に 約 6 5 0 n m 以 上 で あ る ポ リ チ オ フ ェ ン を 含 む発光団と、 前記発光団から発せられる光を導く導波路と、を含む、透明発光型太陽光集光器(TL SC) 【請求項34】 光利用効率(LUE)が約1以上であり、 平均可視光透過率(AVT)が約50%以上であり、 前記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である、請求項3 3に記載のTLSC。 【請求項35】 電力変換効率(PCE)が約1%以上であり、 | b <sup>\*</sup> | 値が約25以下である、請求項33に記載のTLSC。 【請求項36】 前記発光団が、前記導波路内に埋め込まれている、前記導波路上に直接配置されている 、または、前記導波路上に配置されているフィルムに備えられている、請求項33に記載

(4)

のTLSC。

【請求項37】

前記導波路に作動可能に連結されている光起電構成要素をさらに含む、請求項33に記 載のTLSC。 【請求項38】 ヘイズが約10%以下である、請求項33に記載のTLSC。 【請求項39】 前記ポリチオフェンが、 2 , 2 ' - 「 「 4 , 4 , 1 1 , 1 1 - テトラキス( 4 - ヘキシ ルフェニル) - 4 , 1 1 - ジヒドロチエノ [ 2 ' , 3 ' : 4 , 5 ] チエノ [ 2 , 3 - d ] チ エノ「2'''' , 3 ' ' ' ' : 4 ' ' ' , 5 ' ' ' ] チエノ[2 ' ' ' , 3 ' ' ' : 4 ' ' , 5 ' '':4'.5 ']チエノ「2'.3 ':4.5 ]チエノ「3.2 - b ]ピラン-2 .9 - ジイ ル]ビス [ メチリジン ( 5 , 6 - ジフルオロ ) ( C O <sub>i</sub> 8 D F I C ) 、 3 , 9 - ビス ( 2 10 - メチレン - ( 3 - ( 1 , 1 - ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5 , 5 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - ジチエノ「2 , 3 - d : 2 ' , 3 ' - d ' ] s - インダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン)(ITIC)、2,2'-[ 「 4 , 4 , 9 , 9 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 9 - ジヒドロ - s - イン ダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン-2,7-ジイル]ビス[[4-[( 2 - エチルヘキシル)オキシ] - 5 , 2 - チオフェンジイル]メチリジン(5 , 6 - ジフ ルオロ - 3 - オキソ - 1 H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン ) ] ] ビス [ プロパ ンジニトリル](IEICO-4F)、またはそれらの組合せである、請求項33に記載 **の**TLSC。 【請求項40】 20 最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650nm以上であるボロン - ジピロメテ ン<br />
(BODIPY)を含む第2の発光団と、 前記発光団および前記第2の発光団の両方から発せられる光を導く導波路と、をさらに 含む、請求項33に記載のTLSC。 【請求項41】 第2の発光団、および、 前 記 第 2 の 発 光 団 か ら 発 せ ら れ る 光 を 導 く 第 2 の 導 波 路 、 を さ ら に 含 み 、 前記 第 2 の 導 波 路 が 前 記 導 波 路 と 隣 接 し て 配 置 さ れ る こ と に よ っ て 、 前 記 第 2 の 導 波 路 を通過する光を前記導波路が受容し、 空気層または視覚的に透明である材料を含む層によって前記導波路と前記第2の導波路 30 とが分離されている、請求項33に記載のTLSC。 【請求項42】 前記視覚的に透明である材料の屈折率(n)が約1.3以下である、請求項41に記載 **の**ΤLSC。 【請求項43】 前記 第 2 の 発 光 団 の 量 子 収 率 ( Q Y ) が 約 5 0 % 以 上 で あ る 、 請 求 項 4 1 に 記 載 の T L SC. 【請求項44】 前記第2の発光団は、 最大吸収極大が約450nm以下であり、 40 最大ピーク発光が約650nm以上である、請求項41に記載のTLSC。 【請求項45】 前記第2の発光団がナノクラスターを含む、請求項44に記載のTLSC。 【請求項46】 入射光がまず前記第2の導波路を通過してから前記第1の導波路を通過するように、前 記導波路および前記第2の導波路が構成されている、請求項41に記載のTLSC。 【請求項47】 最 大 吸 収 極 大 お よ び 最 大 ピ ー ク 発 光 が 共 に 約 6 5 0 n m 以 上 で あ る ボ ロ ン - ジ ピ ロ メ テ ン<br />
(<br />
B<br />
O<br />
D<br />
I<br />
P<br />
Y<br />
)<br />
を含む第3の発光団と、

前記発光団および前記第3の発光団の両方から発せられる光を導く導波路と、をさらに 50

含む、請求項41に記載のTLSC。

【請求項48】

最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650nm以上であるボロン - ジピロメテン(BODIPY)を含む発光団と、

前記発光団から発せられる光を導く導波路と、を含む、透明発光型太陽光集光器(TLSC)。

【請求項49】

光利用効率(LUE)が約1以上であり、

平均可視光透過率(AVT)が約50%以上であり、

前記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である、請求項4 10 8に記載のTLSC。

【請求項50】

電力変換効率(PCE)が約1%以上であり、

| b \* | 値が約25以下である、請求項48に記載のTLSC。

【請求項51】

前記発光団が、前記導波路内に埋め込まれている、前記導波路上に直接配置されている、または、前記導波路上に配置されているフィルムに備えられている、請求項48に記載のTLSC。

【請求項52】

前記導波路に作動可能に連結されている光起電構成要素をさらに含む、請求項48に記 20 載のTLSC。

【請求項53】

ヘイズが約10%以下である、請求項48に記載のTLSC。

【請求項54】

最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650nm以上であるポリチオフェンを含む第2の発光団をさらに含み、

前記ポリチオフェンが、2,2'-[[4,4,11,11-テトラキス(4-ヘキシ ルフェニル)-4,11-ジヒドロチエノ[2',3':4,5]チエノ[2,3-d]チ エノ[2''',3'':4',5']チエノ[2',3':4,5]チエノ[2'',3'':4'',5' '':4',5']チエノ[2',3':4,5]チエノ[3,2-b]ピラン-2,9- i3of ル]ビス[メチリジン(5,6-ジフルオロ)(COi8DFIC)、3,9-ビス(2 -メチレン-(3-(1,1-ジシアノメチレン)-インダノン))-5,5,111,1 1-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-ジチエノ[2,3-d:2',3'-d']s-インダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン)(ITIC)、2,2'-[ [4,4,9,9,9-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-4,9-ジヒドロ-s-イン ダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン-2,7-ジイル]ビス[[4-[( 2-エチルヘキシル)オキシ]-5,2-チオフェンジイル]メチリジン(5,6-ジフ ルオロ-3-オキソ-1H-インデン-2,1(3H)-ジイリデン)]]ビス[プロパ ンジニトリル](IEICO-4F)、またはそれらの組合せであり、

前記導波路が、前記発光団および前記第2の発光団の両方から発せられる光を導く、請 40 求項48に記載のTLSC。

【請求項55】

第2の発光団、および、

前記第2の発光団から発せられる光を導く第2の導波路、をさらに含み、

前記第2の導波路が前記導波路と隣接して配置されることによって、前記第2の導波路を通過する光を前記導波路が受容し、

空気層または視覚的に透明である材料を含む層によって前記導波路と前記第2の導波路 とが分離されている、請求項48に記載のTLSC。

【請求項56】

前記視覚的に透明である材料の屈折率(n)が約1.3以下である、請求項55に記載 50

のTLSC。

【 請 求 項 5 7 】

前記第2の発光団の量子収率(QY)が約50%以上である、請求項55に記載のTL SC。

【請求項58】

前記第2の発光団は、

最大吸収極大が約450nm以下であり、

最大ピーク発光が約650nm以上である、請求項55に記載のTLSC。

【請求項59】

前記第2の発光団がナノクラスターを含む、請求項58に記載のTLSC。 10 【請求項60】

【 調 水 垻 ひ し 】

入射光がまず前記第2の導波路を通過してから前記第1の導波路を通過するように、前記導波路および前記第2の導波路が構成されている、請求項55に記載のTLSC。 【請求項61】

最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650nm以上であるポリチオフェンを含む第3の発光団をさらに含み、

前記ポリチオフェンが、2,2'-[[4,4,11,11-テトラキス(4-ヘキシ ルフェニル)-4,11-ジヒドロチエノ[2',3':4,5]チエノ[2,3-d]チ エノ[2''',3'':4'',5'']チエノ[2',3':4',5]チエノ[2''',3'':4'',5'' '':4',5'']チエノ[2',3':4,5]チエノ[3,2-b]ピラン-2,9-ジ201 ル]ビス[メチリジン(5,6-ジフルオロ)(COi8DFIC)、3,9-ビス(2 -メチレン-(3-(1,1-ジシアノメチレン)-インダノン))-5,5,5,11,1 1-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-ジチエノ[2,3-d:2',3'-d']s-インダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン)(ITTIC)、2,2'-[ [4,4,9,9,9-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-4,9-ジヒドロ-s-イン ダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン-2,7-ジイル]ビス[[4-[( 2-エチルヘキシル)オキシ]-5,2-チオフェンジイル]メチリジン(5,6-ジフ ルオロ-3-オキソ-1H-インデン-2,1(3H)-ジイリデン)]]ビス[プロパ

ンジニトリル](IEICO-4F)、またはそれらの組合せであり、

前記導波路が、前記発光団および前記第3の発光団の両方から発せられる光を導く、請 30 求項55に記載のTLSC。

【請求項62】

第1の発光団から発せられる光を導く第1の導波路であって、第1の光受容面および反 対側の第1の光透過面を有する、第1の導波路と、

第2の発光団から発せられる光を導く第2の導波路であって、第2の光受容面および反 対側の第2の光透過面を有する、第2の導波路と、を含み、

屈折率(n)が約1.3以下である透明材料または空気層のいずれかによって、前記第 1の導波路と前記第2の導波路とが分離され、

前記第1の発光団または前記第2の発光団の一方は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大ピーク発光が約650nm以上であって、

40

前記第1の発光団または前記第2の発光団の他方は、最大吸収極大および最大ピーク発光が約650nm以上である、透明発光型太陽光集光器(TLSC)。

【請求項63】

前記第1の導波路の前記第1の光受容面は、入射光を受容するように構成され、

前記第1の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大ピーク発光が約6 50nm以上である、請求項62に記載のTLSC。

【請求項64】

前記第1の発光団の量子収率(QY)が約50%以上である、請求項63に記載のTL SC。

【請求項65】

前記第1の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大ピーク発光が約6 50nm以上である、請求項64に記載のTLSC。 【請求項66】 前記第1の発光団がナノクラスターを含む、請求項65に記載のTLSC。 【請求項67】 最大吸収極大および最大ピーク発光が約650nm以上である前記第2の発光団が、ポ リチオフェン、ボロン - ジピロメテン(BODIPY)、またはそれらの組合せを含む、 請求項66に記載のTLSC。 【請求項68】 前記第2の発光団がポリチオフェンを含み、 10 前記ポリチオフェンが、2,2^-[[4,4,11,11-テトラキス(4-ヘキシ ルフェニル) - 4 , 1 1 - ジヒドロチエノ「 2 ' , 3 ': 4 , 5 ] チエノ「2 , 3 - d ] チ エノ [ 2 ' ' ' ' , 3 ' ' ' ' : 4 ' ' ' , 5 ' ' ' ] チエノ [ 2 ' ' ' , 3 ' ' ' : 4 ' ' , 5 ' ' ' : 4 ' , 5 ' ]チエノ [ 2 ' , 3 ' : 4 , 5 ]チエノ [ 3 , 2 - b ]ピラン - 2 , 9 - ジイ ル]ビス[メチリジン(5,6-ジフルオロ)(CO<sub>1</sub>8DFIC)、3,9-ビス(2 - メチレン - ( 3 - ( 1 , 1 - ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5 , 5 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - ジチエノ[2 , 3 - d : 2 ' , 3 ' - d ' 1 s - インダセノ[1,2-b:5,6-b']ジチオフェン)(ITIC)、2,2'-[ 「 4 , 4 , 9 , 9 - テトラキス( 4 - ヘキシルフェニル ) - 4 , 9 - ジヒドロ - s - イン 1 , 2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン - 2 , 7 - ジイル ] ビス [ [ 4 - [ ( 20 ダセノ「 2 - エチルヘキシル)オキシ 1 - 5 , 2 - チオフェンジイル 1 メチリジン (5 , 6 - ジフ ルオロ - 3 - オキソ - 1 H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン ) ] ] ビス [ プロパ ンジニトリル](IEICO-4F)、またはそれらの組合せである、請求項67に記載 **の**TLSC。 【請求項69】 光利用効率(LUE)が約1以上である、請求項62に記載のTLSC。 【請求項70】 電力変換効率(PCE)が約1%以上である、請求項62に記載のTLSC。 【請求項71】 | b \* | 値が約25以下である、請求項62に記載のTLSC。 30 【請求項72】 ヘイズが約10%以下である、請求項62に記載のTLSC。 【請求項73】 平均可視光透過率(AVT)が約50%以上である、請求項62に記載のTLSC。 【請求項74】 前記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である、請求項6 2に記載のTLSC。 【請求項75】 前 記 第 1 の 導 波 路 の 第 1 の 端 部 お よ び 前 記 第 2 の 導 波 路 の 第 2 の 端 部 に 作 動 可 能 に 連 結 されている光起電構成要素をさらに含む、請求項62に記載のTLSC。 40 【請求項76】 前 記 第 1 の 発 光 団 が 、 前 記 第 1 の 導 波 路 内 に 埋 め 込 ま れ て い る 、 前 記 第 1 の 導 波 路 上 に 直接配置されている、または、前記第1の導波路上に配置されている;および、 前記第2の発光団が、前記第2の導波路内に埋め込まれている、前記第2の導波路上に 直接配置されている、または、前記第2の導波路上に配置されている、請求項62に記載 **の**ΤLSC。 【発明の詳細な説明】 [0001]〔関連出願の相互参照〕 本出 願 は、 2 0 2 0 年 1 月 2 0 日 に出 願 された米国 仮出 願 第 6 2 / 9 6 3 , 4 5 5 号の 50

優先権を主張する。上記出願の開示の全体が、参照により本明細書に組み込まれる。 【0002】

〔政府の権利〕

本発明は、政府の支援を受けて成されたものである(国立科学財団による助成金番号第 1702591号)。本発明において、政府は一定の権利を有している。

[0003]

〔技術分野〕

本開示は、透明発光型太陽光集光器に関する。

[0004]

〔背景〕

本セクションでは、本開示に関する背景情報を提供する。しかし、これらは必ずしも従 来技術であるとは限らない。

【 0 0 0 5 】

太陽光取込みシステム(solar-harvesting system)を建物のエンベロープ(build ing envelope)、車両の窓およびパネル、ならびに電子ディスプレイを含む建築物に統 合することは、再生可能な太陽エネルギーを利用するための実用的なアプローチを提供す る。しかしながら、コスト、建築インピーダンス、および主に重要なことに、美観のため に、建築物およびその周囲に従来からの太陽モジュールを取付けることに関連する困難さ によって、建築物における太陽光取込みシステムの広範な採用は著しく妨げられている。 【0006】

透明LSC(TLSC)を含む発光型太陽光集光器(「LSC」)の概念が知られてお り、燐光および蛍光発光団の効率の最近の進歩に伴い、LSCシステムの効率は7.1% に増加している。光の光学的集光は、システム全体の変換効率を10パーセント未満に制 限するが(LSC積層なし)、必要とされる高価な太陽電池の面積を劇的に減少させるこ とができ、全体の設置コストを下げ、太陽電池の表面積に対する発電の割合を増加させる 。モジュールコストおよびシステムコストのバランスをそれぞれ左右するガラスおよび土 地のコストが高いため、性能が向上し、モジュールコストが低くなる可能性があるにもか かわらず、このようなLSCがソーラーファームの実施において採用されることは稀であ る。さらに、LSCを、建物および車両用の窓として、ならびに電子デバイス用のディス プレイとして利用することに関心が示されている。しかしながら、今日まで、これらのシ ステムの多くは、スペクトルの可視部分における吸収および発光(グロー)に限定されて おり、このようなデバイスの広範な採用を妨げている。例えば、窓の目的は、自然光を視 野と共に提供することであって、多くの人々にとって着色されたガラスの背後で作業する ことは好ましくない。このため、高水準の無色透明性が、至るところでの採用には望まし い。

[0007]

LSCの性能は以下の構成要素の効率によるものと理解することができる:発光団フォ トルミネセンス効率(量子収率)、太陽スペクトル吸収効率、導波(捕捉)効率、太陽電 池の効率、および移送(再吸収)効率。最も高いLSCの性能は、再吸収(ストークスシ フト)損失を減らし、スペクトルにわたる全体の吸収効率を向上させるために作用する、 燐光有機分子または複数の蛍光団(量子ドットまたは有機色素、等)の混合物を利用する 。大きな形状のLSCは、効率を5%未満に制限する、相当量の再吸収損失を受けるため 、報告された最も高い効率(6~7%)のいくつかは、比較的小さい板(0.1 m<sup>2</sup>未満 )に対するものである。

 $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 8 \end{bmatrix}$ 

LSCは、特に大きな形状の板に対して、再吸収損失によって最も制限されることが、 長く認知されている。実際、LSCに関する研究は、数ミクロン未満の厚さの純フィルム (neat film)の色素のみに適用可能な、有機蛍光体のストークスシフトの向上、ストー クスシフトまたは共鳴シフトを人為的に向上させる複数の色素最適化を通じた、これらの 再吸収損失の削減に焦点が当てられている。 20

10

30

【 0 0 0 9 】

透明な太陽光取込み建築物を構築するための以前の努力は、(1)典型的には強い着色 もしくは限定された透過性を有するか、または効率と透明性との間に固有のトレードオフ を有する、半透明の薄膜光起電池、(2)可視光において吸収または発光する着色発色団 を組み込んでいるLSC、(3)直接光のみを収集し、太陽光追跡を必要とする波長依存 性光学系を使用する光学システム、あるいは(4)許容できないレベルのヘイズを有する ことに焦点が当てられている。これらすべてのアプローチは、美観上の性質、嵩高性、ま たは相当量の透明性の制限のために、窓の適用のためのこれらの可能性が激しく制限され る。これらのアプローチは、従来のデバイスにおいては同時に最適化することができない 、電力変換効率(PCE)と可視光透過率(VT)との間の固有のトレードオフを受ける 。可視光スペクトル内に最大の吸収を有する、典型的な有機光起電池(PV)によって、 建築物の採用はさらに阻害され、演色評価数(CRI)の低下、強い着色および自然光と しての品質の欠如を招く。したがって、自然であり、着色されていない光を提供する、効 率的で高性能であるTLSCを開発する必要性が残っている。

〔概要〕

本セクションでは、本開示の概要を提供する。本セクションは、本開示の範囲または特 徴点のすべてを包括的に開示するものではない。

【0011】

本技術は、高性能近赤外取込み透明発光型太陽光集光器を提供する。

[0012]

種々の態様において、本技術は、透明発光型太陽光集光器(TLSC)であって、発光団、および、上記発光団から発せられる光を導く導波路、を含み、TLSCの光利用効率 (LUE)が約1以上である、TLSCを提供する。

【 0 0 1 3 】

ー態様において、上記TLSCは、平均可視光透過率(AVT)が約50%以上であり、上記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である。

【0014】

ー態様において、上記TLSCは、電力変換効率(PCE)が約1%以上であり、|b \*|値が約25以下である。

【 0 0 1 5 】

一態様において、上記TLSCは、平均可視光透過率(AVT)が約60%以上である

[0016]

ー態様において、上記発光団は、前記導波路内に埋め込まれている、上記導波路上に直接配置されている、または、上記導波路上に配置されているフィルムに備えられている。 【0017】

ー態様において、上記TLSCは、上記導波路に作動可能に連結されている光起電構成 要素をさらに含む。

【0018】

40

10

20

30

一態様において、上記発光団は、最大吸収極大(strongest absorbance maximum)および最大ピーク発光(strongest peak emission)が約650nm以上である。
 【0019】

一態様において、上記TLSCは、ヘイズが約10%以下である。

[0020]

ー態様において、上記発光団は、非フラーレンアクセプタ、ボロン - ジピロメテン(B ODIPY)、またはそれらの組合せである。

【0021】

ー態様において、上記発光団は非フラーレンアクセプタである。上記非フラーレンアク セプタは、 2 , 2 '- [ [ 4 , 4 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル)- 4、11-ジヒドロチエノ[2'、3':4、5]チエノ[2、3-d]チエノ[2'''、
3''':4':4''、5''] チエノ[2''、3'':4',5] チエノ[2''',3'':4'',5''] ピラノ[2''
チエノ[2',3':4,5] チエノ[3,2-b] ピラン-2,9-ジイル] ビス[メチ リジン(5,6-ジフルオロ)(COi8DFIC)、3,9-ビス(2-メチレン-(
3-(1,1-ジシアノメチレン)-インダノン))-5,5,111,11-テトラキス (4-ヘキシルフェニル)-ジチエノ[2,3-d:2',3'-d']-s-インダセノ
[1,2-b:5,6-b'] ジチオフェン)(ITIC)、2,2'-[[4,4,9,
9-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-4,9-ジヒドロ-s-インダセノ[1,2
-b:5,6-b'] ジチオフェン-2,7-ジイル] ビス[[4-[(2-エチルヘキ
シル)オキシ]-5,2-チオフェンジイル]メチリジン(5,6-ジフルオロ-3-オ)
キソ-1H-インデン-2,1(3H)-ジイリデン)] ビス[プロパンジニトリル]
(IEICO-4F)、またはそれらの組合せである。

ー態様において、上記TLSCは、第2の発光団、および、上記第2の発光団から発せられる光を導く第2の導波路、をさらに含み、上記第2の導波路が上記導波路と隣接して配置されることによって、上記第2の導波路を通過する光を上記導波路が受容し、空気によって満たされている、または、視覚的に透明である材料によって満たされているギャップによって上記導波路と上記第2の導波路とが分離されている。

【0023】

ー 態 様 に お い て 、 上 記 視 覚 的 に 透 明 で あ る 材 料 は 、 屈 折 率 ( n ) が 約 1 .3 以 下 で あ る 20 。

【0024】

ー 態 様 に お い て 、 上 記 第 2 の 発 光 団 は 、 量 子 収 率 ( Q Y ) が 約 5 0 % 以 上 で あ る 。 【 0 0 2 5 】

ー態様において、上記第2の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大 ピーク発光が約650nm以上である。

【0026】

一態様において、上記第2の発光団は、ナノクラスターを含む。

【0027】

ー態様において、上記導波路および上記第2の導波路は、入射光がまず前記第2の導波 30 路を通過してから前記第1の導波路を通過するように構成されている。

【0028】

種々の態様において、本技術は、透明発光型太陽光集光器(TLSC)であって、発光 団、および、上記発光団から発せられる光を導く導波路、を含み、TLSCの電力変換効 率(PCE)が約1%以上であり、|b<sup>\*</sup>|値が約25以下である、TLSCも提供する

【 0 0 2 9 】

ー態様において、上記TLSCは、平均可視光透過率が約50%以上であり、上記導波路への垂直入射における演色評価数(CRI)が約80以上である。

【 0 0 3 0 】

一態様において、上記TLSCは、光利用効率(LUE)が約1以上である。

【 0 0 3 1 】

一態様において、上記TLSCは、平均可視光透過率(AVT)が約50%以上である

[0032]

ー態様において、上記発光団は、上記導波路内に埋め込まれている、上記導波路上に直接配置されている、または、上記導波路上に配置されているフィルムに備えられている。 【0033】

ー態様において、上記TLSCは、上記導波路に作動可能に連結されている光起電構成 要素をさらに含む。

20

30

【0034】

ー態様において、上記発光団は、最大吸収極大および最大ピーク発光が約650nm以上である。

【 0 0 3 5 】

一態様において、上記TLSCは、ヘイズが約10%以下である。

[0036]

ー態様において、上記発光団は、非フラーレンアクセプタ、ボロン - ジピロメテン(B ODIPY)、またはそれらの組合せである。

【0037】

一態様において、上記発光団は上記非フラーレンアクセプタである。上記非フラーレン 10 アクセプタが、COi8DFIC、3,9-ビス(2-メチレン-(3-(1,1-ジシ アノメチレン)-インダノン))-5,5,111,11-テトラキス(4-ヘキシルフェ ニル)-ジチエノ[2,3-d:2',3'-d']-s-インダセノ[1,2-b:5, 6-b']ジチオフェン)(ITIC)、2,2'-[[4,4,9,9,9-テトラキス(4
ヘキシルフェニル)-4,9-ジヒドロ-s-インダセノ[1,2-b:5,6-b'] ]ジチオフェン-2,7-ジイル]ビス[[4-[(2-エチルヘキシル)オキシ]-5,2-チオフェンジイル]メチリジン(5,6-ジフルオロ-3-オキソ-1H-インデ ン-2,1(3H)-ジイリデン)]]ビス[プロパンジニトリル](IEICO-4F))、またはそれらの組合せである。

[0038]

ー態様において、上記TLSCは、第2の発光団、および、上記第2の発光団から発せ られる光を導く第2の導波路、をさらに含み、上記第2の導波路が上記導波路と隣接して 配置されることによって、上記第2の導波路を通過する光を前記導波路が受容し、空気に よって満たされている、または、視覚的に透明である材料によって満たされているギャッ プによって上記導波路と上記第2の導波路とが分離されている。

【0039】

ー態様において、上記視覚的に透明である材料の屈折率(n)が約1.3以下である。 【0040】

一態様において、上記第2の発光団の量子収率(QY)が約50%以上である。

[0041]

ー態様において、上記第2の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大 ピーク発光が約650nm以上である。

【0042】

一態様において、上記第2の発光団は、ナノクラスターを含む。

【0043】

ー態様において、上記導波路および上記第2の導波路は、入射光がまず上記第2の導波路を通過してから上記第1の導波路を通過するように構成されている。

【0044】

種々の態様において、本技術は、最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650n m以上であるポリチオフェンを含む発光団と、上記発光団から発せられる光を導く導波路 40 と、を含む、透明発光型太陽光集光器(TLSC)も提供する。

【0045】

 一態様において、上記TLSCは、光利用効率(LUE)が約1以上であり、平均可視
 光透過率(AVT)が約50%以上であり、上記導波路への垂直入射における演色評価数 (CRI)が約80以上である。

[0046]

ー態様において、上記TLSCは、電力変換効率(PCE)が約1%以上であり、|b<sup>\*</sup>|値が約25以下である。

【0047】

ー態様において、上記発光団は、上記導波路内に埋め込まれている、上記導波路上に直 <sub>50</sub>

(12)

接配置されている、または、上記導波路上に配置されているフィルムに備えられている。 [0048]一熊様において、上記TLSCは、上記導波路に作動可能に連結されている光起電構成 要素をさらに含む。 [0049]一態様において、上記TLSCは、ヘイズが約10%以下である。 [0050]一態様において、上記ポリチオフェンは、2,2~-[[4,4,11,11-テトラ キス(4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 1 1 - ジヒドロチエノ「2 ' , 3':4,51チエノ [2,3-d] f I [ 2 ' ' ' ' , 3 ' ' ' ' : 4 ' ' ' , 5 ' ' ' ] f I [ 2 ' ' ' , 10B ' ' ] ピラノ [ 2 ' ' , 3 ' ' : 4 ' , 5 ' ] チエノ [ 2 ' , 3 ' : 4 , 5 ] チエノ [ 3 , 2 - b ] ピ ラン - 2 , 9 - ジイル ] ビス [ メチリジン ( 5 , 6 - ジフルオロ ) ( C O ; 8 D F I C ) 、 3 , 9 - ビス( 2 - メチレン - ( 3 - ( 1 , 1 - ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5 , 5 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - ジチエノ「2 , 3 - d : 2' , 3 ' - d ' ] - s - インダセノ [ 1 , 2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン ) ( ITI C)、2,2'-[[4,4,9,9-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-4,9-ジヒドロ - s - インダセノ[1,2-b:5,6-b ']ジチオフェン - 2,7 - ジイル |ビス「「4-「(2-エチルヘキシル)オキシ]-5,2-チオフェンジイル]メチリ ジン(5,6-ジフルオロ-3-オキソ-1H-インデン-2,1(3H)-ジイリデン )]]ビス[プロパンジニトリル](IEICO-4F)、またはそれらの組合せである 20 [0051]一態様において、上記TLSCは、最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650 n m 以上であるボロン - ジピロメテン(BODIPY)を含む第2の発光団と、上記発光 団および上記第2の発光団の両方から発せられる光を導く導波路と、をさらに含む。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 5 & 2 \end{bmatrix}$ 一態様において、上記TLSCは、第2の発光団、および、上記第2の発光団から発せ られる光を導く第2の導波路、をさらに含み、上記第2の導波路が上記導波路と隣接して 配置されることによって、上記第2の導波路を通過する光を前記導波路が受容し、空気層 または視覚的に透明である材料を含む層によって上記導波路と上記第2の導波路とが分離 30 されている。 [0053]一態様において、上記視覚的に透明である材料は、屈折率(n)が約1.3以下である [0054] 一態様において、上記第2の発光団は、量子収率(QY)が約50%以上である。 [0055]一態様において、上記第2の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大 ピーク発光が約650nm以上である。 [0056]40 - 態様において、上記第2の発光団は、ナノクラスターを含む。 [0057] 一態様において、上記導波路および上記第2の導波路は、入射光がまず上記第2の導波 路を通過してから上記第1の導波路を通過するように構成されている。

【0058】

ー態様において、上記TLSCは、最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650 nm以上であるボロン - ジピロメテン(BODIPY)を含む第3の発光団と、上記発光 団および上記第3の発光団の両方から発せられる光を導く導波路と、をさらに含む。 【0059】

特定の態様において、本技術は、最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650n 50

(13)

m以上であるボロン - ジピロメテン(BODIPY)を含む発光団と、上記発光団から発 せられる光を導く導波路と、を含む、透明発光型太陽光集光器(TLSC)を提供する。

[0060]一態様において、上記TLSCは、光利用効率(LUE)が約1以上であり、平均可視 光 透 過 率 ( A V T ) が 約 5 0 % 以 上 で あ り 、 上 記 導 波 路 へ の 垂 直 入 射 に お け る 演 色 評 価 数 (CRI)が約80以上である。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 6 & 1 \end{bmatrix}$ 一態様において、上記TLSCは、電力変換効率(PCE)が約1%以上であり、|b \* | 値が約25以下である。 [0062]10 一態様において、上記発光団は、上記導波路内に埋め込まれている、上記導波路上に直 接配置されている、または、上記導波路上に配置されているフィルムに備えられている。 [0063]一態様において、上記TLSCは、上記導波路に作動可能に連結されている光起電構成 要素をさらに含む。 [0064]一態様において、上記TLSCは、ヘイズが約10%以下である。 [0065]一態様において、上記TLSCは、最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650 nm以上であるポリチオフェンを含む第2の発光団をさらに含む。上記ポリチオフェンは 20 、 2 , 2 ' - 「 「 4 , 4 , 1 1 , 1 1 - テトラキス ( 4 - ヘキシルフェニル ) - 4 , 1 1 , 3 ' ' ' ' : - ジヒドロチエノ[2 ' , 3 ' : 4 , 5 ] チエノ[2 , 3 - d ] チエノ[2 ' ' ' ' ' ' ' , 5 ' ' ' ] チエノ [ 2 ' ' ' , 3 ' ' ' : 4 ' ' , 5 ' ' ] ピラノ [ 2 ' ' , 3 ' ' : 4 ' , 3 ' : 4 , 5 ]チエノ [ 3 , 2 - b ]ピラン - 2 , 9 - ジイル ]ビス [ メチリジン ( 2' 5,6-ジフルオロ)(CO;8DFIC)、3,9-ビス(2-メチレン-(3-(1 ,1-ジシアノメチレン)-インダノン))-5,5,11,11-テトラキス(4-ヘ キシルフェニル) - ジチエノ[2,3-d:2',3'-d'] - s - インダセノ[1,2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン ) ( ITIC ) 、 2 , 2 ' - [ [ 4 , 4 , 9 , 9 - テト ラキス(4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 9 - ジヒドロ - s - インダセノ [ 1 , 2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン - 2 , 7 - ジイル ] ビス [ [ 4 - [ ( 2 - エチルヘキシル ) オ 30 キシ ] - 5 , 2 - チオフェンジイル ] メチリジン ( 5 , 6 - ジフルオロ - 3 - オキソ - 1 H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン ) ] ] ビス [ プロパンジニトリル ] ( I E I CO-4F)、またはそれらの組合せである。上記導波路は、上記発光団および上記第2 の発光団の両方から発せられる光を導く。 [0066]一態様において、上記TLSCは、第2の発光団、および、上記第2の発光団から発せ られる光を導く第2の導波路、をさらに含み、上記第2の導波路が上記導波路と隣接して 配置されることによって、上記第2の導波路を通過する光を上記導波路が受容し、空気層 または視覚的に透明である材料を含む層によって上記導波路と上記第2の導波路とが分離 されている。 40 [0067]一態様において、上記視覚的に透明である材料は、屈折率(n)が約1.3以下である [0068] 一態様において、上記第2の発光団は、量子収率(QY)が約50%以上である。 [0069]一態様において、上記第2の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大 ピーク発光が約650nm以上である。 [0070]

一態様において、上記第2の発光団は、ナノクラスターを含む。

ー 態様において、上記導波路および上記第2の導波路は、入射光がまず前記第2の導波路を通過してから上記第1の導波路を通過するように構成されている。 【0072】

一態様において、上記TLSCは、最大吸収極大および最大ピーク発光が共に約650 nm以上であるポリチオフェンを含む第3の発光団をさらに含む。上記ポリチオフェンは 、 2 , 2 ' - [ [ 4 , 4 , 1 1 , 1 1 - テトラキス ( 4 - ヘキシルフェニル ) - 4 , 1 1 - ジヒドロチエノ[2', 3': 4, 5]チエノ[2, 3 - d]チエノ[2'''', 3''': ' ' ' , 5 ' ' ' ] チエノ [ 2 ' ' ' , 3 ' ' ' : 4 ' ' , 5 ' ' ] ピラノ [ 2 ' ' , 3 ' ' : 4 ' , 3 ': 4 , 5 ] チエノ[3, 2 - b ] ピラン - 2 , 9 - ジイル] ビス[メチリジン(10 2' 5,6-ジフルオロ)(CO<sub>i</sub>8DFIC)、3,9-ビス(2-メチレン-(3-(1 , 1 - ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5 , 5 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘ キシルフェニル) - ジチエノ「2,3-d:2',3'-d'] - s - インダセノ「1,2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン ) ( ITIC ) 、 2 , 2 ' - 「 「 4 , 4 , 9 , 9 - テト ラキス(4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 9 - ジヒドロ - s - インダセノ [1, 2 - b : 5 , 6 - b '] ジチオフェン - 2 , 7 - ジイル] ビス [ [ 4 - [ ( 2 - エチルヘキシル ) オ キシ] - 5 , 2 - チオフェンジイル]メチリジン(5,6 - ジフルオロ - 3 - オキソ - 1 H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン ) ] ] ビス [ プロパンジニトリル ] ( I E I CO-4F)、またはそれらの組合せである。上記導波路は、上記発光団および上記第3 の発光団の両方から発せられる光を導く。 20

【0073】

種々の態様において、本技術は、第1の発光団から発せられる光を導く第1の導波路で あって、第1の光受容面および反対側の第1の光透過面を有する、第1の導波路と、第2 の発光団から発せられる光を導く第2の導波路であって、第2の光受容面および反対側の 第2の光透過面を有する、第2の導波路と、を含む、透明発光型太陽光集光器(TLSC )を提供する。屈折率(n)が約1.3以下である透明材料または空気層のいずれかによ って、上記第1の導波路と上記第2の導波路とが分離されている。上記第1の発光団また は上記第2の発光団の一方は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大ピーク発光 が約650nm以上である。上記第1の発光団または上記第2の発光団の他方は、最大吸 収極大および最大ピーク発光が約650nm以上である、

ー態様において、上記第1の導波路の前記第1の光受容面は、入射光を受容するように 構成され、上記第1の発光団は、最大吸収極大が約450nm以下であり、最大ピーク発 光が約650nm以上である。

[0074]

ー 態 様 に お い て 、 上 記 第 1 の 発 光 団 は 、 量 子 収 率 ( Q Y ) が 約 5 0 % 以 上 で あ る 。 【 0 0 7 5 】

ー 態 様 に お い て 、 上 記 第 1 の 発 光 団 は 、 最 大 吸 収 極 大 が 約 4 5 0 n m 以 下 で あ り 、 最 大 ピーク 発 光 が 約 6 5 0 n m 以 上 で あ る 。

[0076]

一態様において、上記第1の発光団は、ナノクラスターを含む。

【 0 0 7 7 】

ー態様において、最大吸収極大および最大ピーク発光が約650nm以上である上記第2の発光団は、ポリチオフェン、ボロン - ジピロメテン(BODIPY)、またはそれらの組合せを含む。

【0078】

一態様において、上記第2の発光団はポリチオフェンを含む。上記ポリチオフェンは、
2,2'-[[4,4,11,11-テトラキス(4-ヘキシルフェニル)-4,11-ジヒドロチエノ[2',3':4,5]チエノ[2,3-d]チエノ[2''',3''':4,5]チエノ[2''',3''':4
,5''']チエノ[2''',3'':4',5'']ピラノ[2'',3'':4',5'']
,3':4,5]チエノ[3,2-b]ピラン-2,9-ジイル]ビス[メチリジン(5 50)

30

, 6 - ジフルオロ) ( C O i 8 D F I C ) 、 3 , 9 - ビス ( 2 - メチレン - ( 3 - ( 1 , 1 - ジシアノメチレン) - インダノン)) - 5 , 5 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキ シルフェニル) - ジチエノ[2,3-d:2',3'-d'] - s - インダセノ[1,2b:5 , 6 - b ' ] ジチオフェン ) ( ITIC ) 、 2 , 2 ' - [ [ 4 , 4 , 9 , 9 - テトラ キス(4 - ヘキシルフェニル) - 4,9 - ジヒドロ - s - インダセノ[1,2 - b:5, 6 - b ' ] ジチオフェン - 2 , 7 - ジイル ] ビス [ [ 4 - [ ( 2 - エチルヘキシル ) オキ ·シ]-5,2-チオフェンジイル]メチリジン(5,6-ジフルオロ-3-オキソ-1H - インデン - 2 , 1 ( 3 H ) - ジイリデン ) ] ] ビス [ プロパンジニトリル ] ( I E I C O - 4 F)、またはそれらの組合せである。 10 [0079]一態様において、上記TLSCは、光利用効率(LUE)が約1以上である。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 8 & 0 \end{bmatrix}$ 一態様において、上記TLSCは、電力変換効率(PCE)が約1%以上である。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 8 & 1 \end{bmatrix}$  一態様において、上記TLSCは、|b<sup>\*</sup>|値が約25以下である。 [0082]ー 態様において、上記 T L S C は、ヘイズが約10%以下である。 [0083]一態様において、上記TLSCは、平均可視光透過率(AVT)が約50%以上である 20 [0084]一態様において、上記TLSCは、上記導波路への垂直入射における演色評価数(CR I)が約80以上である。 [0085] 一態様において、上記TLSCは、上記第1の導波路の第1の端部および上記第2の導 波路の第2の端部に作動可能に連結されている光起電構成要素をさらに含む。 [0086]一態様において、上記第1の発光団は、上記第1の導波路内に埋め込まれている、上記 第1の導波路上に直接配置されている、または、上記第1の導波路上に配置されている; および、上記第2の発光団は、上記第2の導波路内に埋め込まれている、上記第2の導波 30 路上に直接配置されている、または、上記第2の導波路上に配置されている。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 8 & 7 \end{bmatrix}$ 本明細書に記載される開示から、他の領域の利用可能性は明白になるだろう。本概要に おける説明および具体例は例示のみを目的としており、本開示の範囲を制限することを意 図するものではない。 [0088]〔図面〕 本明細書に記載される図面は、すべての可能な実施形態ではなく、選択された実施形態 の例示のみを目的としており、本開示の範囲を制限することを意図するものではない。 [0089]40 図1Aは、本技術の種々の態様によるTLSCの概略図である。  $\begin{bmatrix} 0 & 0 & 9 & 0 \end{bmatrix}$ 図1Bは、本技術の種々の態様による、図1AのTLSCと相互作用する光の概略図で ある。 [0091]図2Aは、本技術の種々の態様による、導波路内に発光団が埋め込まれているTLSC の概略図である。 [0092] 図2Bは、本技術の種々の態様による、導波路の表面上に発光団が直接配置されている

TLSCの概略図である。

(17)

【 0 0 9 3 】

図 2 C は、本技術の種々の態様による、導波路の表面上に発光団を含むフィルムが直接 配置されている T L S C の概略図である。

【0094】

図3Aは、本技術の種々の態様による、光起電池が導波路の端部上に配置されているTLSCの概略図である。端部は、矩形であり得る、湾曲し得る、または面取りされ得る。 【0095】

図3Bは、光起電池が導波路の表面上に配置されているTLSCの概略図である。任意の追加の光起電池は、本技術の種々の態様による、導波路の第2の表面の少なくとも1つ および導波路の端部上に配置されている。

【0096】

図3Cは、光起電池が導波路の第1の表面上に配置され、波長固有ミラーが導波路の端部上に配置されているTLSCの概略図である。任意の波長依存性ミラーが、本技術の種々の態様による、導波路の第2の表面上に配置されている。

[0097]

図3Dは、導波路および発光団を含むTLSCの概略図である。光起電池は、本技術の 種々の態様による、導波路の第1の表面上に配置され、波長固有ミラーは導波路の端部上 に配置されている。

[0098]

図 3 E は、導波路および発光団を含む T L S C の概略図である。光起電アレイは、本技 20 術の種々の態様による、導波路の表面にまたはその近くに配置されている。

【0099】

図3Fは、導波路および発光団を含むTLSCの概略図である。光起電アレイは、本技術の種々の態様による導波路内に埋め込まれている。

【 0 1 0 0 】

図4は、本技術の種々の態様による波長依存性ミラーを含む例示的なTLSCの概略図である。

[0101]

図5Aは、本技術の種々の態様による透明デュアルバンドデバイスの概略図である。

【0102】

図5Bは、線5B/5Cに沿った図5Aの透明デュアルバンドデバイスの図である。透明デュアルバンドデバイスは、本技術の種々の態様による2つの導波路を分離する空気層を含む。

【0103】

図5Cは、線5B/5Cに沿った図5Aの透明デュアルバンドデバイスの図である。透明デュアルバンドデバイスは、本技術の種々の態様による2つの導波路を分離する透明な 材料を含む層を含む。

図 6 A ~ 6 C は、近赤外(N I R)取込み波長選択的透明発光型太陽光集光器(T L S C)の動作原理の概略図である。発光されたより深いN I R フォトルミネセンスは全反射 を介してエッジマウント P V 電池に導波される一方で、可視光は通過する(図 6 A)。 C O i 8 D F I C の分子構造(図 6 B)。クロロベンゼン溶液(実線)およびポリマーマト リックス(破線)における、 C O i 8 D F I C の正規化された吸収スペクトル(青色)お よび発光スペクトル(赤色)を示すグラフ(図 6 C)。

[0105]

図 7 A ~ 7 B は、 C o <sub>i</sub> 8 D F I C の合成反応 (図 7 A) および I T I C の分子構造 (図 7 B) を示す。

【0106】

図 8 A ~ 8 B は、 2 つの異なるポリマーマトリックスに埋め込まれたCO<sub>i</sub> 8 D F I C の正規化された吸収スペクトル(青色)および発光スペクトル(赤色)を示すグラフであ

10

50

10

20

30

40

る: Shandon (実線) およびEukitt (破線) (図 8 A);溶液、ポリマーマトリックス フィルム、純フィルム、および粒子凝集体における、CO<sub>i</sub> 8 D F I C の正規化された吸 収の比較(図 8 B)。

【 0 1 0 7 】

図 9 A ~ 9 C は、異なる濃度の C O i 8 D F I C T L S C の電流密度対電圧 (J - V) ) 特性を示すグラフである(凡例 5 0 m g L <sup>- 1</sup> ~ 3 0 0 m g L <sup>- 1</sup> は溶液濃度を示す) 。 すべてのスキャンを A M 1 . 5 G 照明下で測定し、すべての T L S C を S i P V で エッジマウントした (図 9 A)。異なる濃度の C O i 8 D F I C T L S C の平均 E Q E L S C () スペクトルであり、対応する積分された J S C が図 9 A に示す J - V 特性か ら抽出された J S C とよく一致する (図 9 B)。異なる濃度の C O i 8 D F I C T L S C の正規化された位置依存性 E Q E L S C ピーク値(図 9 C )。

【0108】

図 1 0 A ~ 1 0 C は、C y 7 - N H S を使用した T L S C の絶対吸収および E Q E L S C スペクトル (図 1 0 A)、C O i 8 D F I C 1 5 0 m g L <sup>- 1</sup>を使用した T L S C の 絶対吸収および E Q E L S C スペクトル (図 1 0 B)、およびエッジマウント P V として の G a A s を使用した実用的限界に達する T L S C (図 1 0 C)を示す図である。 【 0 1 0 9】

図 1 1 A ~ 1 1 B は、発光団が C y 7 - N H S (図 1 1 A)および C o i 8 D F I C ( 図 1 1 B)である、異なるエッジマウント P V および G ファクタを有する T L S C の E Q E L S C および積分された J S C の平均の比較を示す図である。

**[**0 1 1 0 **]** 

図12A~図12Fは、cy7-NHS(図12A)および異なる濃度のCoi8DF IC(図12B~図12F)について、TLSCデバイスの測定した透過率(T()) 、反射率(R())、吸光度(A()=1-T()-R())、EQELSC( )スペクトル、および光子バランスチェック(EQELSC()+T()+R( ) 1)を示している。

 $\begin{bmatrix} 0 & 1 & 1 & 1 \end{bmatrix}$ 

図13A~13D:「150mgL<sup>-1</sup>」TLSCデバイスの各波長における測定した 透過率(T())、反射率(R())、吸収度(A())=1-T()-R( )、EQELSC()スペクトルおよび光子バランスチェック(EQELSC()) +R()1)を示すグラフを示す(図13A)。CIELAB色空間におけるCO<sub>1</sub> 8DFIC TLSCの色座標(a<sup>\*</sup>、b<sup>\*</sup>)であって、「300mgL<sup>-1</sup>」が強く着 色され、対応するCO<sub>1</sub>8DFIC TLSC(SiまたはGaAs PVでエッジマウ ントされた)対平均可視光透過率(AVT)(図13B);GaAs PVでエッジマウ ントされた「150mgL<sup>-1</sup>」および「300mgL<sup>-1</sup>」TLSCの電流密度対電圧 (J-V)特性であって、挿入図はGaAs PVでエッジマウントされた同じ2つのT LSCの平均EQELSC()スペクトルを示し、対応する積分されたJSCがJ-V 特性から抽出されたJSCとよく一致する(図13C);およびすべてのTLSCデバイ スの写真(図13D)。

【0112】

図 1 4 A ~ 1 4 D : I E I C O - 4 F の分子構造(図 1 4 A)、ポリマーマトリックス (Eukitt)に埋め込まれた C O i 8 D F I C (実線)および I E I C O - 4 F (破線) の正規化された吸収(青色)スペクトルおよび発光(赤色)スペクトルを示すグラフ(図 1 4 B)、 C O i 8 D F I C および I E I C O - 4 F を発光団として有する T L S C の E Q E L S C と積分された J S C の平均を示すグラフ(図 1 4 C)、 I E I C O - 4 F を有 する T L S C の光子バランスを示すグラフ(図 1 4 D)である。

図15は、BODIPYの合成反応を示す。

**(**0 1 1 4 **)** 

図 1 6 A ~ 1 6 D : デュアルバンド選択的取込み透明発光型太陽光集光器(TLSC) 50

の構造および動作原理を示す概略図であり(図16A)、UV構成要素とNIR構成要素 とが、それぞれの導波路内での全反射と、それぞれの発光団からの発光の分離を可能にす るエアギャップによって分離される。Cs<sub>2</sub>Mo<sub>6</sub>I8(CF3CF2COO)<sub>6</sub>ナノク ラスターの分子構造、正規化された吸収および発光スペクトル(図16B)。COi8D FICの分子構造、正規化された吸収および発光スペクトル(図156C)。ポリマーマ トリックスにおけるBODIPYの分子構造、正規化吸収、および発光スペクトル(図1 6D)。

(19)

**[**0 1 1 5 **]** 

図 1 7 A ~ 1 7 F : N C のみ、N C + C O i 8 D F I C、およびN C + B O D I P Y T L S C の電流密度対電圧 (J - V)特性を示すグラフである(図 1 7 A)。すべてのス 10 キャンが A M 1 . 5 G 照明で測定され、すべての T L S C が同じ G a A s P V 電池で エッジマウントされている。N C のみ、N C + C O i 8 D F I C、およびN C + B O D I P Y T L S C の平均 E Q E L S C ()スペクトルであり、対応する積分された短絡電 流密度

【0116】

【数1】

J SC Int

【0117】

は、図17Aに示されるJ-V特性から抽出されたJ<sub>SC</sub>とよく一致する(図17B)。 NC+CO<sub>i</sub>8DFIC TLSCの絶対位置依存性EQE<sub>LSC</sub>スペクトル(図167 C)。NC+BODIPY TLSCの絶対位置依存性EQE<sub>LSC</sub>スペクトル(図17 D);NC+CO<sub>i</sub>8DFIC TLSCの正規化された位置依存性EQE<sub>LSC</sub>ピーク 値(図17E)。NC+BODIPY TLSCの正規化された位置依存性EQE<sub>LSC</sub> ピーク値(図17F)。

[0118]

図18A~18B:比較のためのヒト眼(V( ))の正規化された明所視反応ととも に示す、NCのみ、NC+CO<sub>i</sub>8DFIC、およびNC+BODIPY TLSCの透 過スペクトル(T( ))(図18A)、ならびに、NCのみの群、NC+CO<sub>i</sub>8DF ICの群、およびNC+BODIPYの群のTLSCのCIELAB色空間における(a \*、b\*)座標である(図18B)。各群内で、NC濃度(1、2、5、10および20 mg/mL)が唯一の変数である。CO<sub>i</sub>8DFICのみおよびBODIPYのみのTL SCの(a\*、b\*)も参照として含まれる。挿入図はNCのみ、NC+CO<sub>i</sub>8DFI C、およびNC+BODIPY TLSCの写真で、NC濃度が10mg/mLである。 【0119】

図19A~19B:NCのみの群、NC+COi8DFICの群、NC+BODIPY の群、COi8DFICのみ、およびBODIPYのみのTLSCについての電力変換効 率(PCE)対平均可視光透過率(AVT)を示すグラフである(図19A)。黒線は部 分的可視光透過率を有する非波長選択的PVのショックレー - クワイサー(Shockley-Queisser、SQ)のPCE限界であり、この線の右側の領域は波長選択的アプローチに よって達成可能な標的PCEおよびAVTの組合せのみを示す。NCのみの群、NC+C Oi8DFICの群、NC+BODIPYの群、COi8DFICのみ、およびBODI PYのみのTLSCについての光利用効率(LUE=PCE×AVT)対AVTを示すグ ラフ(図19B)。黒線は部分的可視光透過率を有する非波長選択的PVのショックレー - クワイサー(SQ)のLUE限界であり、この線の右側の領域は波長選択的アプローチ によって達成可能な標的LUEおよびAVTの組合せのみを示す。

図 2 0 0 0 A ~ 2 0 0 0 C は、ナノクラスターのみを含むデバイス(図 2 0 A)、ナノ クラスターおよび C O i 8 D F I C を含むデュアルバンドデバイス(図 2 0 B)、ならび 50

20

に、ナノクラスターおよび B O D I P Y を含むデュアルバンドデバイス(図 1 2 0 C )の T、 R、 A および E Q E を含む光子バランスを示すグラフである。 【 0 1 2 1】

図 2 1 A ~ 2 1 C はデュアルバンドT L S C の光安定性調査を示している:N C のみ( 図 2 1 A)、N C + C O<sub>i</sub> 8 D F I C (図 2 1 B)、およびN C + B O D I P Y (図 2 1 C)の、一定の照明下での時間関数としての、吸収スペクトル、E Q E L S C 、および I Q E L S C の正規化されたピーク値。

【0122】

対応する参照番号は、図面における複数の図を通じて対している部材、構成要素および構成物を示す。

【0123】

〔詳細な説明〕

本開示を通して、その範囲を当業者に完全に伝えるために、例示的な実施形態を提供す る。具体的な構成物、構成要素、デバイスおよび方法の例等、多数の具体的な詳細を記載 することにより、本開示の実施形態に対する全体的な理解を提供する。当業者にとって明 らかであることに、具体的な詳細は必ずしも採用する必要はなく、例示的な実施形態は多 数の異なる形態において実施してもよく、これらはいずれも本開示の範囲を制限するもの と解釈すべきではない。いくつかの例示的な実施形態において、周知のプロセス、周知の デバイスの構造および周知の技術は、詳細には記載しない。

【0124】

本明細書で使用される用語は、特定の例示的な実施形態を説明することのみを目的とし ており、限定を意図していない。本明細書で使用される場合、単数形の「a」「an」およ び「the」は、文脈上明示されていない限り、複数形も包含することを意図してもよい。 用語「含む(comprise)」「含む(comprising)」「含む(including)」および 「有する(having)」は、包括的である。したがって、この用語は、記載されている特 徴、要素、組成、工程、整数、操作および/または構成要素の存在を特定する一方で、1 つ以上の他の特徴、整数、工程、操作、要素、構成要素および/またはそれらの群の存在 または追加を排除しない。非制限的な用語「含む(comprising)」は、本明細書に記 載される種々の実施形態を説明しクレームするために使用される、非限定的な用語として 理解すべきである。しかし、特定の態様において、この用語を、より限定的かつ制限的な 用語(「からなる(consisting of)」または「から本質的になる(consisting esse ntially of)」等)を意図していると理解してもよい。それゆえ、構成物、材料、構成 要素、要素、特徴、整数、操作および/またはプロセス工程を記載する任意の所与の実施 形態に関して、本開示は、上記記載された構成物、材料、部品、構成要素、特徴、整数、 操作および/またはプロセス工程からなる(または、それらから本質的になる)実施形態 をも具体的に包含している。「からなる(consisting of)」の場合には、代替的な実 施形態からは、任意の追加の構成物、材料、構成要素、要素、特徴、整数、操作および/ またはプロセス工程が除外されている。「から本質的になる(consisting essentially of)」の場合には、任意の追加の構成物、材料、構成要素、要素、特徴、整数、操作お よび / またはプロセス工程のうち、基本的および新規である特性に実質的に影響を及ぼす ものは実施形態から除外されるが、基本的および新規である特性に実質的に影響を及ぼさ ないものは実施形態に包含されることができる。

【0125】

実行の順番として具体的に特定されていない限り、本明細書に記載される任意の方法の 工程、プロセスおよび操作は、説明または図示された具体的な順番で実行することが必要 であると解釈してはならない。また、別記しない限り、追加または代替の工程を採用して もよいことも理解されるべきである。

【0126】

構成要素、要素または層は、他の要素または層に対して、「上にある(on)」「係合している(engaged to)」「接続されている(connected to)」または「連結され

20

10

30

50

ている(coupled to)」と示されているとき、他の構成要素、要素、または層に対して 、直接的に上にあってもよく、係合していてもよく、接続されていてもよく、または、連 結されていてもよい。あるいは、介在する要素または層が存在していてもよい。逆に、要 素が他の要素または層に対して、「直接上にある(directly on)」「直接係合してい る(directly engaged to)」「直接接続されている(directly connected to)」 または「直接連結されている(directly coupled to)」と示されているとき、介在す る要素または層は存在しなくてもよい。要素間の関係の記述に使用される他の語も、同様 に解釈されなければならない(例えば、「間にある(between)」と「直接間にある( directly between)」、「隣接する(adjacent)」と「直接隣接する(directly ad jacent)」等)。本明細書で使用される場合、用語「および / または」は、関連して列 挙されている1つ以上の項目の、任意およびすべての組合せを包含する。

【0127】

本明細書において、用語「第1」「第2」「第3」等を使用して、種々の工程、要素、 構成要素、領域、層および / または部分を記述する場合がある。しかし、別記しない限り 、これらの工程、要素、構成要素、領域、層および / または部分を、これらの用語によっ て限定してはならない。これらの用語は、ある工程、要素、構成要素、領域、層または部 分と、他の工程、要素、構成要素、領域、層または部分とを区別するためにのみ使用して もよい。本明細書で使用される場合、「第1」「第2」等の用語および他の数に関する用 語は、本文脈によって明示されない限り、配列または順序を意味しない。したがって、以 下に説明する第1の工程、要素、構成要素、領域、層部分を、例示的な実施形態の教示か ら逸脱することなく、第2の工程、要素、構成要素、領域、層または部分と称することが できる。

[0128]

本明細書においては、記載の簡便のために、「前に(before)」「後に(after)」 「内側に(inner)」「外側に(outer)」「下に(beneath)」「下に(below)」 「下の(lower)」「上に(above)」「上の(upper)」等の空間的または時間的に 関連する用語を用いることがある。これによって、図に示されている、ある要素または特 徴と他の要素または特徴との関係を説明する。空間的または時間的に関連する用語は、図 に描かれている方向に加えて、異なる方向へとデバイスまたはシステムを使用または操作 することも包含することを意図している場合がある。 【0129】

本開示を通して、数値は、おおよその尺度または範囲の制限を表す。そのため、所与の値からの軽微な偏差が包含されており、言及されている値に近い実施形態と、言及されている値そのものを含む実施形態とが包含されている。詳細な説明の末尾に記載の実施例以外にも、本明細書(添付の特許請求の範囲を含む)におけるパラメータ(例えば、量または条件のパラメータ)のすべての数値は、すべての場合において、用語「約」によって修飾されていると理解されうべきである。このことは、数値の前に実際に「約」が存在するか否かには関係ない。「約」とは、記載された数値が多少の不正確さを許容することを意味する(正確な値にある程度近接している;値に対して概ねまたは合理的に近い;概ね近い)。本技術分野における通常の意味以外に理解できない場合には、本明細書で使用される「約」がもたらす不正確さは、通常の測定方法およびパラメータの使用方法によって生じてもよい最小の偏差を表す。例えば、「約」は、5%以下の偏差を含んでいてもよい。この偏差は、任意で4%以下、任意で3%以下、任意で2%以下、任意で1%以下、任意で1%以下、任意で0.1%以下である。

さらに、範囲の開示には、すべての値の開示および、範囲全体からさらに分割された範囲の開示が含まれる(所与の範囲の端点および部分範囲(sub-range)も含む)。 【0131】

添付の図面を参照しながら、例示的な実施形態をより十分に説明する。 【0132】

20

10

30

本技術は、自然であり、着色されていない光を提供する、効率的で高性能であるTLS Cを提供する。当該TLSCは、可視スペクトルの外側にある光を選択的に吸収して発光 する発光団に作動可能に連結されている導波路を含む。これらの発光団は、チオフェン等 の非フラーレンアクセプタおよびボロン - ジピロメテン(BODIPY)を含む。当該T LSCは、平均可視光透過率(AVT)が約50%以上であり、導波路への垂直入射(す なわち、90°)における演色評価数(CRI)が約80以上であり、|b<sup>\*</sup> |値が25 未満であり、光利用効率(LUE)が約1以上である。

【0133】

図1 A を参照すると、本技術は、導波路1 2 を含む T L S C 1 0 を提供する。導波路1 2 は、光(入射光等)を受容する第1の表面14と、光を透過する反対側の第2の表面1 6 とを備える。導波路12はまた、端部18を含む。導波路12は、非限定的な例として 、ガラス、低鉄ガラス(例えば、Diamont(登録商標)低鉄ガラス、および、P 1 a n i l u x (登録商標)透明ガラス(Saint Gobain (Paris, France)))、および B o r o f l o a t (登録商標) 3 3 ホウケイ酸ガラス(Schott (Mainz, Germany) )、プラスチック、ポリ(メチルメタクリレート)(P M M A)、ポリ-(エチルメタク リレート)(P E M A)、(ポリ)-ブチルメタクリレート-co-メチルメタクリレー ト(P B M M A)、ポリエチレンテレフタレート(P E T)、ポリイミド(K a p t o n (登録商標)ポリイミドフィルム(DuPont, Wilmington, DE)、およびそれらの組 合せであり得る、視覚的に透明である材料を含む。

[0134]

導波路12は、発光団26と接触している(以下でより詳細に説明する)。図1Bは、 入射可視(VIS)光20および入射近赤外(NIR)光22を導波路12の第1の表面 14上で受容するTLSC10を示す。発光団26は、NIR光22の少なくとも一部を 吸収する。しかしながら、発光団26は、VIS光20を実質的に吸収せず、当該光は導 波路12の第2の表面16を通過する。吸収されたNIR光22は、発光団26を励起し、 当該発光団は異なるNIR波長であるNIR光24を発光し、当該光は導波路12によって端部18に導かれる。したがって、TLSCはNIR光22を取込み、導波路12は 発光団26から発光されたNIR光24を導く。発光されたNIR光24は光起電PV電 池またはPVアレイに誘導され、電気を生成する。これについては以下でより詳細に説明 する。

【0135】

図2Aは、図1A~1Bの導波路12および発光団26を含むTLSC10aを示す。 ここで、発光団26は、導波路12内に埋め込まれている。例えば、製造中、発光団26 は、導波路前駆体組成物中に分散される。導波路前駆体組成物が固化または硬化して導波 路12を形成すると、発光団26は、導波路12の内部マトリックスに埋め込まれたまま である。

[0136]

図2Bは、発光団26が導波路12の第1の表面14上に直接配置されているTLSC 10bを示す。例えば、導波路が形成された後、溶媒および発光団26を含む溶液は第1 の表面14上に、成型、蒸着(例えば、真空蒸着)、ピペットでの移動、噴霧、または注 入され得る。例えば蒸発によって溶媒を除去すると、発光団のみが第1の表面14上に残 る。発光団26は第1の表面14上に直接配置されて示されているが、発光団26は代替 的に、第2の表面16上に、または第1の表面14および第2の表面16の両方上に直接 配置され得ることが理解される。

**[**0 1 3 7 **]** 

図2 C は、発光団2 6 を含むフィルム2 8 を含む T L S C 1 0 c を示す。フィルム2 8 は、導波路1 2 の第1の表面1 4 (図2 C において、もはや見えない)上に直接配置され ている。フィルム2 8 は導波路1 2 上に形成させることができる、または、フィルム2 8 は別個に形成して、次いで、導波路1 2 の第1の表面1 4 上に配置することができる。フ ィルムは、非限定的な例として、ポリメチルメタクリレート、ポリ(n - ブチルアクリレ 20

10

ート) / ポリ(メチルメタクリレート - co - メタクリル酸)、ポリカーボネート、ポリ ジメチルシロキサン、4,4' - ビス(N - カルバゾリル) - 1,1' - ビフェニル、Si O 2 等の視覚的に透明である材料、EuikittおよびShandon等の封入剤、な らびにそれらの組合せを含む。フィルム28は第1の表面14上に直接配置されて示され ているが、フィルム28は代替的に、第2の表面16上に、または第1の表面14および 第2の表面16の両方上に直接配置され得ることが理解される。いくつかの態様において 、フィルム28は接着剤によって導波路に連結される。当該接着剤は屈折率が低い接着剤 であってもよい。

[0138]

上述のように、発光団26は太陽スペクトルのNIRおよびIR領域の少なくとも1つ の波長を有する光を取込む(すなわち、吸収する)。本明細書で使用される場合、UV光 の波長は約300nm~約450nmであり、VIS光の波長は約450nm~約650 nmであり、NIR光の波長は約650nm~約1500nmであり、IR光の波長は約 1500nm~約1mmである。発光団26は、約650nm以上の波長の光の最大吸収 極大を有する。多くの発光団は、スペクトルの種々の領域に存在してもよい複数の吸収極 大を有する。したがって、「最大吸収極大」は、最大ピークを有する吸収極大である。し たがって、発光団26は、スペクトルのNIR領域、またはスペクトルの赤外(IR)領 域において最大吸収極大を有する。発光団26は、約650nm以上の波長の光の最大ピ ーク発光を有する。同様に、多くの発光団は、スペクトルの種々の領域に存在してもよい 複数の発光極大を有する。したがって、「最大ピーク発光」は、最大ピークを有する発光 20 極大である。発光団26は、スペクトルのNIR領域、またはスペクトルのIR領域にお いて最大ピーク発光を有する。

【0139】

いくつかの態様において、発光団26は、約650nm以上の最大吸収極大を有し、そ れはスペクトルのNIRおよびIR領域に存在し、発光団26によって吸収される全光の 約 5 0 % 以下、約 3 0 % 以下、約 2 0 % 以下、約 1 0 % 以下、または約 5 % 以下がスペク トルのVIS領域に波長を有する。換言すれば、発光団と接触する総VIS入射光のうち 、約50%以下、約30%以下、約20%以下、約10%以下、または約5%以下が、発 光 団 2 6 によって吸 収 さ れ る 。 逆 に 、 導 波 路 1 2 お よ び 発 光 団 2 6 に 接 触 す る 総 V I S 光 の約50%以上、約70%以上、約80%以上、約90%以上、約95%以上が、散乱す ることなく導波路12を完全に透過する。したがって、TLSC10(およびTLSC1 0 a、10b、10c)は視覚的に透明であり、ヘイズが実質的にない。本明細書で使用 される場合、用語「ヘイズが実質的にない」は以下により詳しく説明するように、デバイ スが約20%以下のヘイズを有することを意味する。本明細書で使用される場合、用語「 透明」または「視覚的に透明」は、約50%以上、約60%以上、約75%以上、約80 %以上、または約90%以上の平均可視光透過率(AVT)を有するTLSCを示す。用 語「不透明」または「視覚的に不透明」は、正透過率について10%以下の眼の明所視応 答によって重み付けされた平均可視光透過率を有するデバイスを示す。眼の明所視応答に よって重み付けされる10%~50%のAVTを有するデバイスは「半透明」である。し たがって、TLSC10、10a、10b、10cはNIR/IRにおいて最大ピーク吸 収を有し、 N I R / I R において最大ピーク発光を有する発光団 2 6 を有し、視覚的に透 明である。

**[**0140**]** 

発光団26は、約50以下、約20以下、約10以下、または約5以下の光学積分(OI) )を有する。OIは、発光団の再吸収特性を以下のように定量化する:

【0141】

【数2】

 $OI = \int_{0}^{\infty} A(\lambda) \cdot PL^{*}(\lambda) d\lambda$  (1)

30

 $\begin{bmatrix} 0 & 1 & 4 & 2 \end{bmatrix}$ 

A()は発光団 / ホスト複合フィルムの単一路絶対吸収スペクトル(A()-1-R()-T(())である。PL\*()dはホスト材料中の発光団の正規化され た発光スペクトルである。OIは、発光層の厚さ、および(溶液中ではなく)ホスト材料 中の吸収スペクトルと発光スペクトルとの間の重なりの程度に依存する。したがって、O Iの減少は、吸収スペクトルと発光スペクトルとの間の重なりの減少に対応する。吸収ス ペクトルと発光スペクトルとの間の重なりを減少させることによって、再吸収による効率 損失が減少する。

[0143]

発光団26は、約10nm以上または約30nm以上のストークスシフトを有し、約1 10 0nm、約20nm、約30nm、約40nm、約50nm、約75nm、約100nm 、約125nm、約150nm、またはそれ以上のストークスシフトを含む。 【0144】

本技術のいくつかの態様において、発光団26は、チオフェン、ポリチオフェンまたな それらの組合せ等の、非フラーレンアクセプタ(電子受容体)である。チオフェンおよび ポリチオフェンの非限定的な例として、2,2^-[[4,4,11,11-テトラキス (4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 1 1 - ジヒドロチエノ [2 ', 3 ': 4 , 5 ] チエノ [2 , 3 - d ] チエノ「2'''', 3'''': 4''', 5'''] チエノ「2''', 3''': ラノ「2'',3'':4',5']チエノ「2',3':4,5]チエノ「3,2-b]ピラン - 2 , 9 - ジイル ] ビス [ メチリジン ( 5 , 6 - ジフルオロ ) ( C O i 8 D F I C ) 、 3 20 ,9-ビス(2-メチレン-(3-(1,1-ジシアノメチレン)-インダノン))-5 , 5 , 1 1 , 1 1 - テトラキス(4 - ヘキシルフェニル) - ジチエノ[2 , 3 - d : 2 ' , 3 ' - d ' ] - s - インダセノ [ 1 , 2 - b : 5 , 6 - b ' ] ジチオフェン ) ( ITIC )、 2 , 2 ' - 「 「 4 , 4 , 9 , 9 - テトラキス( 4 - ヘキシルフェニル) - 4 , 9 - ジ ヒドロ - s - インダセノ[1,2-b:5,6-b ']ジチオフェン - 2,7-ジイル] ビス [ [ 4 - [ ( 2 - エチルヘキシル ) オキシ ] - 5 , 2 - チオフェンジイル ] メチリジ ン(5,6-ジフルオロ-3-オキソ-1H-インデン-2,1(3H)-ジイリデン) ]]ビス [プロパンジニトリル](IEICO-4F)、各分子量が約50%を超えて変 化せず、各チオフェン骨格を保持するその誘導体、およびそれらの組合せが含まれる。 [0145]30

他の態様において、発光団26は以下の構造を有するボロン - ジピロメテン(BODI PY)である。

【0146】

【化1】



40

【 0 1 4 7 】

発光団26はまた、非限定的な例として、以下のBODIPY骨格を保持するBODI PY誘導体であり得る:例えば、BOD-66、Keio Flours(KFL)、オ リゴチエニル-BODIPY、4,4-ジフルオロ-4-ボラ-3a,4a-ジアザ-s -インダセン、「ジグザグ」エッジ融合("zig-zag" edge-fused)BODIPY、ア ザ-BODIPY、[a]-融合BODIPY、[b]-融合BODIPY、およびそれ らの組合せ。これらの化合物は任意で、BODIPYと組み合わせて使用することができ る。 【0148】 【化2】

**[**0149**]** 

発光団 2 6 は、チオフェン、ポリチオフェンおよび B O D I P Y の任意の組合せであり 得る。例えば、 T L S C 1 0 は第 1 の発光団および第 2 の発光団を含むことができ、第 1 1 の発光団はチオフェンまたはポリチオフェンであり、第 2 の発光団は B O D I P Y である

**[**0150**]** 

いくつかの態様において、発光団26は、スペクトルのUV領域にある約450 nm以下の最大吸収極大を有する発光ナノクラスターであり、発光団26によって吸収される全光の約50%以下、約30%以下、約20%以下、約10%以下、または約5%以下がスペクトルのVIS領域に波長を有する。換言すれば、発光団と接触する総VIS入射光のうち、約50%以下、約30%以下、約20%以下、約10%以下、または約5%以下が、発光団26によって吸収される。逆に、導波路12および発光団26に接触する総VIS光の約50%以上、約70%以上、約80%以上、約90%以上、約95%以上が導波路12を完全に透過する。発光団26は、スペクトルのNIR領域、またはスペクトルのIR領域において最大ピーク発光を有する。したがって、TLSC10、10a、10b、10cは発光ナノクラスターで視覚的に透明であり、ヘイズが実質的にない。本明細書で使用される場合、用語「ヘイズが実質的にない」は以下により詳しく説明するように、デバイスが約20%以下のヘイズを有することを意味する。

発光ナノクラスターは、六核クラスター、八面体クラスター、四面体クラスター、Ch e v r a l クラスター、エッジキャップハライドクラスター (edge-capped halide c luster)、金属クラスター、またはカルコゲニドクラスターであり得る。六核クラスタ ー は、 燐 光 金 属 八 ロ ゲ ン 化 物 ナ ノ ク ラ ス タ ー ま た は 燐 光 金 属 八 ロ ゲ ン 化 物 ナ ノ ク ラ ス タ ー 塩を含むことができる。金属ハロゲン化物または金属ハロゲン化物塩は、非限定的な例と して、M6X12、M6X12・nR、A2M6X14、A2M6X14・nR、EM6X1 4、 E M 6 X 1 4 • n R、 M 6 X 8 L 6、 A 2 M 6 X 8 L 6、 M 6 X 1 4 • N R 、 A 4 M 6 X 1 8、または A 4 M 6 X 1 8 ・ n R であり得る。式中、 M は金属を表し、 X は ハロゲンを表し、AおよびEはそれぞれ末端1+および2+カチオンを表し、Rは第1の 配位子を表し、Lは第2の配位子、例えばプロピオネートまたはペンタフルオロプロピオ ネートを表し、nは0~M+Xの間の値である。Mは、Mo、W、Cr、Mn、Tc、R e、Cu、Ti、V、Ta、Nb、Sn、Zn、ZrまたはGaであり、XはF、Cl、 Br、I、Atまたはそれらの混合物であり、AはH<sup>+</sup>、H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Na<sup>+</sup>、Li <sup>+</sup>、 R b <sup>+</sup>、 C u <sup>+</sup>、 C s <sup>+</sup>、 アンモニウム、 ブチルアンモニウム、 テトラブチルアンモ ニウム(TBA)、またはNR '₄ <sup>+</sup> である。式中、R ' は独立してアルキルまたはアリー ル基から選択され、 R ' はハロ、ニトロ、シアノ、ヒドロキシ、ヒドロキシアルキル、ハ ロアルキル、ハロアルコキシ、アミノ、アジド、カルボキシ、カルバモイル、メルカプト 、スルファモイル、C<sub>1~10</sub>アルキル、C<sub>2~10</sub>アルケニル、C<sub>2~10</sub>アルキニル、 C<sub>1</sub>~10アルコキシ、C<sub>1</sub>~10アルコキシアルキル、C<sub>1</sub>~10アルカノイル、C<sub>1</sub>~ 10アルカノイルオキシ、N-(C1~10アルキル)アミノ、N,N-(C1~10アル キル) 2 アミノ、C<sub>1~10</sub>アルカノイルアミノ、N-(C<sub>1~10</sub>アルキル)カルバモイ ル、N,N-(C<sub>1</sub>~10アルキル)2カルバモイル、C<sub>1</sub>~10アルキル-S(O)a( a は 0 、 1 ま た は 2 で あ る ) 、 C <sub>1 ~ 1 0</sub> ア ル コ キ シ カ ル ボ ニ ル 、 N - ( C <sub>1 ~ 1 0</sub> ア ル キ ル)スルファモイル、N,N-(C<sub>1~10</sub>アルキル)<sub>2</sub>スルファモイル、H<sub>2</sub>NS(O

10

20

30

)2NH-、N-(C1~10アルキル)NHS(O)2NH-、N,N-(C1~10ア ルキル)2NS(O)2NH-、アリール、アリールオキシ、アリールチオ、ヘテロアリ ール、ヘテロアリールオキシ、シクロアルキル、シクロアルキルオキシ、ヘテロシクリル 、ヘテロシクリル(C=O)-、ヘテロシクリルオキシおよびヘテロシクリルチオのうち の1つ以上によって任意に置換され、これらの選択は非限定的である:LはF、C1、B r、I、At、S、プロピオネート、ペンタフルオロプロピオネート、またはそれらの混 合物であり、EはBe<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Sr<sup>2+</sup>、Cu<sup>2+</sup>、Ni<sup>2+</sup>、Ti<sup>2</sup> \*、Ba<sup>2+</sup>またはそれらの混合物であり;RはH<sub>2</sub>O、CH<sub>3</sub>CN、または任意の他の 溶媒和物である。

【0152】

金属ハロゲン化物クラスター(例えば、燐光金属(II)ハロゲン化物クラスター)は 、配位子交換反応によって親塩化合物から修飾することができる。親イオンは、通常、M (V)X5の還元によって合成されるか、またはM(II)X2の形態で直接的に得られ る。Mo系クラスターの場合、親化合物はHC1塩への転化によって精製され、これは減 圧下での熱処理によってM(II)X2またはM(II)X12に戻される。配位子交換 はソックスレー抽出器中で、または酸性溶液中で遊離カチオンの存在下で直接反応させる ことによって実施することができ、それぞれ種々の錯体または塩を形成する。ここで合成 される金属ハロゲン化物錯体(水和物および塩)の選択された範囲の特性は、約1%~約 70%超の量子収率を示す。多くのアミンおよびチオール系配位子は、チオレートおよび アミン配位を介して、末端ハロゲン化物の周囲で置換されることができる。M、Xおよび LはMX2.L2、AMX2.L2、M6X12.L2、A2M6X14、およびA2M6 X<sub>14</sub>.L<sub>2</sub>において異なり、M=W、MoならびにX=C1、Br、IならびにL=C 1、CH<sub>3</sub>CN、ベンゼンチオール、エタンチオール、H<sub>2</sub>O(水和物)、HC1、アセ トニトリル(CAN)ならびにA=K、Na、テトラブチルアンモニウム(TBA)、お よび他のアンモニウム塩を含む。さらに、アミンおよびアンモニウム塩は、ポリマー鎖骨 格に容易に固定されて、粒子分離を高め、量子収率を増加させることができる。燐光ナノ クラスターの例としては、K2Mo6Cl14、TBA2Mo6Cl14、(H3O)2M o 6 C l 1 4、およびそれらの組合せが挙げられる。

【0153】

図 1 の T L S C 1 0 はまた、光起電 ( P V )構成要素 ( 例えば、 P V 電池または P V ア 30 レイ)を含む。図3Aおよび3Bは、図1Aおよび1BのTLSC10と同じ構成要素を 有するTLSC10 ′ 、10\*'を示す。しかしながら、太陽光集光器10 ′ は導波路12 の端部18のうちの1つの上に配置されているPV電池30を含み、TLSC10 '\* は 導波路12の第1の表面14上に配置されているPV電池30と、任意で端部18上およ び / または第2の表面16上に配置されているPV電池30とを含み、PV電池30は導 波路12に作動可能に連結されている。「作動可能に連結されている」とは、発光団26 から<br />
放出された、<br />
導波路<br />
12内の<br />
NIR<br />
または<br />
IR<br />
放射が<br />
PV<br />
電池<br />
30に<br />
伝達され<br />
得るこ とを意味する。種々の態様において、図3AのTLSC10'は、導波路12の少なくと も1つの端部18上にPV電池30を含む。図3Bにおいては、PV電池30は、導波路 12の第1および/または第2の表面14、16上の、端部18(例えば、矩形であり得 40 る、湾曲し得る、または面取りされ得る)に、または、その近くに位置する。「端部18 にまたはその近くに」とは、PV電池30が端部18に当接している、または、端部18 に当接する約10cm以内、約5cm以内、または約2.5cm以内であることを意味す る。 P V 電池 3 0 が 導 波 路 1 2 の 表 面 1 4 、 1 6 上 に 配 置 さ れ て い る 態 様 に お い て 、 導 波 路の表面14、16はPV電池30の位置で粗くてもよく、または、PV電池30を導波 路 1 2 に 埋 め 込 み 、 P V - 導 波 路 界 面 に お け る 全 反 射 を 低 減 す る こ と に よ っ て 導 波 路 1 2 が作動可能にPV電池30に連結されることを確実にすることができる。 【0154】

図 3 C および 3 D は、図 1 A および 1 B の太陽光集光器 1 0 と同じ構成要素を有する T L S C 1 0 '\* \*、1 0 '\* \* \*を示す。しかしながら、図 3 C および 3 D の T L S C 1 0 ' 50

10

\*\*、10 '\*\*\*は、少なくとも1つの波長依存性ミラー32および少なくとも1つのP V電池30を含む。より具体的には、図3Cにおいて、TLSC10 '\*\*は、導波路1 2の第1の面14上の、端部18またはその近くのPV電池30と、端部18上の波長依 存性ミラー32とを含む。任意の第2の波長依存性ミラー32は、導波路12の第2の表 面16上の、端部18にまたはその近くに配置されている。図3Dにおいて、TLSC1 0 '\*\*\*は、導波路12の第2の表面14上の、端部18にまたはその近くに配置され ているPV電池30と、端部18上に配置されている波長依存性ミラー32とを含む。以 下、図4を参照して、波長依存性ミラーについて詳述する。

【 0 1 5 5 】

図 3 E および 3 F は、図 1 A および 1 B の太陽光集光器 1 0 と同じ構成要素を有する T 10 LSC10''、10'''を示す。しかしながら、TLSC10'',10'''は、導波路12 作動可能に連結されているセグメント化PVアレイ34を有する。図3Eにおいて、PV アレイ34は、導波路12の表面14上に配置される。図3Fでは、PVアレイ34が導 |波路12の中央領域36内、例えば、導波路12の内部マトリックスのバルク内に配置さ れている。PVアレイ34は、導波路12上にコーティングまたは噴霧して、または集合 的に導波路12を形成する交互のスタック間の層として染色されたシートを層状にするこ とによって提供することができる。 PVアレイ34は視覚的に透明でなくてもよいが、太 陽光集光器10の透明性に実質的に影響を及ぼさないように、 PVアレイ34のサイズは 十分に小さい。例えば、種々の実施形態において、PVアレイ34は、導波路12の約2 0%以下、約15%以下、約10%以下、約5%以下、約2.5%以下を占める。換言す 20 れば、 P V アレイ 3 4 は、太陽光集光器 1 0 に接触する光の約 2 0 % 未満、約 1 5 % 以下 、 約 1 0 % 以下、 約 5 % 以下、 約 2 . 5 % 以下を 遮断 する。 いくつかの 実施 形態 において 、PVアレイ34はヒト観察者によって細い線もしくはドットとしてわずかに視認可能で あってもよく、または、 P V アレイ 3 4 はヒト観察者にとって顕微鏡によらなければ見え ず、視認不可であってもよい。

【0156】

様々な態様において、PVアレイ22は、導波路16の表面24内に配置されているか 、またはその上に配置されている、ワイヤ、マイクロワイヤ、ナノワイヤ、リボン、スラ イバ、球体、ドット、またはそれらの組合せなどを含むメッシュである(図2F)。熱損 失を低減するために、2つ以上のPVアレイ22を利用することができる。図2BのPV 30 電 池 1 8 ならびに図 2 F および 2 G の P V アレイ 2 2 は、当技術分野で公知の任意の材料 を含むことができる。太陽光アレイおよび太陽電池材料の非限定的な例としては、ゲルマ ニウム(Ge);アモルファスゲルマニウム(a-Ge);ガリウム(Ga);ヒ化ガリ ウム(GaAs);窒化ガリウム(GaN)、窒化ガリウムインジウム(INxGa1x N 、 0 < x < 1 )、ケイ素( S i );アモルファスケイ素( a - S i );ケイ素 - ゲル マニウム(SiGe):アモルファスケイ素-ゲルマニウム(a-SiGe):リン化ガ リウムインジウム(GaInP);セレン化銅インジウム、硫化銅インジウム、またはそ れらの組み合わせ(CIS);セレン化銅インジウムガリウム、硫化銅インジウムガリウ ム、またはそれらの組合せ(CIGS);テルル化カドミウム(CdTe);ペロブスカ イト(PV)、例えばCH3NH3PbI3、CH3NH3PbC13およびCH3NH3 40 PbBr₃;ならびにそれらの組合せである。 **[**0157**]** 

いくつかの態様において、図3Eおよび3FのTLSC10''、10'''に関して示され るPVアレイ34は直列に配線され、付加物、例えば、球体またはドットを含んでもよい 。例えば、PVアレイ34は、細いワイヤの電気接続によって接続されているSi球状太 陽光アレイを含むことができる。一実施形態において、PVアレイ34はメッシュを形成 するために一緒に配線された球体を含む。有利には、球状または多面PVアレイ34を使 用することは、各電池が、複数の角度で、直接および間接の太陽光の両方を捕捉すること ができるので、システム効率をさらに高める。PVアレイ34は導波路12内の異なる位 置の、表面14、16にもしくはその近くに配置することができ、またはPVアレイ34 50 は、 導波路 1 2 のほぼ同じ全体厚さである厚さを有することができる。いくつかの態様に おいて、 T L S C 1 0 '', 1 0 '''は、導波路 1 2 内の異なる位置に配置されている、複数 の P V ア レ イ 3 4 を含むことができる。

【0158】

セグメント化された P V アレイ 3 4 を導波路 1 2 の第 1 または第 2 の表面 1 4、 1 6 に 配置することによって、色素再吸収によって光学的に失われる前に発光(luminesced l ight)を捕捉することが可能である。あるいは、 P V アレイ 3 4 を導波路 1 2 内に埋め 込むことができる。この再吸収の損失は、ストークスシフトが小さい蛍光体に特に有益で ある。 P V アレイ 3 4 が導波路 1 2 内のどこに配置されるかに応じて、発光団 2 6 は、 P V アレイ 3 4 内に埋め込まれるか、またはそれに並置されるかのいずれかであり得る。ま 1 た、 P V アレイ 3 4 を導波路 1 2 の第 1 または第 2 の表面 1 4、 1 6 に配置することによ って、前方放射光の一部を捕捉することができ、これは、光損失をさらに低減し、電池間 の N I R 光のより大きな部分を利用することによって、空間的にセグメント化された P V アレイ 3 4 の効率を高める。

【0159】

図4に示すように、TLSC50は、第1の波長依存性ミラー52を含むことができる。第1の波長依存性ミラー52はグラフ80に示すように、発光団の発光スペクトルのみに対応するNIR光の反射率を有することができる。したがって、第1の波長依存性ミラー52は可視光54に対して透明であるが、グラフ80に示される発光範囲においてNIR光56を反射する。第1の波長依存性ミラー52は、上記発光団を含むTLSC50の第1の表面58に機能的に連結することができる。あるいは、第1の波長依存性ミラー52は、TLSC50の第2の表面60、または両方の表面58、60に機能的に連結することができる。他の態様において、発光団は第2の表面60上にあるか、または導波路内に埋め込まれている。

[0160]

さらに図3を参照すると、TLSC50は、第2の波長依存性ミラー62を含むことができる。第2の波長依存性ミラー62はグラフ90に示すように、改変発光団の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの両方に対応するNIR光の反射率を有することができる。 第2の波長依存性ミラー62は可視光54に対して透明であるが、グラフ90に示される 発光範囲においてNIR光56を反射する。第2の波長依存性ミラー62は、TLSC5 0の第1の表面58、TLSC50の第2の表面60、または両方の表面58、60に機 能的に連結することができる。一実施形態において、第1の波長依存性ミラー52はTL SC50の第1の表面58に機能的に連結され、第2の波長依存性ミラー62はTLSC 50の第2の表面60に機能的に連結される。上述のように、光起電アレイは、第1の表 面58、第2の表面60、または導波路内に配置することができる。種々の実施形態にお いて、TLSC50は第1の表面58、第2の表面60のいずれかに、または第1の表面 58と第2の表面60との間の導波路内に配置されている複数の太陽光アレイを含む。さ らに他の実施形態において、TLSC50は、第1および第2の表面58、60に隣接す るてLSC50の端部に配置されている太陽電池を含む。

**[**0161**]** 

透明光起電装置(TPV)に、視覚的に透明である選択的NIR波長依存性ミラー52、62を組み込むことにより、電力変換効率が50~100%、実質的に改善される。同様に、これらのミラー52、62の組込みは、低プレート寸法における光学効率を約20%よりも大きく改善する一方で、所与の光学密度のために必要とされる改変発光団の量を約半分に低減する。約0.5m<sup>2</sup>を超える太陽光集光器のサイズの場合、これらのミラー52、62は、システム効率を低下させる可能性がある任意の表面およびバルク散乱欠陥を軽減するのに役立つ。ミラー52、62は集光器の吸収を改善し、導波を増加させるコーティングとすることができる。さらに、これらのコーティング層はすでに普遍的に配備されている10%・eコーティングと非常に類似しており、熱除去のためにそれらの機能性の大部分を補完または置換することができる。TiO2、SiO2、およびAl2O3

10

の交互層の組合せは、e-ビーム蒸着、パルスレーザー蒸着、プラズマ強化スパッタリン グ、熱蒸着、化学蒸着、または溶液蒸着によって成長させて、全体のカラーインパクトお よび性能を最適化することができる。図4に関する上記の議論は、図1A~1B、図2A ~2B、および3A~3Fに記載されるTLSCに適用されることが理解される。 [0162]

図5Aを参照すると、本技術は、透明なデュアルバンドデバイス100も提供する。デ ュアルバンドデバイス100は、図1A~1B、2A~2B、3A~3Fおよび4を参照 して、すべての変形において上述した導波路12を含む。しかしながら、発光団26は上 述のとおり、約650nm以上の最大吸収極大および最大ピーク発光を有し、約15%以 上、約20%以上、または約25%以上の量子収率を有する。発光団26は、上述のUV 取込み発光ナノクラスターではない。したがって、発光団は、チオフェン、ポリチオフェ ン、BODIPY、ポルフィリン、フタロシアニン、またはそれらの組合せである。透明 デュアルバンドデバイス100は、第2の発光団102と、第2の発光団102から放出 された光を導く第2の導波路104とをさらに含む。第2の発光団102は上述のとおり 、約450nm以下の最大吸収極大と、約650nm以上の最大ピーク発光とを有する発 光エミッタである。非限定的な例として、第2の発光団102は、上述の発光ナノクラス ターのうちの少なくとも1つであり得る。さらに、第2の発光団は、約20%以上、約3 0%以上、約40%以上、または約50%以上の量子収率(QY)を有する。 [0163]

第2の導波路104は、第3の表面106と、対向する第4の表面108と、端部11 20 0とを有する(図5Aでは4つの端部110のうちの1つのみを見ることができる)。第 3の表面106は入射光を受容し、第4の表面108は光を透過する。導波路12、10 4 は互いに隣接して配置され、導波路12の第1の表面14が第2の導波路104の第4 の表面108を透過した光を受容する。さらに、第2の導波路104は、導波路12と直 接物理的に接触していない。むしろ、導波路12、104は、導波路12と第2の導波路 104との間にギャップ(または分離)112を画定するように配置されている。ギャッ プ 1 1 2 は、 各 導 波 路 1 2 、 1 0 4 内 に 導 か れ る 放 射 光 が 対 向 す る 導 波 路 1 2 、 1 0 4 内 に移動しないことを確実にする。ギャップ112は、発光団26が第2の発光団102か ら放出されるNIR光を吸収する可能性を防止する。ギャップ112の幅、すなわち、導 波路12の第1の表面14と第2の導波路の第4の表面108との間の距離は、約1nm 30 以上、約10mm以下、またはさらに広いW<sub>G</sub>である。例示的な幅W<sub>G</sub>は、約10nm、 約100nm、約500nm、約1µm、約1µm、約1µm、約1µm、約100µm 、約250μm、約500μm、約750μm、約1mm、2mm、3mm、4mm、5 mm、6mm、7mm、8mm、9mm、および10mmを含む。 [0164]

」透明デュアルバンドデバイス100はまた、少なくとも1つのPV電池114を含む。 各 P V 電池 1 1 4 は、 導波路 1 2 、 1 0 4 の対応する端部 1 8 、 1 1 0 に連結されている 。 換 言 す れ ば 、 単 一 の 一 体 型 P V 電 池 1 1 4 は 、 導 波 路 1 2 の 端 部 1 8 お よ び 第 2 の 導 波 路104の端部110に連結されている。したがって、透明デュアルバンドデバイス10 0は、単一電池デバイス(デュアル電池、マルチ電池、または各導波路のための別個の P Ⅴ電池を有する多機能デバイスとは対照的)である。いくつかの態様において、UVにて 最大吸収極大を有し、NIRおよび/またはIRにて最大ピーク発光を有する発光団が、 UVにて最大吸収極大を有し、UVにて最大ピーク発光を有する第2の発光団と共に使用 される。他の態様において、UVにて吸収極大を有し、NIRおよび/またはIRにて最 大ピーク発光を有する発光団が、NIRにて最大吸収極大を有し、NIRおよび/または IRにて最大ピーク発光を有する第2の発光団とともに使用され、発光団の最大ピーク発 光 は 第 2 の 発 光 団 の 最 大 吸 収 極 大 お よ び 最 大 ピ ー ク 発 光 と は 異 な る 。 こ れ ら の 態 様 に お い て、同じPV電池を両方の導波路に連結させること、または別個のPV電池を各導波路に i連 結 さ せ る こ と が 可 能 で あ り 、 各 P V 電 池 は U V 吸 収 体 / エ ミ ッ タ お よ び N I R 吸 収 体 / エミッタの発光端部に近い別個のバンドギャップを有し、熱化損失を低減する。

10

[0165]

図5 B は、線5 B / 5 C に沿った図5 A の透明デュアルバンドデバイス100の図である。より具体的には、図5 B が透明なデュアルバンド装置100 a を示し、ギャップ11 2 a が空気によって満たされている。このように、ギャップ112 a は、エアギャップまたは空気を含む層である。ここで、最後に1つの P V 電池114 はデバイスアーキテクチャを維持することができる。しかしながら、透明デュアルバンドデバイス100 a は、第2の導波路104から導波路12を分離するスペーサ116を任意で含む。

[0166]

図5 C は、線5 B / 5 C に沿った図5 A の透明デュアルバンドデバイス100の図であ る。より具体的には、図5 B が透明なデュアルバンド装置100 a を示し、ギャップ11 2 b は視覚的に透明である材料を含む層である。視覚的に透明である材料は、約1.45 以下または約1.3以下の屈折率(n)を有する。したがって、屈折率(n)は、約1以 上約1.45以下、または約1以上約1.3以下である。屈折率(n)は、約1、約1. 05、約1.1、約1.15、約1.2、約1.25、約1.3、約1.35、約1.4 、または約1.45であり得る。

[0167]

上述のとおり、本明細書に記載されるすべてのデバイスは、約50%以上、約60%以上、約75%以上、約80%以上、または約90%以上のAVTを有する。本技術のデバイスによって示される例示的なAVTは、約50%、約55%、約60%、約65%、約70%、約80%、約85%、約90%、および約95%を含む。

【0168】

本明細書に記載されるすべてのデバイスは、約80以上、約85以上、または約90以上の演色評価数(CRI)を有する。本技術のデバイスによって示される例示的なCRI は、約80、約85、約90、および約95を含む。本明細書に提供される透過率(AV T)および透明度の値は導波路への垂直(すなわち、90°)入射である。 【0169】

本明細書に記載されるすべてのデバイスは、国際照明委員会(CIE)によって定義されるL\*a\*b\*色空間、すなわち、実質的に白色であるCIELAB色空間を有する。 より具体的には、デバイスは、約25以下、約20以下、約15以下、約10以下、および約5以下の|a\*|および|b\*|値、ならびに、約10以上、約25以上、約50以上、約75以上、または約95以上のL\*値を示す。L\*値は、約100、約95、約9 0、約85、約80、約75、約70、約65、約60、約55、約50、約45、約4 0、約35、約30、約25、約20、約15、および約10を含む。より具体的には、 デバイスは、約25以下、約20以下、約15以下、約10以下、または約5以下のsq rt(|a\*|<sup>2</sup>+|b\*|<sup>2</sup>)値を示す。

【 0 1 7 0 】

本明細書に記載されるすべてのデバイスは、約20%以下、約10%以下、約5%以下 、約2%以下、または約1%以下である、全透過率(すなわち、散乱しているかどうかに かかわらず、トラフ(trough)を得る光の全量)で割った拡散透過率(すなわち、デバ イス内で散乱するが、それでも透過する光の量)として定義されるヘイズまたは透過ヘイ ズを有する。ヘイズは、約20%、約18%、約16%、約14%、約12%、約10% 、約8%、約6%、約4%、約2%、約1%およびそれ以下を含む。したがって、デバイ スは、ヘイズが実質的にない。

【0171】

本 明 細 書 に 記 載 さ れ る す べ て の デ バ イ ス は 、 約 1 % 以 上 、 約 1 . 5 % 以 上 、 約 2 % 以 上 、 ま た は 約 3 % 以 上 の 電 力 変 換 効 率 ( P C E ) を 有 す る 。

【0172】

光利用効率(LUE)はPCEとAVTとの積である。例えば、デバイスのPCEが2 .0%、AVTが50%の場合、LUEは2.0%×50%=1.0%または単純に1. 0になる。LUEが0とは、不透明デバイスを示す。本明細書に記載されるすべてのデバ

10

イスは、約0.9以上のLUEを有する。唯一の発光団としてチオフェンまたはポリチオフェンを含むTLSCは、約0.92のLUEを有する。唯一の発光団としてBODIPYを含むTLSCは、約1.26のLUEを有する。唯一の発光団として発光ナノクラスターを含むTLSCは、1.01、1.59、および1.84のLUEを有する。(導波路が入射光と接触する順に)発光ナノクラスターを含む第1の導波路と、BODIPYを含む第2の導波路とを有する透明なデュアルバンドデバイスは、約1.3、約1.49、約1.92、約2.36、および約2.6のLUEを有する。(導波路が入射光と接触する順に)発光ナノクラスターを含む第1の導波路と、COi8DFICを含む第2の導波路とを有する透明デュアルバンドデバイスは、約1.19、約1.56、約1.89、および約2.12のLUEを有する。したがって、本技術は約0.9以上、約0.95以上、約1以上、約1.5以上、または約2以上のLUEを有するTLSCおよび透明デュアルバンドデバイスを提供し、約0.95、約1.01、約1.05、約1.1、約1.2、約1.3、約1.4、約1.5、約1.6、約1.7、約1.8、約1.9、約2.1、約2.2、約2.2、約2.3、約2.4、約2.5、約2.6およびそれ以上のLUEを含む。

[0173]

最高の可能性がある美観を有するPCEを最適化すると、PCE/(sqrt(a\*^2+b\*^2))は約0.05以上、約0.08以上、約0.1以上、約0.13以上となる。

[0174]

上記TLSCは、エネルギー生成のための建物、車両、およびデバイスに組み込むことができる。したがって、本技術は、上記TLSCを含む建物、車両、およびデバイスを提供する。

【0175】

本技術の実施形態を、以下の非限定的な実施例によってさらに説明する。

**[**0176**]** 

〔実施例1〕

透明発光型太陽光集光器(TLSC)は、紫外線(UV)および近赤外線(NIR)光 を選択的に取込む。太陽光取込み領域上に電極、バスバー、および集積グリッド(colle ction grid)が存在しないため、デバイス構造は、これらのデバイスが最高レベルの透 明性および美観を達成することを可能にする。本実施例において、非フラーレンアクセプ 夕(例えばCOi8DFIC)を、発光団としてTLSCに導入する。COi8DFIC の濃度が電力変換効率(PCE)、美観の質およびスケーラビリティに及ぼす影響を体系 的に試験する。デバイス最適化後、COi8DFIC TLSCは1.2%超のPCEを 達成し、一方、平均可視光透過率(AVT)が74%を超え、演色評価数(CRI)は8 0を超えることを示す。本実施例は、報告された最高の可視光透過率において最高のTL SCデバイス性能を報告する。

**[**0177**]** 

(はじめに)

透明光起電電池(TPV)は、紫外線(UV)、近赤外線(NIR)を選択的に、すな 40 わち、太陽スペクトルの可視(VIS)部分にわたって部分的かつ中立的に、取り込むこ とができる。したがって、TPVはその下の表面の機能性および美観の質への影響を最小 限に抑えながら、現場でのエネルギー需要を効果的に供給することができ、総エネルギー 利用効率を改善する。本技術は(自律型)モバイルエレクトロニクス、ディスプレイ、お よび電気自動車を含む小面積での用途における適用を可能にし、その場合、潜在的な市場 は、増え続ける生産量のために相当なものである。これらの小面積での用途に加えて、よ リスケーラブルになり、新規および既存のインフラ社会基盤を電力源に変換し、伝送にお ける電気損失を劇的に低減するので、建築エンベロープ(architectural envelope) 上にTPVを統合することができる。

【0178】

20

10

重要な T P V 技術である透明発光型太陽光集光器(T L S C ) は、フォトルミネセンス (PL)による太陽エネルギー変換を光学的にシフトし、フォトルミネセンス(PL)は 、(全反射によって)エッジマウントPV電池に光学的に移される(図6A)。太陽光取 i込み領域上に電極、バスバー、および集積グリッドがないため、デバイス構造は大幅に簡 略化され、LSC/TLSCデバイスが最高レベルの透明性および美観を達成することを 可能にする。過去10年間、量子ドット、ナノクラスターおよび希土類イオン錯体は、L SC/TLSCシステムにおける発光団として広く研究されている。これらの研究のほと んどは、(1)量子収率(QY)の改善、(2)再吸収損失を最小にするための吸収およ び発光スペクトルの調節、および(3)発光団の吸収スペクトルと入射太陽スペクトルの ピークとを一致させることによる光吸収の増強に焦点を当てている。しかしながら、これ らの発光団の連続バンド吸収特性は、高い美観の質および透明性が目標とされる場合、そ れらの吸収カットオフを約435nmに制限する。440nmを超えるバンドギャップは 、平均可視光透過率(AVT)および演色評価数(CRI)の急速な低下をもたらし得る 。波長選択的吸収体を利用することにより、UVまたはNIRのみを取込むことが可能に なる。選択的吸収が675nmを超えて赤方偏移することにつれて、CRIおよびAVT は最大に達する。したがって、675nmおよびエッジマウントPV電池の吸収カットオ フの間のNIR光子を発電に利用することができ、この範囲は、入射AM 1.5 G光子 束のピークと一致する。さらに、赤色 - NIR におけるテール吸収(tail absorption )が 6 7 5 n m 未満であっても、得られる青色 / 緑色の色合いは黄色 / 赤色の色合いより も視覚的に許容されることが多く、これはNIR選択的取込み発光団にとってより多くの 設計自由度を提供する。

(32)

【0179】

有 機 お よ び 分 子 半 導 体 に お け る 光 吸 収 は 、 基 底 状 態 か ら 励 起 さ れ た 分 子 軌 道 ( 例 え ば 、 S1、S0 S2)への遷移に由来する。励起された分子軌道(S1およびS2) SΛ の間のギャップは準位の密度の不連続性をもたらし、これは光子の透過を可能にする。分 子構造は、このギャップが可視スペクトルと重複するように調整され、可視光透明性を作 り出すように設計することができる。一般に、有機染料はNIR光子を選択的に取込むよ うに設計することができ、これは、通常、従来の半導体では不可能である。しかしながら 、有機発光団は、多くの場合、大きな自己吸収(吸収とPLとの間の大きな重複)、狭い 吸収ピーク、およびNIRにおける比較的低いOYに悩まされる。近年、COi8DFI C (O 6 T - 4 F とも示される、図 6 B )が、前例のない性能を有する有機光起電装置に おける非フラーレンアクセプタとして開発されている。本実施例において、非フラーレン アクセプタ(COi8DFICを含む)をNIR選択的取込みTLSCにおける発光エミ ッタとして導入し、電力変換効率(PCE)は2倍を超える1.24%である。これはこ れまでの最良のNIR選択的取込みTLSCであり、最高のPCEはAVT70% 告する。波長選択的取込みからの可視光透明性が高いため、光利用効率(LUE=PCE × A V T ) は、量子ドットベース L S C の最高 L U E にも匹敵する。この材料モチーフで は、 同 様 の レ ベ ル の A V T で 5 % に 近 づ く 効 率 は 、 Q Y を 約 2 5 % か ら 1 0 0 % 近 く に 増 加させることによってのみ可能であり、10%以上の効率は、可視スペクトル周辺の太陽 光取込みをさらに増加させることによって達成される。

(実験)

< C O i 8 D F I C の合成 >

NMRスペクトルは、500MHzのVarian NMR分光計で得られ、重水素化 溶剤からの残留<sup>1</sup>Hピークを基準として使用した。カラムクロマトグラフィは、Sill icycle 60、35~75µmシリカゲルを使用して行った。予めコーティング された0.25mm厚のシリカゲル60 F254プレートを分析用TLCに使用し、U V光を使用して可視化した。化合物AおよびDは、ChemShuttle Coから得た。 【0181】 図7Aを参照すると、COi8DFICの合成は、以下に記載するいくつかの手順への 10

20

わずかな改変を伴って、既知の手順に密接に従った。臭化物Aで合成を開始し、2段階で ブロモエステル異性体BおよびCを約2:1の割合で得た。カラムクロマトグラフィは、 所望の異性体Bを分離するのに効率的ではなく、したがって結晶化を使用した。B/C混 合物の再結晶は、室温において純粋なDCM中に材料を溶解することによって開始した。 Et2Oをゆっくり加えると結晶が生成した。Et2O:DCMの割合が最終的に3:1 に達したときに、Et2Oの添加を終了した。溶液を室温で一晩維持し、結晶をブフナー 漏斗で濾過し、冷Et2Oで洗浄した。単離された結晶は所望の異性体(10:1 B: C)の純度の実質的な改良をもたらし、これをその後の変換に使用した。COi8-CH Oが得られるまであとに続く工程を行った。最後の反応については、反応時間が長くなる につれて収率の低下がもたらされることが見出された。COi8-CHOとDの反応を3 時間で停止させ、標的分子を91%の収率で単離した。チオフェンITICの分子構造を 図7Bに示す。

【0182】

< モジュールの製作 >

COi8DFIC粉末を塊にし、ジクロロメタンに溶解して(5分間の超音波処理)、 目標濃度の溶液を調製した。「150mgL<sup>-1</sup>」TLSC用に、150mgL<sup>-1</sup>ジク ロロメタン溶液を、(ポリ) - ブチルメタクリレート - co - メチルメタクリレート( P BMMA) (Sigma-Aldrich)と1:1の体積比で均一に混合した。5.08cm×5 . 0 8 c m x 0 . 6 3 5 c m のガラス板( J - V 特性評価用)に複合混合物を滴下し、窒 素ガス(O2、H2O <1ppm)を充填したグローブボックス中で3時間乾燥させ、 約0.5mmの層厚が得られた。2.54cm×2.54cm×0.1cm(PLおよび QY測定用)に同じ層構造を適用した。光起電測定のために、単結晶太陽電池(Vicoce II Solar)を、 J - V および対応する E Q E <sub>I S C</sub> 測定のために 5 . 0 8 c m x 0 . 6 3 5 cm帯にレーザー切断し、位置依存性 EQ E 測定のために 1 0 . 1 6 cm × 0 . 6 3 5 cm帯にレーザー切断した。エッジマウントGaAs PV(Alta Devices)を、受け 取ったまま使用した。 J - V 測定用に、 2 つの P V 帯を、屈折率整合ゲル(Thorlabs) を使用して直交する端部上に取付けることによって、PV帯を導波路の端部上に取付けて 並列に接続した。残りの 2 つの端部は、光および光の内部反射を遮断するために黒色に塗 装 し た 。 E Q E <sub>L S C</sub> 測 定 用 に 、 1 つ の P V 帯 を 導 波 路 の 1 つ の 端 部 に 取 付 け 、 他 の 3 つ の 端 部 を 黒 色 に 塗 装 し た 。

【0183】

< 光 学 特 性 評 価 >

両溶液およびTLSCデバイスの正透過率(specular tranmittance)(T( ) )を、ダブルビームLambda 800 UV/VIS分光計を使用して透過モードで 測定した。固体フィルムTLSCの透過率測定のために参照ビーム側に参照サンプルを配 置しなかった。TLSCの反射率(R( ))も、試料ビーム側に設置された正反射アク セサリ(specular accessory)を有するLambda 800 UV/VIS分析計 を使用して測定した。吸収スペクトルは次の式によって得られた:A( )=1-T( )-R( )。クロロベンゼン溶液中のCOi8DFICおよびポリマーマトリックスの PLを、PTI QuantaMaster 40分光蛍光光度計を使用して、650nmで励起して測 定した。フォトルミネセンス量子収率を、Hamamatsu Quantaurus蛍光光度計を使用 して試験し、スキャンモードにおける励起範囲(スキャン工程当たり10nm)を650 ~750nmに設定した。報告されたQY値を、11の測定値から平均した。 【0184】

< モジュール光起電特性評価 >

Keithley 2420 SourceMeterを使用して、シミュレートされたAM 1.5Gソー ラー照明(試験されたすべてのTLSCについて1.05の計算されたスペクトル不整合 因子と組み合わされたキセノンアークランプ)の下でJ-V特性を得た。光強度を、KG 5フィルタを有するNRELで較正されたSi基準ダイオードを使用して較正した。位置 依存性EQELSC測定は、較正されたSi検出器、モノクロメータ、チョッパおよびロ 10

20

ックイン増幅器を有するQTHランプを使用して行った。それぞれの距離(d)で測定されたEQELSc( )を、幾何学的ファクタg= /tan‐<sup>1</sup>(L/2d)を乗ずることによって補正し、これは、種々の励起距離(d)でのエッジマウントPVに対する様々な角度を説明し、LはLSC導波路長である。一連のEQELSc( )スペクトルを、同じTLSCデバイスを用いて取得し、次いで、平均スペクトルを使用して、デバイス全体を表し、統合して、同じデバイスの対応するJ-V特性からのJscを確認した。J-V測定およびEQE測定の両方について、環境からの照明または反射(ダブルパス)を排除するために、TLSCデバイスの背面にマットブラックバックグラウンドを配置した。すべてのTLSCデバイスを、同じSiまたはGaAs PV電池を用いて試験して、性能におけるいかなるPV対PVの変動をも排除した。

【 0 1 8 5 】

(結果および考察)

クロロベンゼン溶液中に溶解し、ポリマーマトリックス中に埋め込まれたCOi8DF ICの正規化された吸収および発光スペクトルを図6Cにプロットする。溶液からポリマ ーマトリックスまで、吸収スペクトルおよび発光スペクトルの両方に浅色シフトがあり、 吸収ピークは770nmから745nmにシフトし、発光ピークは831nmから808 nmにシフトし、約60nmのストークスシフトを示す。測定されたQYの吸収幅の増加 は、クロロベンゼン溶液中で23±1%であり、ポリマーマトリックス中で25±3%で ある。これは、NIR発光範囲に対して比較的高いQYであり、この範囲内の発光を有す るほとんどの市販の量子ドットが 50%であることを考慮する。対照的に、COi8D FICバンドギャップは、(有機PVに適用される)純フィルムにおいて低下し、その結 果、報告されたPVデバイスの外部量子効率(EQE)は、1050nmまで拡張するこ とができる。ガラス上に純層(neat layer)としてスピンコートしたとき、対応する吸 収スペクトルは約1000nmで吸収開始を示すが、量子収率はLSC構造中で純層が成 長することができない点まで著しく減少する。したがって、ドープされたLSCの構造に おけるこの化合物の使用について研究がなされた。

【0186】

さらに、COi8DFICの吸収に関しては、溶液からポリマーマトリックスフィルム へのスペクトルのシフト、すなわち凝集およびソルバトクロミックシフトについて、2つ の説明の可能性がある。凝集は、典型的にはバンドギャップが減少する吸収の広がりをも たらす。図8Aにおいて、吸収スペクトルは、異なるポリマーホスト(Eukitt対S handon)において測定され、吸収 / バンドギャップは変化せず、発光は中程度にシ フトすることが見出される。凝集溶液はまた、図8Bに示すように、THFを水および純 フィルムと混合することによって作製された。凝集体および純フィルムの吸収カットオフ は、互いに非常に近く(オリーブ色曲線)、溶液中のモノマーと比較して大きな深色シフ ト(約100nm)を示す。対照的に、溶液およびポリマーフィルムの吸収カットオフは 、互いに非常に近い(青色曲線)。したがって、これは、ポリマーホストの屈折率の差に 関連するソルバトクロミックシフトである可能性がより高い。COi8DFICバンドギ ャップは、溶液およびポリマーマトリックスと比較して、純フィルムおよび凝集体におい

【0187】

TLSCデバイスを、25.8cm<sup>2</sup>の活性領域(導波路長(L)が5.08cm)を 有する正方形ホウケイ酸ガラス板上に形成した。CO<sub>i</sub>8DFIC分子をジクロロメタン に溶解し、ポリマーホストと均一に混合した。次いで、この混合物をガラス板上にドロッ プキャストして、CO<sub>i</sub>8DFIC/ポリマー複合フィルムを形成した。ジクロロメタン 溶液中のCO<sub>i</sub>8DFICを種々の濃度で調製し、NIRにおける全吸光度を調整した。 SiとGaAsとの両方をエッジマウントPVとして利用した。Siは性能の傾向を理解 するために利用し、GaAsは熱損失を低減し、最大性能を実証するために配置した。C O<sub>i</sub>8DFIC/ポリマーPLカットオフが、900 nmのGaAs EQEカットオフ に関して、ほぼ理想的に875 nmに位置する限り、GaAsの利用が可能であることに 10

注意されたい。レーザでさいの目に切られた(laser-diced)Si PV電池(またはG a A s P V 電池)を、2つの直交する縁部上に取付け、並列接続し、一方、他の2つの 直交する端部を黒色に塗装した(実験セクションを参照されたい)。5つの異なるCO; 8DFIC濃度のTLSCデバイスを作製し、その光起電性能を特性評価した。比較のた めに、シアニン色素Cy7-NHSを有するTLSCを参照デバイスとして加えた。これ らのTLSCの電流密度対電圧(J-V)特性を図9Aに示し、平均位置依存性外部量子 効率(EQE」sc( ))スペクトルを図9Bに示す。光起電パラメータおよび美観の 質の評価(AVTおよびCRI)を表1にまとめる。50mgL<sup>-1</sup>の最低濃度であるT LSCは「Cy7-NHS」対照(1.01±0.07mAcm<sup>-2</sup>)と比較して30% 高い短絡電流密度(J<sub>SC</sub>:1.29±0.03mAcm<sup>-2</sup>)を示し、一方、同様の開 回路電圧(Voc)およびフィルファクター(FF、fill factor)を示した。対応する AVT(84.4%対88.2%)およびCRI(91.3対92.0)は非常に近い。 CO<sub>i</sub> 8 D F I C 濃度が150 m g L<sup>-1</sup>まで増加すると、J<sub>SC</sub>は2.07±0.08 m A c m <sup>- 2</sup> までさらに増加し、A V T (7 4 . 4 %)および C R I (8 0 . 0)はわず かに減少し、対応するPCEは0.54±0.03%に達する。濃度を300mgL<sup>-1</sup> にさらに増加させると、PCEが0.61±0.05%にわずかに改善され、AVT(5 9.7%)およびCRI(63)において有意な損失(cost)があり、青色の色合いが 増加する。

(35)

- [0188]
- 【表1】

表1. TLSCの光起電および美観の質のパラメータ

デバイス	J <sub>sc</sub> (mAcm⁻²)	<i>Int. J<sub>sc</sub></i> (mAcm₋²)	V <sub>oc</sub> (V)	FF %	PCE %	AVT %	LUE %	CRI	(a*, b*)
Cy7-NHS	1.01 ±0.07	1.03	0.42 ±0.01	57 ±1	0.24 ±0.01	88.2	0.21	92.0	(-5.5, -0.8)
50 mgL <sup>-1</sup>	1.29 ±0.03	1.30	0.44 ±0.01	57 ±1	0.33 ±0.01	84.4	0.28	91.3	(-6.0. -1.5)
100 mgL <sup>-1</sup>	1.76 ±0.09	1.71	0.46 ±0.01	58 ±1	0.47 ±0.03	78.0	0.37	84.8	(-10.4, -2.8)
150 mgL <sup>-1</sup>	2.07 ±0.08	1.89	0.47 ±0.01	56 ±1	0.54 ±0.03	744	0.41	00.0	(-13.5.
150 mgL⁻¹*	1.54 ±0.05	1.78	0.99 ±0.01	81 ±1	1.24 ±0.04	74.4	0.92	80.0	-3.7)
200 mgL <sup>-1</sup>	2.13 ±0.06	1.88	0.47 ±0.01	57 ±1	0.57 ±0.03	67.4	0.38	72.0	(-18.6, -5.3)
300 mgL <sup>-1</sup>	2.24 ±0.04	2.12	0.48 ±0.01	57 ±1	0.61 ±0.05		0.37		(-24.2,
300 mgL <sup>-1</sup> *	1.56 ±0.08	1.77	0.99 ±0.01	80 ±1	1.24 ±0.07	59.7	0.74	63.0	-6.7)

\*GaAs PVがエッジマウントされたTLSC

#### **[**0 1 8 9 **]**

J - V特性から抽出されたJscは、EQELSc()からの積分されたJscによって確認される(図9B)。EQELScのピーク位置は図6Cの吸収スペクトルと一致し、興味深いことに、EQELSc寄与の大きさは、可視光を通したOi8DFICの中性吸収(neutral absorption)プロファイルに起因する可視光領域に由来する。EQELSC測定において、粒子凝集による散乱またはエッジマウントPVの直接照明は、波長が増加することにつれて減少するEQELScスペクトルのレイリー散乱の形状から直接特定でき、これは傾斜したバックグラウンドを発光団の頂点に重ね合わせる。PVの直

20

接照明は、エッジマウントPVの吸収カットオフまで延びるレベルバックグラウンドを発 光団ピークに導入する。どちらの効果も、不正確なEQELSc測定および積分されたJ Scの過大評価を引き起こし得る。短波長でのレイリー散乱も、長波長でのエッジマウン トPV電池の直接照射も、EQELScスペクトルでは観察されず、これは、EQE寄与 が埋め込みCOi8DFICのPLのみに由来することを確認する。

【0190】

COi8DFIC濃度がデバイスのスケーラビリティに及ぼす影響を調べるために、3 つの異なるCOi8DFIC濃度(50mgL<sup>-1</sup>、150mgL<sup>-1</sup>、300mgL<sup>-1</sup> )および「Cy7-NHS」のTLSCシステム(寸法:10.16×10.16cm) を、励起源からエッジマウントPV電池までの距離(d)の関数として位置依存性EQE LSCによって特性評価した。10mm間隔でdが15mmから95mmに増加すること につれて、各TLSCシステムについて複数のEQEスキャンを行った。補正されたEQ ELSCピーク値を抽出し、図9Cにプロットする。

【0191】

「 5 0 m g L <sup>- 1</sup> 」 ( A ( ) % = 4 9 . 6 % )の絶対吸収ピークの高さは「 C y 7 -NHS」対照(A())%=88.6%)よりも有意に低いが、EQE<sub>LSC</sub>ピークの高 さは図9Bに示すように互いに類似している。したがって、この30%のPCEの改善は 主に、より広い吸収ピークおよびより高いOYに起因する。優れた発光特性は、光起電デ バイスにおいてそのような高性能アクセプタになった理由の1つである可能性が高く、特 に低いバンドギャップにおける高いQYは非放射モードの低減を意味する。「150mg L<sup>-1</sup>」について、吸収ピークの高さ(A()%=80.3%)および幅の増加が」s cの実質的な向上をもたらす。さらに濃度を増加させると、吸収ピークの高さはプラトー に達する(「300mgL<sup>-1</sup>」ではA( )%=92.0%)が、幅の増加は着色(低 NAVTとCRI)およびより大きな再吸収損失の両方につながる。これは対応するEQ E」scスペクトルに反映される:「150mgL<sup>-1</sup>」と比較して、「300mgL<sup>-1</sup> 」は、より広いEQE」scピーク幅を示すが、ピーク高さの減少を示す。正規化された 位置依存性EQELScピーク値の減衰傾向は、再吸収損失の挙動の解析に役立つことが できる:「50mgL<sup>-1</sup>」が系列内で最も低い再吸収に起因する最も遅い減衰傾向を示 す。より高い発光団濃度では「150mgL<sup>-1</sup>」がより急速な減衰曲線を示すが、「C Y 7 - N H S 」対照よりも依然としてわずかに遅い。最後に、最高濃度では、「300 m g L <sup>- 1</sup> 」および「 C y 7 - N H S 」が系列内で最高の再吸収損失のために、非常に類似 した「ロールオフ」挙動を共有する。スケーラビリティ、美観の質、および光起電性能を 考慮すると、150mgL<sup>-1</sup>が最適濃度であることを見出している。 [0192]

図10~10Cおよび表2に示すように、最新技術に対する増強の原因をさらに明確に するために、以前に報告されたCy7-NHSからCO<sub>i</sub>8DFICに移行すると、QY が20%から25%に改善し(1.25倍増)、波長選択的吸収が1.63倍に増え、P CEがほぼ倍増している。

【0193】

40

50

20

30

【表2】

表2. 波長選択的吸収の割合、Cy7-NHSとCOi $_{s}$ DFIC 150mgL<sup>-1</sup>との QYおよびInt. J $_{sc}$ の比較;可視光の寄与の有無にかかわらず、因数は実用的限度 に達する。

発色団	吸収された 総ソーラー光子 (#m <sup>-2</sup> )	QY %	Int. J <sub>SC</sub> (mAcm <sup>-2</sup> )	Voc (V)	FF %	PCE %
Cy7-NHS	$4.28 imes10^{20}$	$20 \pm 1$				
CO <sub>i</sub> 8DFIC	$6.98 imes10^{20}$	$25 \pm 3$	詳糸	町は表3%	を参照	
割合	6.98/4.28 = 1.63	25/20 = 1.25				
実用的限界-1 (0% VIS 寄与)	$9.14  imes 10^{20}$	100	10.3	1.05	80	8.65
実用的限界-2 (20% VIS 寄与)	$1.11  imes 10^{21}$	100	13.5	1.05	80	11.34

【0194】

光起電性能を調べるために、異なるGファクタ(G factor)、エッジマウントPVお よび発光団を有するTLSC、異なるGファクタを有する正方形TLSCデバイス:導波 路長10.16cm、厚さ3.175mmおよびGファクタ8、を作製して試験した。図 11A~11Bに示すように、積分された電流密度の平均は、CO<sub>i</sub>8DFIC濃度が1 50mgL<sup>-1</sup>の1.78mAcm<sup>-2</sup>と比較して、0.95mAcm<sup>-2</sup>である。V<sub>OC</sub> およびFFは類似し、PCEは0.75%であると推測される。

【0195】

さらに、GファクタとエッジマウントPVとが同じに維持されるので、COi8DFI CからのPCEの向上は、Cy7-NHSと比較して、常に80~100%である(表3 参照)。SiからGaAsへの移行は、V<sub>OC</sub>およびFFをそれぞれ2.2倍と1.4倍 に向上させる。したがって、発光団および整合PV電池からのPCEの改善は、同様に重 要であることが分かる。

【0196】

【表3】

表3. 図11A~11Bに示す、異なるエッジマウントPV、Gファクタお よび発光団を有するTLSCの光起電パラメータの要約

#	発光団	PV	G	<i>Int. J<sub>sc</sub></i> (mAcm <sup>-2</sup> )	V <sub>oc</sub> (V)	FF %	PCE %
1		¢;	8	0.56	0.45	57	0.14
2		51	2	1.03	0.42	57	0.25
3	Cy7-INHS		8	0.50	0.99	80	0.40
4		GaAs	2	0.91	0.99	80	0.72
5		с;	8	1.10	0.45	57	0.28
6		31	2	1.89	0.47	56	0.54
7	COiODFIC		8	0.95	0.99	80	0.75
8		GaAs	2	1.78	0.99	80	1.41

[0197]

図10Cおよび表2に示すように、QYを25%から100%に改善すると、PCEを 50

30

20

10

4 倍(1 . 3 % から5 . 2 % に)増加させることができる。しかしながら、よりシャープ な吸収スペクトルカットオフ(例えば、誘電体ミラーを用いて)でUVおよびNIR吸収 効率を改善することによって、1 . 3 1 倍(PCEが5 . 2 % から6 . 8 %)をもたらす 。一方、再吸収を抑制するために発光スペクトルをさらに同調することは、1 . 2 6 倍の 増強(PCEが6 . 8 % から8 . 6 %)をもたらす。4 3 5 ~ 6 7 5 n mから 2 0 % のV IS光を吸収することにより、積分されたJSCを1 0 . 3 m A c m <sup>-2</sup> から1 3 . 5 m A c m <sup>-2</sup> ( 3 0 % 増強 ) にさらに改善することができ、PCEを>1 1 % まで高めるこ とができる。これはいくつかの重要な点を強調する:1 ) QYのように吸収効率を増加さ せることによって得られることがほとんどであり、2 ) UV + NIRを選択的に取込むこ とは最高効率に達するためにより効果的である。全体として、1 0 % 以上の最適化された 効率はこのクラスの材料で達成可能であり、5 % 以上の効率(A V T > 7 0 %を伴う)は 、QYが5 0 % に近づくにつれてわずかな増進で達成可能である。

【0198】

再吸収は、これらのNIR選択的取込みTLSCデバイスにおいて依然として主要な損 失メカニズムであり、それらの適用をより小面積の適用に限定し得る。しかしながら、ス トークスシフトも、正規化された吸収スペクトルおよび発光スペクトル(図6C)も、種 々のCOi8DFIC濃度であるデバイスにおける実際のスケーラビリティを反映してい ない。また、図12A~12Fに示すように、各波長における光子バランスを使用して、 EQELSC()+T()+R() 1であるすべての透明光起電デバイスを確認 した。この挙動を定量化するために、重なり積分(OI)と呼ばれる有用な設計パラメー タを導入し、LSCシステムにおける再吸収損失を都合よく相関させた。Cy7・NHS およびCOi8DFICの発光幅は互いに明確に異なるので、それらの対応する発光スペ クトルによってOIを正規化して、式(2)を使用して任意のスペクトル形状の差を説明 した:

【0199】

【数3】

$$OI^* = \frac{\int_0^\infty A(\lambda) PL^*(\lambda) d\lambda}{\int_0^\infty PL^*(\lambda) d\lambda}$$

(2)

[0200]

PL()は、ポリマーマトリックスフィルム中の有機エミッタの発光スペクトルであ る。OI\*は厚さおよび/または濃度に依存する修正された重なり積分であり、より低い OI\*はより高性能であり、スケーラビリティを改善するために望ましい。最低スケーリ ングから最高スケーリングまでの計算されたOI\*の傾向は「50mgL<sup>-1</sup>」(0.2 49)、「150mgL<sup>-1</sup>」(0.467)、「Cy7-NHS」(0.470)およ び「300mgL<sup>-1</sup>」(0.618)であり、これらのTLSCの減衰傾向とよく一致 する。

【0201】

TLSCデバイスの独立したEQELSC()、透過スペクトル(T())および 反射スペクトル(R())の測定から、光子バランスの妥当性を確認するために、図1
3 Aの「150mgL<sup>-1</sup>」において、それぞれの波長でEQELSC()+T()
+ R()) 1を満たしている。関与する残りのTLSCデバイスの光子バランスチェックを図12A~12Fに示す。位置依存性EQELSCスペクトルの最高EQELSC()(図9Bの平均ではなく、むしろ最小のdで得られる)を、この関係で使用して、系列全体が光子バランスを満たすことを確実にする。

CIELAB色空間座標(a<sup>\*</sup>、b<sup>\*</sup>)は、窓産業における透過光のレンダリングされた
 た色忠実度を定量化するための主要な性能指数である。入射AM 1.5Gは原点(0,

10

0) (無色に近い (neutral) として) にあり、TLSCの(a<sup>\*</sup>、b<sup>\*</sup>) 位置が図13 Bにプロットされている。VIS (ほとんどが赤色) に広がるNIR吸収ピークのテール 吸収があるので、TLSCはすべて、a<sup>\*</sup>およびb<sup>\*</sup>が負の値を有する。「50mgL<sup>-1</sup>」および「Cy7-NHS」の座標は非常に近く、TLSC写真において観察できる( 図13D)。CO<sub>i</sub>8DFICの濃度が高くなるにつれて、位置はほぼ直線に沿って原点 から離れるように移動し、レンダリングされた色は次第に青みを帯びるようになる。最高 濃度において、座標(a<sup>\*</sup>、b<sup>\*</sup>) は示されるスケールの外側に移動し、「300mgL<sup>-1</sup>」ではもはやグレージングシステムに適していないことを示す。

[0203]

LSCデバイスの出力電圧は、エッジマウントPV電池によって決まる。理想的には、 発光団の発光端に隣接するバンドギャップを有するPV電池を使用することにより、電圧 損失(PVにおける熱化損失の低減)を効果的に低減し、PCE全体を改善することがで きる。エッジマウントPVのバンドギャップをさらに増加させると、出力電圧と回収可能 な電流との間の直接的なトレードオフをもたらすことができる。900nm付近のCO; 8 D F I C 発光ピーク端では、G a A s が C O i 8 D F I C 発光ピーク端に最も近い E Q Eカットオフを有するほぼ理想的なPVである。したがって、GaAs PV電池を「1 50mgL<sup>-1</sup>」および「300mgL<sup>-1</sup>」のTLSC上に集積し、Si PVを置換 することが、この潜在的改良の一例である。 J-V曲線を図13Cにプロットする。Ga A s を 使 用 し た 「 1 5 0 m g L <sup>- 1</sup> 」 デ バ イ ス の 測 定 し た J <sub>5 C</sub> は 1 . 5 4 ± 0 . 0 5 m A c m <sup>- 2</sup> であり、 V o c は 0 . 9 9 ± 0 . 0 1 V と、および F F は 8 1 ± 1 % と有意に 改善され、PCEは1.24±0.04%となる。「300mgL<sup>-1</sup>」は、「150m g L <sup>-1</sup>」と非常に類似した光起電性能を示す。平均 E Q E L <sub>S C</sub> スペクトルは図 1 3 C の挿入図に示すように、EQE<sub>LSC</sub>値幅がわずかに広く、「300mgL<sup>-1</sup>」のピー ク高さは「150mgL<sup>-1</sup>」のそれよりも低いが、可視光範囲からの寄与が大きいため 、「150mgL<sup>-1</sup>」および「300mgL<sup>-1</sup>」の積分されたJ<sub>SC</sub>値はそれぞれ1 . 7 8 m A c m <sup>- 2</sup> と 1 . 7 7 m A c m <sup>- 2</sup> であり、 J - V 特性からの J <sub>S C</sub> とよく一致 する。

[0204]

L U E は、同じスケールでAVTの全体レベルが異なる透明PVデバイスを系統的に比較するための測定基準を提供する。TLSCデバイスのLUEは、図13Bの挿入図において、それらのAVTの関数としてプロットされている。SiエッジマウントPVでは「Cy7-NHS」対照TLSCはLUEが0.21であり、COi8DFIC TLSCのLUEは「150mgL<sup>-1</sup>」では0.41にピークを有する。濃度をさらに増加させると、PCEをわずかに改善することができるが、AVTを劇的に減少させる。GaAsPVでは、「150mgL<sup>-1</sup>」および「300mgL<sup>-1</sup>」のLUE値がそれぞれ0. 9 2 および0.74である。知る限り、「150mgL<sup>-1</sup>」は、AVTが70%を超え、PCEが1.2%を超えるTLSCデバイスについての最初の報告である。以前に報告されたLSC/TLSC性能パラメータの概要を比較のために表4に示す。 【0205】

40

10

20

表4.報告されたLSC/TLSCデバイスの概要

発光団	QY %	サイズ (cm²)	AVT %	CRI	PCE %	LUE %
CO <sub>i</sub> 8DFIC (本研究)	25±3	5.08×5.08	74.4	80.0	1.24	0.92
(TBA) <sub>2</sub> Mo <sub>6</sub> Cl <sub>14</sub> NCs	50-55	2.5×2.5	84.0	94.0	0.44	0.37
Cy7-NHS	20±1	2×2	86.0	94.0	0.40	0.34
Cy7-NEt <sub>2</sub> -I	26±1	5.08×5.08	77.1	75.6	0.36	0.28
CdSe/Cd <sub>1-x</sub> Zn <sub>x</sub> S	40	10.16×10.16	84.8	91.0	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
Si QDs	46±5	12×12	83.0ª	84.1	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
CdSe/CdS	45	21.5×1.35	94.9ª	89.2	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
CuInS <sub>2</sub> /ZnS	56	2.2×2.2	N/A <sup>b</sup>	N/A	8.71 <sup>d, f</sup>	N/A
gem-ピレンエテン	52	2.5×2.5	N/A <sup>b</sup>	N/A	0.32	N/A
SINc:t-U(5000)	16 (UV) 8 (NIR)	7.6×2.6	99.0ª	97.7	N/A <sup>e</sup>	N/A
CuInS <sub>2</sub> /ZnS	66	10×10	43.7ª	76.9	2.18	0.95
Mn:Cd <sub>x</sub> Zn <sub>1-x</sub> S/ZnS CuInSe₂/ZnS	78±2 65-75	15.24×15.24 <sup>d</sup>	88.8 <sup>g</sup> 8.5 <sup>g</sup>	95.5 0.42	1.3 <sup>c, d, f</sup> 1.8 <sup>c, d, f</sup>	1.15 0.15
CuInSe <sub>x</sub> S <sub>2-x</sub> /ZnS	40±4	12×12	45.6ª	77.1	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
Cu:CdSe/CdS NPLs	~40	10×10	N/A <sup>b</sup>	N/A	$0.003^{h, f}$	N/A
CulnS <sub>2</sub> /CdS NCs	~45	7.5×7.5	70.1ª	82.2	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
PbS/CdS	40-50	2×1.5	53.0ª	65.6	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
CdSe/Cd <sub>x</sub> Pb <sub>1-x</sub> S	40	7×1.5	N/A <sup>a</sup>	N/A	1.15 <sup>c, e, f</sup>	N/A
Mn:ZnSe	53	2.5×7.5	N/A <sup>b</sup>	N/A	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
CdSe/CdS	82	2×2	N/A <sup>b</sup>	N/A	N/A <sup>c, e, f</sup>	N/A
bPDI-3 LR 305	97.7	20×20	56.0ª	57.0	1.90 <sup>d, f</sup>	1.06
LR 305 CRS 040	-	5×5	N/A <sup>b</sup>	N/A	7.1 <sup>i</sup>	N/A
ルブレン Pt(TPBP)	~50	2.5×2.5	N/A <sup>b</sup>	N/A	N/A <sup>e</sup>	N/A

【0206】

これらの非フラーレンアクセプタがLSCおよびTLSC開発のための説得力のあるプ ラットフォームであることを示すために、第2の一般的な非フラーレンアクセプタIEI CO-4F(図14A)を特性評価し、TLSCのための発光団として統合する。対応す るA( )、PL( )、およびEQELSC( )(図14B~14D)は、ポリマー マトリックス(Eukitt)において20±2%のわずかに低いQYを有するCOi8 DFICと同様である。これは、このクラスの低バンドギャップ有機分子の有益な特性を 補強する。

[0207]

スペクトル吸収範囲はほぼ理想的であり、GaAs(すでにショックレー - クワイサー 限界に近い)に十分に結合しているので、このデバイス配置 / 分子モチーフによる実用的 限界は、NIR発光団のQYの25%(測定値)から約90%~100%への改善のみを 考慮することによって推定することができる。これは、例えば、コア分子モチーフへの化 10

学修飾を使用して、剛化を介した非放射モードを低減することによって達成することがで きる。この限界では、PCEが同じ高レベルのAVTでちょうど5%を超える効率に達し 、 一 方 、 7 % の 記 録 不 透 明 L S C に 近 づ く 。 1 0 % を 超 え る 実 用 的 限 界 は 、 こ の ア プ ロ ー チで達成可能である。

要約すると、非フラーレンアクセプタを、発光団としてLSCおよびTLSCに導入し た。有機光起電においてブロックバスターアクセプタとなることが明らかになり、また優 れた発光特性を有するCOi8DFICを広範囲に研究した。COi8DFICの濃度が PCE、美観の質およびスケーラビリティに及ぼす影響を系統的に研究した。デバイスの 最 適 化 後 、 T L S C は 、 1 . 2 % を 超 え る P C E を 達 成 す る こ と が 示 さ れ 、 一 方 、 A V T は74%を超え、CRIは80を超える。本実施例は最高の視覚的な透明性において最高 のTLSCデバイス効率を報告し、これらの低バンドギャップ有機分子のフォトルミネセ ンス特性がより高いTLSC性能を提供することを強調する。 [0209]

〔 実 施 例 2 〕

視覚的に透明である発光型太陽光集光器(TLSC)は、太陽スペクトルの紫外線(U V)、近赤外線(NIR)部分を選択的に取込み、入射太陽エネルギーを電力に変換する TLSCの主要な用途には建物のエンベロープ、温室、自動車、看板、およびモバイル エレクトロニクスが含まれるので、美観および機能性を維持することは実際の配置におい て高い電力変換効率(PCE)を達成することと同じくらい重要である。本実施例では、 大規模ダウンシフト燐光ナノクラスター(NC)および蛍光有機分子の両方を、それぞれ UVおよびNIR選択的取込み発光団としてTLSCシステムに導入する。PCEが3% を超えるUVおよびNIRデュアルバンド選択的取込みTLSCが実証され、一方、平均 可視光透過率(AVT)は75%を超え、演色評価数(CRI)が90付近である。入射 太陽スペクトルの不可視部分の異なる波長選択性および効果的な利用により、本実施例は 最高の透明度において最高のTLSC PCEを報告し、透明太陽光技術の商業化への道 筋を実証する。

[0210]

(はじめに)

建材一体型光起電技術(BIPV)は、新規および既存のインフラストラクチャ表面を 30 発電源に変換することができ、伝送における電気損失を劇的に低減する。入射太陽エネル ギーからの出力を最大化するために、統合は、正面および屋上領域の両方を含む建物エン ベロープ全体にわたって展開されるべきである。側面および窓領域については、これは美 観の質がBIPVによって損なわれないことを必要とする。視覚的に透明である光起電( T P V ) 技術は太陽スペクトルのUVおよびNIR部分を選択的に取込み、可視(VIS )光が通過することを可能にし、光の不可視部分を電気に変換してオンサイトエネルギー 需要を供給する。加えて、TPVはまた、温室、(電気)自動車、(自律)モバイルエレ クトロニクスおよびテキスタイルを含む他のより小さな領域に容易に統合することができ 、 エ ネ ル ギ ー 利 用 効 率 を 実 質 的 お よ び 遍 在 的 に 改 善 す る 。  $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 1 & 1 \end{bmatrix}$ 

TPV技術の実用的な展開は、良好な美観の質(高いAVTおよびCRI)を有する高 い P C E を必要とする。したがって、太陽スペクトルの不可視部分における光の取込みを 最大化し、同時に、UV/VISおよびVIS/NIR境界における吸収カットオフ端を 正確に微調整して、可視光透過率(435~675nm)を最大化することが有益である 。過去5年間、TPVにおいて高いPCEと可視光透明性との両方を達成するための努力 がなされてきた。例えば、有機金属ハロゲン化物ペロブスカイト材料のバンドギャップを U V 選択的取込みT P V のための複合エンジニアリングによって注意深く調整された; i連 の 新 規 な 低 バ ン ド ギ ャ ッ プ ポ リ マ ー ド ナ ー お よ び 非 フ ラ ー レ ン ア ク セ プ タ が 有 機 P V デ バイスに適用され、明確なNIR選択性を有する優れた光起電性能が実証された;VIS 光子のための光出力結合層 (optical outcoupling layer)、NIR光子のための分布

Bragg反射器、および種々の種類の透明電極の利用は、可視光透明性および不可視光 子の利用を同時に強化することができる。現在、薄膜TPVのPCEは約8~10%に達 しているが、電極、活性層、および非理想的な波長選択性からのかなりの寄生吸収のため に、報告されている最高のAVTは約40~50%である。 【0212】

代替的に、透明型発光太陽光集光器(TLSC)は、導波フォトルミネセンス(PL) を介して、太陽エネルギー変換を、エッジマウントされた従来のPV電池に光学的にシフ トさせる。活性領域上に電極が存在しない場合、構造的単純性は、異なる波長選択性を有 するTLSCが可能な限り高い可視光透明性を達成することを可能にし、薄膜TPVの課 題のいくつかを回避し、製造を単純化する。NIR取込みを伴うTSLCに関する以前の 研究の多くは、光利用効率(LUE、PCExAVTに等しい)が0.7に対して、70 %を超える A V T、 制限された U V 捕捉および約 1 % までの P C E を有する吸収プロファ イルを有する。報告された最も高い半透明LSCデバイスは、2.2%のPCEを報告し 、AVTは44%(LUEは0.97)であり、茶色の色合いである。種々の波長選択性 を有する複数の発光団をLSC導波路に組み込んで、光取込みのスペクトル範囲を最大化 し、光起電性能を高め、色中立性のバランスをとることができる。ここでは、高ルミネセ ンス 燐 光 ナ ノ ク ラ ス タ ー お よ び 蛍 光 有 機 分 子 を 、 そ れ ぞ れ 単 離 UV お よ び N I R 選 択 的 取 込み発光団としてTLSCに導入する。70%を超えるQYおよびNIRへのルミネセン スの大幅なダウンシフトを示しながら、ナノクラスターはUV光子を選択的に取込む。こ れらのエミッタを効果的に対にし、NIR吸収有機蛍光団におけるナノクラスター発光の 寄生再吸収損失を防止するために、吸収/発光バンドを分離するための効果的な戦略が示 されている。対応するデュアルバンド選択的取込みTLSCは、不可視光子の有効利用お よび発光団の高いフォトルミネセンス量子収率(QY)のために、3%を超えるPCEを 示す。異なるUVおよびNIR選択性は、優れた美観の質(75%を超えるAVTおよび 90付近のCRI)を有するTLSCを提供する。これらのデュアルバンドTLSCはま た、300時間の一定の照明にわたって最小の劣化で良好な光安定性を示す。本実施例は 、(知る限り)最高のPCEを有するTLSCデバイスを報告するだけでなく、美観の点 で太陽スペクトルを効果的に利用する新規なデザインを実証する。

**[** 0 2 1 3 **]** 

(実験)

< ナノクラスターの合成 >

1) Cs 2 Mo 6 I 1 4 : Mo I 2 粉末(2A Biotech)をCs I 粉末(Sigma-Aldri ch)と、3:1の化学量論比率で均一に混合した。次いで、混合物を石英アンプル(長さ12 cm、直径1.5 cm)に移し、アンプルを真空下で密封した。アンプルを7 5 0の反応温度で7 2 時間加熱し、Cs 2 Mo 6 I 1 4 を形成した。室温まで冷却した後、アンプル中の粉末をアセトン(ワイン色の透明な溶液)に溶解し、溶解していない不純物(未反応の黒色粉末)を濾過した。Cs 2 Mo 6 I 1 4 溶液のアセトン溶媒をロータリーエバポレーターで乾燥させ、赤色のCs 2 Mo 6 I 1 4 粉末が形成した。

2) Cs 2 Mo 6 I 8 (CF 3 CF 2 COO) 6 : Cs 2 Mo 6 I 1 4 を秤量し、アセト
40 ンに溶解し、次いでペンタフルオロプロピオン酸銀(CF 3 CF 2 COO A g) (Sigm a-Aldrich)をCs 2 Mo 6 I 1 4 溶液に化学量論比6 : 1 で添加した。反応を暗所および窒素雰囲気中で4 8 時間維持した。配位子交換反応後、沈殿物AgIを濾過し、ロータリーエバポレーターで溶液を乾燥させ、オレンジ色のCs 2 Mo 6 I 8 (CF 3 CF 2 CF 3 CF 2 COO) 6 形末を得た。Cs 2 Mo 6 I 8 (CF 3 COO) 6 またはCs 2 Mo 6 I 8 (CF 3 CF 2 CF 2 COO) 6 のナノクラスターは、Cs 2 Mo 6 I 1 4 と、CF 3 COO Ag もしくはCF 3 CF 2 CF 2 COO Agとを同様の方法で反応させることによって調製することができる。

【0215】

3) COi8DFICを上述のように合成した。図15に示した反応スキームに基づい 50

30

20

てBODIPYを合成した。

#### 【0216】

< モジュール製作 >

1) U V 構成要素: C s <sub>2</sub> M o <sub>6</sub> I <sub>8</sub> ( C F 3 C F 2 C O O ) <sub>6</sub> のナノクラスター粉末 を秤量し、エタノールに溶解して、目標濃度の溶液を調製した。エタノール溶液を、封入 剤 (Fluoroshield F6182、Sigma-Aldrich)と1:2の体積比で混合した。 【 0 2 1 7】

2) NIR構成要素: BODIPYまたはCO<sub>i</sub>8DFIC粉末をジクロロメタンに溶解し、溶液を調製した。ジクロロメタン溶液を、封入剤(Shandon、Thermo Fisher Scientific)と1:1の体積比で混合した。この混合物を50.8mm×50.8mm ×6.35mm(J-V特性評価および平均EQELSCの測定用)および101.6m m×101.6mm×6.35mm(位置依存性EQELSC用)のホウケイ酸ガラス板 上にドロップキャストし、窒素ガス(O<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>O<1ppm)を充填したグローブボッ クス中で6時間乾燥させた。乾燥後、2つの構成要素を、UV硬化エポキシ(DELO) によって、2つの複合フィルムが互いに面している端部の周りに一緒に封入した。エッジ マウントGaAs PV(Alta Devices)を、受け取ったまま使用した。J-V測定用 に、2つのPV帯を、屈折率整合ゲル(Thorlabs)を使用して直交する端部上に取付け ることによって、PV帯を導波路の端部上に取付けて並列に接続した。残りの2つの端部 は、光および光の内部反射を遮断するために黒色に塗装した。EQELSC測定用に、1 つのPV帯を導波路の1つの端部に取付け、他の3つの端部を黒色に塗装した。

【0218】

【0219】

< 光 学 特 性 評 価 >

TLSCデバイスの正透過率(T())を、ダブルビームLambda 800 U V/VIS分光計を使用して透過モードで測定した。固体フィルムTLSCの透過率測定 のために参照ビーム側に参照サンプルを配置しなかった。TLSCの反射率(R()) も、試料ビーム側に設置された正反射アクセサリを有するLambda 800 UV/ VIS分光計を使用して測定した。吸収スペクトルは次の式によって得られた:A() = 1 - T() - R()。ポリマーマトリックス中のNC、BODIPYおよびCO<sub>i</sub> 8DFICのPLを、PTIQuantaMaster 40分光蛍光光度計を使用して、400 nm 、650 nmおよび650 nmでそれぞれ励起して測定した。フォトルミネセンス量子収 率を、Hamamatsu Quantaurus蛍光光度計を用いて試験した。

30

10

20

< モジュール光起電特性評価 >

Keithley 2420 SourceMeterを使用して、シミュレートされたAM 1.5Gソー ラー照明(試験されたすべてのTLSCについて1.05の計算されたスペクトル不整合 因子と組み合わされたキセノンアークランプ)の下でJ - V特性を得た。光強度を、KG 5フィルタを有するNRELで較正されたSi基準ダイオードを使用して較正した。位置 依存性EQELSC測定は、較正されたSi検出器、モノクロメータ、チョッパおよびロ ックイン増幅器を有するQTHランプを使用して行った。それぞれの距離(d)で測定さ れたEQELSC()を、幾何学的因子ファクタ= / t a n - 1(L/2d)を乗ず ることによって補正し、これは、種々の励起距離(d)でのエッジマウントPVに対する 様々な角度を説明し、LはLSC導波路長である。一連のEQELSC( )スペクトル を、同じTLSCデバイスで取得し、次いで、平均スペクトルを使用して、デバイス全体 を表し、統合して、同じデバイスの対応するJ - V特性からのJSCを確認した。J - V 測定およびEQE測定の両方について、環境からの照明または反射(ダブルパス)を排除 するために、TLSCデバイスの背面にマットブラックバックグラウンドを配置した。す べてのTLSCデバイスを同じSiまたはGaAs PV電池で試験して、性能における いかなるPV対PVの変動をも排除した。

[0220]

(結果)

デュアルバンドTLSCデバイスは図16Aに示すように、2つの分離された導波路か ら構成され、UV構成要素は1つの導波路にあり、NIR構成要素はもう一方にある。エ アギャップを利用して、各パネル内の導波発光を光学的に分離し、寄生再吸収を防止し、 スケーラビリティを高める。より実用的な展開のために、これは、性能の変化がほとんど ない低屈折率ポリマー、金属酸化物、ガラス、または接着剤で置き換えることができる。 

(44)

上部のUV構成要素は、高燐光六核ナノクラスターに基づいている(Cs2Mo6Is (CF<sub>3</sub>CF<sub>2</sub>COO)<sub>6</sub> NCの化学構造を図16Bに示す)。合成の詳細は、実験セ クションで提供する。導波路は、NC/ポリマー混合物を正方形ホウケイ酸ガラスシート 上にドロップキャスティングして均一な複合フィルムを形成することによって作製した。 ポリマー中のNCの正規化された吸収および発光スペクトルは図16Bにも示されており 、スペクトルは、UV/VIS境界でのバンド吸収カットオフおよびVIS/NIR境界 でのNIR発光開始を示し、ポリマーマトリックスにおいて、300nmを超える大幅な ダウンシフトおよび75±5の対応するQYを示し、これは、NCを、TLSC適用のた めの良好なUV選択的取込み発光団にする。

下部の導波路は、有機色素分子に基づく。有機および分子半導体において、光吸収は基 底状態から励起された分子軌道への遷移から生じる。励起された分子状態間のエネルギー 差は、状態密度に不連続性を形成する。したがって、これらのエネルギーギャップは、T PV適用において可視光子を透過するために調整することができる。本研究において、 2 つの異なる有機発光団をNIR選択的取込み器として使用した:優れた性能を有する有機 光起電において非フラーレンアクセプタとして開発されたCOi8DFIC(O6T-4 Fとも示される);およびNIRにおいて高量子収率を有する新規BODIPY分子(合) 成の詳細は実験セクションで提供する)。ポリマーマトリックス中のこれらのNIR構成 要素の分子構造、正規化された吸収および発光スペクトルをそれぞれ図16Cおよび16 Dに示す。同様に、NIR選択的取込み導波路は、均一な複合フィルムを形成するために 、 ガラスシート上に染料 / ポリマー混合物をドロップキャスティングすることによっても 作製された。COi8DFICの吸収ピークは745nm、発光ピークは808nmであ り、ポリマーマトリックス中で約60nmのストークスシフトおよび25±3のQYを示 した。COi8DFICと比較して、BODIPYの吸収ピークは狭く、ストークスシフ トは小さいが、 4 0 ± 3 %の有意に高いQ Y は N I R 発光領域の最高値であった。酸素は 三重項励起子を吸収して一重項酸素種を形成することができ、これはNCにおける非放射 再結合速度を増加させるので、QYは酸素に曝露されると有意に減少し得る。したがって 、 2 枚の複合フィルムを対向させて導波路の端部に沿ってエポキシで導波路を封入する必 要がある。

LSCの場合、発光団の発光端に隣接するバンドギャップを有するエッジマウントPV 電池を選択することが理想的である。これは、熱化による電圧損失を最小限に抑えながら 、すべての導波PLを回収し、変換することを可能にする。図16B、16Cおよび16 Dに示すように、NC、COi8DFICおよびBODIPYの3つの発光端すべてが9 00nm未満であり、したがって、GaAsは性能を最大にするための、これらの発光団 のためのほぼ理想的なエッジマウントPV電池の選択である。したがって、GaAs電池 はEQE測定のためにデュアル導波路の一方の端部上に、およびJV測定のために2つの 側部上に取付けられ、この場合、両方ともそれゆえに、等価な4つのエッジマウントにつ いて補正される。

 $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 2 & 4 \end{bmatrix}$ 

2 つの発光団の組合せ(NC+CO<sub>i</sub> 8 DFICおよびNC+BODIPY)を有する デュアルバンドTLSCデバイスを作製し、その光起電性能を特性評価した。比較のため に、NCのみ(10mg/mL)を有するTLSCを参照デバイスとして加えた。図17 A に、 A M 1 . 5 G 照 明 下 で 測 定 し た T L S C ( 5 . 0 8 × 5 . 0 8 c m <sup>2</sup> の 活 性 領 域

10

30

)の電流密度対電圧(J-V)特性を示す。NCのみのTLSCは2.5±0.2mAc m<sup>-2</sup>の短絡電流密度(J<sub>SC</sub>)、1.01±0.01Vの開回路電圧(V<sub>OC</sub>)、およ び80±1%のフィルファクタ(FF)を示し、2.0±0.1%のPCEをもたらす。 同じUV構成要素を有するTLSCに有機色素が添加されると(NC濃度は10mg/m Lに維持される)、J<sub>SC</sub>は3.6±0.2mAcm<sup>-2</sup>および3.8±0.1mAcm <sup>-2</sup>に改善される一方、同様のV<sub>OC</sub>およびFFを示し、NC+CO<sub>i</sub>8DFICおよび NC+BODIPY TLSCについて、それぞれ2.9±0.1%および3.01±0 .07%に達する対応するPCEをもたらす。図17Bに、平均位置依存性外部量子効率 (EQELSc())スペクトルを示す。NCのみのTLSCでは、EQEIsc寄与 がUV選択的取込みNCの吸光のみに由来する。EQELSCプロファイルからは、粒子 10 凝集によるレイリー散乱もエッジマウントPVの直接照明も観察されない。これはまた、 デバイスからのヘイズが非常にわずか(<10%)であることを確認する。NC+COi 8 D F I C および N C + B O D I P Y T L S C では、 U V および N I R ピークの両方が それらの対応するEQELScスペクトルに現れ、これはデュアルバンド選択的取込みに 起因する。EQELScピークの位置は、対応する発光団の吸光スペクトルと一致する。 EQELSCピークの高さは、発光団のQY値と絶対吸収スペクトルとの両方によって決 定される。同じUV構成要素を使用すると、NC寄与は、3つのTLSCすべてについて ほぼ同じである。 B O D I P Y の絶対吸収ピークがわずかに高く、 Q Y が有意に高くなる と、これらのデバイスの大きさについて、COi8DFICのものと比較して、EQE」 scピークが実質的に高くなる。光起電デバイスについてもっとも重要な一貫性検査の1 20 つとして、EQE」sc( )からの積分されたJsc [0225]【数4】

L 2X 4

 $J_{\rm SC}^{\rm Int}$ 

[0226]

[0229]

によってJ - V特性から抽出したJ<sub>SC</sub>を確認する。NCのみ、NC+CO<sub>i</sub>8DFIC およびNC+BODIPY TLSCそれぞれについて、 【0227】 【数5】

 $J_{SC}^{\ Int}$ 

【0228】 の値が2.42mAcm<sup>-2</sup>、3.60mAcm<sup>-2</sup>および3.89mAcm<sup>-2</sup>であり 、J-V曲線からのJ<sub>SC</sub>とよく一致する。NC+BODIPY TLSCにおけるBO DIPYのEQE<sub>LSC</sub>ピークはNC+CO<sub>i</sub>8DFIC TLSCのピークよりも高い が、CO<sub>i</sub>8DFICの広い吸収幅はその低い吸収ピークおよびQYを補填し、NIR構

成要素からの同様の寄与をもたらす。

40

30

ー連の位置依存性EQELScスペクトルを使用して、LSCシステムのスケーラビリ ティを理解することができる。デュアルバンドTLSCシステムをより大きな寸法(10 .16×10.16cm<sup>2</sup>)で作製し、NC+COi8DFICおよびNC+BODIP Y TLSCそれぞれについて、種々のdでの一連のEQELScを図17Cおよび17 Dにプロットする。dは正方形導波路の中心線に沿った入射励起ビームとエッジマウント PV電池との間の距離である(詳しくは実験セクションを参照されたい)。各個々のスキ ャンのUVおよびNIRピーク値の両方を抽出し、正規化し、図17Eおよび17F中の dの関数としてプロットした。NCのみ、COi8DFICのみおよびBODIPYのみ のTLSCも参考として作製した。NCの大幅なダウンシフトにより、再吸収損失はごく

(45)

わずかであるため、NCのみ、NC+COi8DFICおよびNC+BODIPY TL SCのUVピーク値は、dが増加するにつれてほぼ定数に保たれる。NCを効率的なダウ ンコンバータに置き換えて、吸収されるUV光子ごとに2つ以上のNIR光子またはIR 光子が放出させることが可能であることに留意されたい。しかしながら、COi8DFI C および B O D I P Y の両方についての吸収スペクトルと発光スペクトルとの間の著しく 強い重複のために、再吸収損失は、UVピークと比較して、NIRピーク値のより顕著な 減衰をもたらす。図17Eおよび17Fに示すように、デュアルバンドTLSCのUVお よびNIRピーク減衰挙動はそれぞれ、NCのみ、COi8DFICのみ、およびBOD IPYのみのTLSCのものと強く似ている。EQELScスペクトルの各範囲における 減衰傾向の類似性を考慮すると、導波路の分離は各導波路内の全反射を効果的に可能にし 、その結果、UVおよびNIR構成要素が独立して作動する。

美観の質は、任意のTPVデバイスの光起電性能と同様に重要であり、これはTPVデ バイスが特定の実用的な用途において展開することができるかどうかを決定する。NCの み、NC+COi8DFICおよびNC+BODIPY TLSCの透過率スペクトル( T ( ))を、比較のためにヒトの眼の明所視反応(V ( ))と共に図18Aにプロッ トする。NCはUV/VIS境界で吸収カットオフ端を示し、BODIPYは、VIS/ NIR境界でNIRバンド吸収開始を示す。しかしながら、COi8DFICの広いNI R 吸収は赤色 / N I R 領域に広がり、わずかに青色の色合いを有するより低い可視光透過 率をもたらす。T( )は、美観の質のための主な性能指数、すなわちAVT、CRIお よび C I E L A B 色空間座標 ( a <sup>\*</sup> 、 b <sup>\*</sup> )を定量化するために使用される。良好な U V 選択性により、NCのみのTLSCは、81.9%のAVTおよび91.3のCRIを示 す。デュアルバンドTLSCについて、NC+COi8DFIC TLSCのAVTおよ びCRIは65.6%および82.9%に下落する。BODIPYのより良好なNIR選 択性により、NC+BODIPY TLSCのAVTおよびCRIは、75.8%および 88.3に改善する。

 $\begin{bmatrix} 0 & 2 & 3 & 1 \end{bmatrix}$ 

(考察)

N C の み 、 N C + C O <sub>i</sub> 8 D F I C および N C + B O D I P Y T L S C の 、 美観 の 質 と光起電性能とに及ぼすNC濃度の影響を系統的に研究した。CIELAB色空間座標( 30 a \* 、 b \* )は、ガラスおよびガラス工事産業における製品の色着色の許容範囲を評価す るために一般的に利用されている。TPVの「基準光源」として、入射AM 1.5 Gは 原点(0,0)(無色または無色に近い)にあり、(a<sup>\*</sup>,b<sup>\*</sup>)座標をNC濃度の関数 として図18Bにプロットする。これらのTLSCは、NCのみの群、NC+COi8D FIC群およびNC+BODIPY群の3群に分類され、各群においてNC濃度(1、2) 、 5 、 1 0 および 2 0 m g / m L )のみが変数である。さらに、 C O i 8 D F I C のみお よびBODIPYのみのTLSCを参照として含める。図18Bに示すように、COi8 DFICまたはBODIPYの組込みは、赤色範囲へのNIR吸収の延長による a \*の負 の値をもたらす。NCのみ、NC+COi8DFIC、およびNC+BODIPY TL S C の b <sup>\*</sup> は、 N C 濃度が 1 から 5 m g / m L に 増加 することにつれて 増加 する一方、 1 0mg/mLを超える濃度にさらに増加すると、TLSCの美観の質が劇的に急落し、窓 産業に受け入れられない | b \* | 値となる(> 1 0 )。 

可視光吸収半導体材料は、TPV用途における活性層としても利用することができる。 十分に薄い厚さを有する活性層または微細セグメント構造は可視光の一部分の透過を可能 にし、それは部分的に可視光透明性を作り出す。しかしながら、光起電性能と可視光透過 率との間には直接的なトレードオフが存在する。図18日に示すように、435~675 n m の 範 囲 内 の 任 意 の 吸 収 プ ロ フ ァ イ ル は 、 A V T 、 C R I の 急 激 な 低 下 、 お よ び C I E LAB原点からの(a^、b^)の増大した偏差をもたらし得る。したがって、このタイ プのデバイスは、「半透明」PVまたは非波長選択的TPVと呼ばれることがある。不透

(46)

20

10

明PVに対する理論的ショックレー・クワイサー(SQ)限界は33.1%であるが、A VTが90%に増加することにつれて非波長選択的TPVのPCEは0%に近づく。非波 長選択的TPVのSQ PCE限界を図19Aに示す。UV(<435nm)およびNI</p> R 光子(> 6 7 5 n m)のみの取込みからの波長選択的 T P V または T L S C の S Q P C E 限界は 2 0 % ( 2 0 . 6 % ) を超え、 A V T は 1 0 0 % ( 9 9 . 4 % ) に近づく。 S O限界線の右側の領域は、波長選択的アプローチでのみ達成可能な標的 PCEとAVTと の組合せを反映する。TLSCの3群すべて(CO;8DFICのみおよびBODIPY のみの参照を含む)のAVT(60~100%幅)の関数としてのPCEを図19Aにプ ロットする。COi8DFICのみおよびBODIPYのみの参照TLSCは、追加の板 ガラスを用いて封入する必要がないことに留意されたい。構造の単純さは、それらの反射 損失を低減し、したがって、スペクトル全体にわたって全体的な透過率を改善する。これ らすべてのデバイスの中で、BODOIPYのみのTLSCは、良好なNIR選択性のた めに、SQ PCE限界線に最も近い。NC濃度が1から10mg/mLに増加すること につれて、 N C のみの群の P C E 対 A V T 傾向線は、 可視光へのテール吸収のために 1 0 mg/mLを超えて逸脱し始めるまで、SQ PCE限界線とほぼ平行な傾向を維持する 。<br />
NC+CO<sub>i</sub>8DFIC群およびNC+BODIPY群も、NC濃度が増加することに つれて同様の傾向を示し、NIR構成要素の組込みは、わずかに減少したAVTを伴い、 3%(最大3.4%)を超えて、デュアルバンド選択的取込みTLSCシステムのPCE を有意に改善する。光利用効率(LUE、PCEとAVTの積として定義される)は、同 じスケールで A V T 値 が 異 な る レ ベ ル で あ る T P V を 系 統 的 に 比 較 す る た め の 測 定 基 準 を 提供する。図19Bに、対応するAVTの関数としてのすべてのTLSCのLUEを、S Q LUE限界線と共にプロットする。エアギャップまたは赤色範囲へのNIR吸収の延 長はわずかに低減されたAVTレベルをもたらすが、LUEはデュアルバンド選択的取込 みに起因する著しい改善を依然として獲得する。すなわち、デュアルバンドTLSCシス テムは発電のために不可視光子をより効果的に利用することができ、同時に、良好な美観 の質を示すことができる。

【0233】

T P V および T L S C 限界に近づくための性能をさらに増加させるためのアプローチを 考察する。 < 4 3 5 n m の 光子束は A M 1 . 5 G の わずか 約 8 % である。 > 4 3 5 n m の光の取込みは、黄色または茶色の色合い(正のb^値)を急速に引き起こす可能性があ り、これは、多くの窓用途には受け入れられない。対照的に、675nmとエッジマウン トPV電池(例えば、Si、GaAsなど)の吸収カットオフとの間のNIR範囲はAM 1.5G光子束のピークと一致し、これは、発電のための著しくより大きな可能性を有す る。赤色範囲に延長される吸収であっても、結果として生じる青色の色合い(負のa^値 )はより視覚的に許容可能であり、これは、 N I R 選択的取込み発光団のためのより多く の設計自由度を提供し、過度の黄色の色合いから不十分なb^値を補填することさえも助 けることができる。量子ドットおよびナノクラスターを含む種々のUV吸収発光団のQY は近年、80%を超えるまで徐々に改善されており、さらなる改善は、困難になるだけで なく、むしろ制限されることになる。比較すると、NIR発光団のQYは、現在20~3 5%の範囲である。しかしながら、QYを60~80%まで改善するための化学的設計に よる大きな見込みが依然としてある。図17Bに示すように、NC+BODIPY TL SCについて、NCピークはBODIPYピークよりもはるかに強いが(QYが高く、N Cの再吸収損失が少ないため)、NIR構成要素からの寄与は、UV構成要素からの寄与 と同等である(2.4mA/cm<sup>2</sup>対1.5mA/cm<sup>2</sup>)。したがって、TLSC開発 のための将来の努力は、主に以下に焦点を当てるべきである:1)NIR選択的取込み発 光団のQYの改善(美観を変えることなくNIR寄与の2~3倍の増強を可能にする); 2)より高い可視光透過率およびより良好な演色性のためのUV/VISおよびVIS/ N I R 境界付近の明確な波長選択性;3)再吸収損失を抑制するためのN I R 発光団の吸 収 ス ペ ク ト ル お よ び 発 光 ス ペ ク ト ル の 分 離 。 U V お よ び N I R 構 成 要 素 の 両 方 で 約 8 0 % のQYと理想的な波長選択性を持つデュアルバンドTLSCを考慮すると、J<sub>SC</sub>寄与の

10

20

30

大部分(> 7 5 %)はそのNIR構成要素に由来するべきであり、AVT>80%とCR I>90との両方で、全体のPCEは約7%であると予想される。このPCEおよびAV Tの組合せは、図19Aおよび19Bに示されるSQ PCEおよびLUEの線の上に十 分に位置し、これは最も実用的な用途での展開に適している。 【0234】

光子バランスは、各波長におけるEQELSC()、T()、反射率R()を含む独立した測定の妥当性を確認するために必要な一貫性検査である。本研究におけるすべてのTLSCデバイスの光子バランスは、図20A~02Cに一貫して示す。長寿命性能は、実社会での展開のもう1つの重要な機能である。NCのみ、NC+COi8DFICおよびNC+BODIPY TLSCのすべての光安定性を研究した。NCのみ、NC+COi8DFICおよびNC+BODIPYについての吸収スペクトル(A)、EQELSCおよび内部量子効率(IQELSC)の正規化された吸収ピーク値を、一定の照明下での時間関数として、図21A~21Cにプロットする。すべてのパラメータは300時間の一定の照明後にほぼ一定のままであり、したがって、これらのTLSCデバイスは、優れた光安定性を示す。

【0235】

要約すると、UVおよびNIR選択的取込み発光団として、高度発光性の燐光六核金属 ハロゲン化物ナノクラスターおよび有機発光団を組み合わせることによって、デュアルバ ンド選択的取込みTLSCデバイスを設計し、実証した。太陽スペクトルのUVおよびN IR部分の両方から不可視光子を取り込むことはPCE>3%をもたらし、UV/VIS およびVIS/NIR境界における正確な波長選択性はAVT>75%および90付近の CRIをもたらす。このアプローチは、NIR量子収率がさらに改善されるにつれて、1 0%に近い効率を有するデバイスをもたらす。高い光起電性能、優れた美観の質および長 期の光安定性により、本実施例は複数の用途における発電源として配備されるTLSC技 術のひときわ優れた可能性を明らかにし、太陽エネルギーを効果的および遍在的に利用す るための道筋を提供する。

[0236]

上記の実施形態の説明は、例示および説明を目的として与えられている。これらの説明 は、網羅的であることも、本開示を限定することも意図していない。特定の実施形態の個 々の要素または特徴は、一般的に、当該特定の実施形態に限定されず、適用可能であるな らば相互に交換可能である。また、これらの要素または特徴は、たとえ具体的に明示また は説明されていなくとも、選択した実施形態において使用できる。これらの要素または特 徴は、多様に変形してもよい。このような変形例を本開示からの逸脱と見なすべきではな く、このような改変はすべて本開示の範囲の範囲内に含まれることが意図される。

【図面の簡単な説明】

【0237】

【図1A】本技術の種々の態様によるTLSCの概略図である。

【 図 1 B 】本技術の種々の態様による、 図 1 A の T L S C と相互作用する光の概略図であ る。

【 図 2 A 】本技術の種々の態様による、導波路内に発光団が埋め込まれている T L S C の 40 概略図である。

【図2B】本技術の種々の態様による、導波路の表面上に発光団が直接配置されているTLSCの概略図である。

【図2C】本技術の種々の態様による、導波路の表面上に発光団を含むフィルムが直接配置されているTLSCの概略図である。

【図 3 A】本技術の種々の態様による、光起電池が導波路の端部上に配置されている TL SCの概略図である。

【図3B】光起電池が導波路の表面上に配置されているTLSCの概略図である。

【図3C】光起電池が導波路の第1の表面上に配置され、波長固有ミラーが導波路の端部 上に配置されているTLSCの概略図である。

10

20

【図3D】導波路および発光団を含むTLSCの概略図である。 【 図 3 E 】 導 波 路 お よ び 発 光 団 を 含 む TLSCの 概 略 図 で あ る。 【図3F】導波路および発光団を含むTLSCの概略図である。 【図4】本技術の種々の態様による波長依存性ミラーを含む例示的なTLSCの概略図で ある。 【図5A】本技術の種々の態様による透明デュアルバンドデバイスの概略図である。 【図5B】線5B/5Cに沿った図5Aの透明デュアルバンドデバイスの図である。 【図5C】線5B/5Cに沿った図5Aの透明デュアルバンドデバイスの図である。 【図6A】近赤外(NIR)取込み波長選択的透明発光型太陽光集光器(TLSC)の動 作原理の概略図である。 【 図 6 B 】 近 赤 外 ( N I R ) 取 込 み 波 長 選 択 的 透 明 発 光 型 太 陽 光 集 光 器 ( T L S C ) の 動 作原理の概略図である。 【 図 6 C 】 近 赤 外 ( N I R ) 取 込 み 波 長 選 択 的 透 明 発 光 型 太 陽 光 集 光 器 ( T L S C ) の 動 作原理の概略図である。 【図7A】Coi8DFICの合成反応を示す。 【図7B】ITICの分子構造を示す。 【図 8 A 】 2 つの異なるポリマーマトリックスに埋め込まれたCO<sub>i</sub> 8 D F I C の正規化 された吸収スペクトル(青色)および発光スペクトル(赤色)を示すグラフである。 【図8B】溶液、ポリマーマトリックスフィルム、純フィルム、および粒子凝集体におけ る、COi8DFICの正規化された吸収の比較を示す。 【図 9 A】異なる濃度のCO<sub>i</sub> 8 D F I C T L S C の電流密度対電圧(J - V)特性を 示すグラフである。 【図9B】異なる濃度のCOi8DFIC TLSCの平均EQELSc( )スペクト ルを示す。 【図9C】異なる濃度のCOi8DFIC TLSCの正規化された位置依存性EQEL scピーク値を示す。 【図10A】C y 7-NHSを使用したTLSCの絶対吸収およびEQE<sub>LSC</sub>スペクト ルを示す。 【図10B】COi<sub>8</sub>DFIC 150mgL<sup>-1</sup>を使用したTLSCの絶対吸収および EQELScスペクトルを示す。 【 図 1 0 C 】エッジマウント P V としての G a A s を使用した実用的 限界に達する T L S Cを示す図である。 【図11A】発光団がCy7-NHSである、異なるエッジマウントPVおよびG因子を 有するTLSCのEQE」scおよび積分されたJSCの平均の比較を示す図である。 【図11B】発光団がCoi8DFICである、異なるエッジマウントPVおよびG因子 を有するTLSCのEQELScおよび積分されたJSCの平均の比較を示す図である。 【図12A】Cy7-NHSについて、TLSCデバイスの測定した透過率、反射率、吸 光度、EQELSc( )スペクトル、および光子バランスチェックを示す図である。 【図12B】異なる濃度のCoi8DFIC(図12B~図12F)について、TLSC デバイスの測定した透過率、反射率、吸光度、EQELSc( )スペクトル、および光 子バランスチェックを示す図である。 【図12C】異なる濃度のCoi8DFIC(図12B~図12F)について、TLSC デバイスの測定した透過率、反射率、吸光度、EQELSc( )スペクトル、および光 子バランスチェックを示す図である。 【図12D】異なる濃度のCoi8DFIC(図12B~図12F)について、TLSC デバイスの測定した透過率、反射率、吸光度、EQELSc( )スペクトル、および光 子バランスチェックを示す図である。 【図12E】異なる濃度のCoi8DFIC(図12B~図12F)について、TLSC デバイスの測定した透過率、反射率、吸光度、EQELSc( )スペクトル、および光 子バランスチェックを示す図である。

(49)

30

40

50

20

10

20

30

【図12F】異なる濃度のCoi8DFIC(図12B~図12F)について、TLSC デバイスの測定した透過率、反射率、吸光度、EQELSc( )スペクトル、および光 イバランスチェックを示す図である。 【図13A】「150mgL<sup>-1</sup>」TLSCデバイスの各波長における測定した透過率、 反射率、吸光度、EQELSc( )スペクトル、および光子バランスチェックを示すグ ラフである。 【図13B】CIELAB色空間におけるCO<sub>i</sub>8DFIC TLSCの色座標(a<sup>\*</sup>、 b<sup>\*</sup>)を示す図である。 【図13C】G a A s P V でエッジマウントされた「150mgL<sup>-1</sup>」および「30 0 m g L <sup>-1</sup>」 T L S C の電流密度対電圧(J - V)特性であって、挿入図はG a A s PVでエッジマウントされた同じ2つのTLSCの平均EQE<sub>LSC</sub>()スペクトルを 示す。 【図13D】すべてのTLSCデバイスの写真である。 【図14A】IEICO-4Fの分子構造を示す。 【図14B】ポリマーマトリックス(Eukitt)に埋め込まれたCOi8DFIC(実線 )およびIEICO-4F(破線)の正規化された吸収(青色)スペクトルおよび発光( 赤色)スペクトルを示すグラフである。 【図14C】COi8DFICおよびIEICO-4Fを発光団として有するTLSCの EQELSCと積分されたJSCの平均を示すグラフである。 【図14D】IEICO-4Fを有するTLSCの光子バランスを示すグラフである。 【図15】BODIPYの合成反応を示す。 【図16】デュアルバンド選択的取込み透明発光型太陽光集光器(TLSC)の構造およ び動作原理を示す概略図である。 【図17A】NC+CO<sub>i</sub>8DFIC、およびNC+BODIPY TLSCの電流密度 (J - V)特性を示すグラフである。 【図17B】NCのみ、NC+CO<sub>i</sub>8DFIC、およびNC+BODIPY TLSC の平均EQELSc()スペクトルを示す。 【図 1 7 C】N C + C O i 8 D F I C T L S C の絶対位置依存性 E Q E i s c スペクト ルを示す。 【図17D】NC+BODIPY TLSCの絶対位置依存性EQE<sub>LSC</sub>スペクトルを 示す。 【図17E】NC+CO<sub>i</sub>8DFIC TLSCの正規化された位置依存性EQE<sub>LSC</sub> ピーク値を示す。 【図17F】NC+BODIPY TLSCの正規化された位置依存性EQELSCピー ク値を示す。 【図18A】比較のためのヒト眼(V( ))の正規化された明所視反応とともに示す、 NCのみ、NC+COi8DFIC、およびNC+BODIPY TLSCの透過スペク トルを示す。 【図18B】NCのみの群、NC+COi8DFICの群、およびNC+BODIPYの 群のTLSCのCIELAB色空間における(a^、b^)座標である。 【図19A】NCのみの群、NC+CO<sub>i</sub>8DFICの群、NC+BODIPのY群、C O ; 8 D F I C のみ、および B O D I P Y のみの T L S C についての電力変換効率( P C E)対平均可視光透過率(AVT)を示すグラフである。 【図19B】NCのみの群、NC+CO;8DFICの群、NC+BODIPのY群、C O ; 8 D F I C のみ、および B O D I P Y のみの T L S C についての光利用効率(L U E = P C E × A V T ) 対 A V T を示す グラフである。 【図20A】ナノクラスターのみを含むデバイスの、T、R、AおよびEQEを含む光子 バランスを示すグラフである。 【図20B】ナノクラスターおよびCOi8DFICを含むデュアルバンドデバイスの、 T、R、AおよびEQEを含む光子バランスを示すグラフである。

(50)

50

【図20C】ナノクラスターおよびBODIPYを含むデュアルバンドデバイスの、T、 R、 A および E Q E を含む光子バランスを示すグラフである。

【図21A】NCのみのデュアルバンドTLSCの光安定性調査を示している。

【図 2 1 B】NC+CO<sub>i</sub> 8 D F I C デュアルバンドT L S C の光安定性調査を示して いる。

【図21C】NC+BODIPY デュアルバンドTLSCの光安定性調査を示している。 【図面】 【図1B】

【図1A】

26 Fig. 1A



Fig. 1B

【図 2 A】

【図2B】



000 0 С 00 Ο Ο Ο Ο 16 Fig. 2B

30

40

10

(52)





## 【図3B】

【 🛛 3 C 】





<u>Fig. 3C</u>

30

20

10









<u>1 ig. or</u>

【図 3 F】



<u>Fig. 3F</u>



20



100

11,4

6

18

112

114

14-

106

110

104

Ĵ₩<sub>G</sub>

12

102

26

<u>Fig. 5A</u>



【図 5 C】







【図68】

<u>Fig. 6B</u>



【図6C】

図 6C



30

20





【図78】







500

600

700

波長 (nm)

800

900

0.2

0.0∟ 400



発光(赤)



20





<u>Fig. 9A</u>



【図9C】



【図10A】



【図10B】

図 10B



【図10C】

図 10C



30

10

2.0

0

0.0

900

(mAcm<sup>2</sup>

SC 0.5

【図11B】

20

15

5

0 400

 $EQE_{LSC}\%$ 

【図12B】

w/ CO<sub>i</sub>8DFIC

#2

#4

#1

#3

600

500





【図12A】





図 12B

図 11B

700 700 800 波長(nm)

20

10







【図12D】

図 12D



30



図 13A

【図13A】

【図12E】



図 12F



【図13B】



30

20

10







【図13D】



<u>Fig. 13D</u>

20

【図14A】



IEICO-4F

Fig. 14A

【図148】



30

- IEICO-4F

т













【図14D】



図 14D

【図16】



20

10







【図178】



【図17C】



【図17D】



【図17E】



【図17F】



30

10

20





【図18日】



10





【図20A】





【図19B】



【図 2 0 B】









【図21A】

図 21A



10

【 🛛 2 1 B 】



【図21C】

図 21C



20

30

50

## 【国際調査報告】

	INTERNATIONAL SEARCH REPOR	r In	ternational appli PCT/US2021	cation No. /013946
A. CLA: IPC(8) - <sup>H</sup> CPC - H	SSIFICATION OF SUBJECT MATTER 101L 31/055; G02B 6/00; F24S 23/00; H01L 101L 31/055; G02B 6/0076; F24S 23/12; G0	31/054 (2021.01) 2B 6/0003; H01L 31/(	0547 (2021.02	2)
According to	International Patent Classification (IPC) or to both n	ational classification and	IPC	
Minimum do	aumentation encoded (close) firstion system followed by	alassification symbols)		
see Search H	listory document	classification symbols)		
Documentati	on searched other than minimum documentation to the ex	tent that such documents a	e included in the	fields searched
see Search H	listory document			
Electronic dat	ta base consulted during the international search (name o	f data base and, where prac	ticable, search ter	ms used)
see Search H	listory document			
C. DOCUN	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category*	Citation of document, with indication, where appr	opriate, of the relevant pa	ssages	Relevant to claim No.
×	WO 2019/217583 A1 (BOARD OF TRUSTEES OF MI	CHIGAN STATE UNIVER	SITY) 14	1, 2, 4-7
Ÿ	November 2019 (14.11.2019) entire document			 1, 3, 7-16
Y	US 2015/0287864 A1 (LEIDOS, INC.) 08 October 201	5 (08.10.2015) entire docu	iment	1, 7, 11-16
Y	US 2018/0019355 A1 (UNIVERSITA' DEGLI STUDI D (18.01.2018) entire document	I MILANO - BICOCCA) 18	January 2018	3
Y	US 2009/0205701 A1 (GOVAERTS et al) 20 August 2	009 (20.08.2009) entire do	cument	3
Y	US 2019/0226720 A1 (GLOWSHOP, LLC) 25 July 20	19 (25.07.2019) entire doc	ument	8
Y	US 7,745,724 B2 (BALASUBRAMANIAN et al) 29 Jun	e 2010 (29.06.2010) entire	document	9, 10
Y	US 2014/0130864 A1 (LUNT et al) 15 May 2014 (15.0	5.2014) entire document		15
A	Cnops et al. Energy Level Tuning of Non-Fullerene Ac Cells. Journal of the American Chemical Society Vol. <https: 10.1021="" doi="" jacs.5b02808="" pubs.acs.org=""> entir</https:>	ceptors in Organic Solar 137 24 June 2015. e document		9, 10
A	US 2019/0326460 A1 (CALIFORNIA INSTITUTE OF 1 (24.10.2019) entire document	FECHNOLOGY et al) 24 O	ctober 2019	1-16
Furthe	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent fan	nily annex.	
<ul> <li>Special ( "A" docume to be of</li> </ul>	categories of cited documents: nt defining the general state of the art which is not considered particular relevance	"T" later document public date and not in confl the principle or theor	shed after the interr ict with the applica y underlying the is	national filing date or priority ation but cited to understand ivention
"D" docume: "E" earlier a filing da	nt cited by the applicant in the international application pplication or patent but published on or after the international te	"X" document of particul considered novel or c when the document i	ar relevance; the ( annot be considere s taken alone	claimed invention cannot be d to involve an inventive step
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)				
"P" documes the prior	In reserving to an oral disclosure, use, exhibition of other means it published prior to the international filing date but later than 'ity date claimed	"&" document member of	the same patent fa	amîly
Date of the a	ctual completion of the international search	Date of mailing of the in	ternational searc	h report
30 April 2021		MAY	24 2021	
Name and m Mail Stop PC	ailing address of the ISA/US T, Attn: ISA/US, Commissioner for Patents D. Alexandria, VA 22313-1450	Authorized officer Blair	e R. Copenheav	er
Facsimile No	0. 571-273-8300	Telephone No. PCT He	lpđesk: 571-27	2-4300
orm PCT/IS/	V210 (second sheet) (July 2019)	L		

10

20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT	International application No.
	PCT/US2021/013946
Box No. 11 Observations where certain claims were found unsearchable (Contin	nuation of item 2 of first sheet)
This international search report has not been established in respect of certain claims under	ler Article 17(2)(a) for the following reasons:
1. Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Autho	prity, namely: 1(
<ol> <li>Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:</li> </ol>	y with the prescribed requirements to such an
3. Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the s	second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box No. 111 Observations where unity of invention is lacking (Continuation of ite	em 3 of first sheet) 20
This International Searching Authority found multiple inventions in this international ap See extra sheet(s).	plication, as follows:
<ol> <li>As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this in claims.</li> <li>As all searchable claims could be searched without effort justifying additional additional fees.</li> <li>As only some of the required additional search fees were timely paid by the apponly those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:</li> </ol>	aternational search report covers all searchable fees, this Authority did not invite payment of oplicant, this international search report covers
<ul> <li>4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequent to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:</li> <li>1-16</li> </ul>	ntly, this international search report is restricted
Remark on Protest       The additional search fees were accompanied by the payment of a protest fee.         The additional search fees were accompanied by the fee was not paid within the time limit specified in the No protest accompanied the payment of additional search fees were accompanied by the fee was not paid within the time limit specified in the No protest accompanied the payment of additional search fees were accompanied by the fee was not paid within the time limit specified in the No protest accompanied the payment of additional search fees	e applicant's protest and, where applicable, the e applicant's protest but the applicable protest he invitation. search fees.

(65)

Form PCT/ISA/210 (continuation of first sheet (2)) (July 2019)

.

INTERNATIONAL STARCH OFDOOT			
in i Erna I Umal Jeanch Ref VRI	International application No.		
	FG170620211013940		
Continued from Box No. III Observations where unity of invention is lacking			
This application contains the following inventions or groups of inventions which are not so concept under PCT Rule 13.1. In order for all inventions to be examined, the appropriate is the appropriate is a second s	b linked as to form a single general inventive additional examination fees must be paid.		
Group I, claims 1-16, is drawn to a transparent luminescent solar concentrator (TLSC) co- greater than or equal to about 1.	mprising a light utilization efficiency (LUE) of		
Group II, claims 17-32, is drawn to a transparent luminescent solar concentrator (TLSC) o of greater than or equal to about 1% and an ib*l value of less than or equal to about 25.	comprising a power conversion efficiency (PCE)		
Group III, claims 33-76, is drawn to a transparent luminescent solar concentrator (TLSC) strongest absorbance maximum and a strongest peak emission greater than or equal to a	comprising: a luminophore having both a about 650 nm.		
The inventions listed as Groups I, II and III do not relate to a single general inventive conc Rule 13.2, they lack the same or corresponding special technical features for the following Group I invention: a light utilization efficiency (LUE) of greater than or equal to about 1 as of Groups II and III. The special technical feature of the Group II invention: a power corve to about 1% and an Ib <sup>1</sup> value of less than or equal to about 25 as claimed therein is not p special technical feature of the Group III invention: a power corve qual to about 650 nm as claimed therein is not present in the invention of Groups I or II.	cept under PCT Rule 13.1 because, under PCT g reasons: the special technical feature of the claimed therein is not present in the invention resion efficiency (PCE) of greater than or equal present in the invention of Groups I or III. The d a strongest peak emission greater than or		
Groups I, II and III lack unity of Invention because even though the invantions of these gro transparent luminescent solar concentrator (TLSC) comprising: a luminophora; and a wav luminophore, this technical feature is not a special technical feature as it does not make a	oups require the technical feature of a veguide that guides light emitted from the a contribution over the prior art.		
Specifically, US 2019/0326460 to California Institute of Technology teaches a transparent comprising: a luminophore; and a waveguide that guides light emitted from the luminopho	t luminescent solar concentrator (TLSC) ore (Paras. [0035-0036], [0046]).		
Since none of the special technical features of the Group I, II or III inventions are found in invention is lacking.	more than one of the inventions, unity of		

Form PCT/ISA/210 (extra sheet) (July 2019)

.

10

20



#### フロントページの続き

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,N E,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU, CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IR,IS,IT,JO,JP,K E,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,N G,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM, TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

州 , ホルト , メドーラーン ドライブ 2176

(72)発明者 ボルハン,ババク

アメリカ合衆国,48864 ミシガン州,オケモス,ミラボー ドライブ 1835

(72)発明者 モエメニ,メディ

アメリカ合衆国,48864 ミシガン州,オケモス,ノブ ヒル ドライブ 2283

(72)発明者 ベイツ,マシュー
 アメリカ合衆国,48823 ミシガン州,イースト ランシング,アーバー グレン ドライブ 1
 80,アパートメント 203

F ターム(参考) 5F151 JA25