

論文審査の結果の要旨

氏名 西岡 拓紀

本論文は四章から構成されており、第一章は序論、第二章はベンゾジピロール(BDP)骨格の合成的誘導化によるペロブスカイト太陽電池における正孔輸送材料の開発について、第三章は炭素架橋オリゴ(p-フェニレンビニレン)(COPV)骨格を有する高発光性ポリマーの合成開発とその有機固体レーザーへの応用について、そして第四章は結論および今後の展望について、それぞれ述べている。

第一章では、有機デバイスにおけるπ共役系化合物の重要性について述べている。π共役系材料はその特徴的な光物性および電気特性により、有機デバイスにおいて中心的な役割を担っていると、骨格や側鎖、置換基の適切な選択を通してそれらの物性を精密に制御したπ共役系材料の新規開拓が色、性能および安定性といった有機デバイスの多様性に繋がり、広い応用を可能にするものと述べている。その上で、研究室において以前より研究されてきたπ共役系骨格を有機デバイスへの応用を見据えた適切な誘導化が本論文での主要な論点として述べられている。

第二章では、ベンゾジピロール(BDP)骨格の合成的誘導化によるペロブスカイト太陽電池における正孔輸送材料の開発について述べている。提出者が以前得た水溶性置換基を導入したBDP誘導体が有機薄膜太陽電池において良好な性能を示す知見から、その発展として側鎖や芳香族置換基を理論計算・合成の両方の側面から系統的に検討することにより、ペロブスカイト太陽電池において最適な化合物を得ることに成功している。側鎖が薄膜の表面形状に影響する一方で、芳香族置換基が分子のエネルギー準位を変化させ、これらの両方が太陽電池の性能に影響を与えることを明らかとし、17.2%の光電変換効率を達成している。また、本研究で得られた材料は中性でかつ吸湿性が少なく、素子の安定性にも大きく寄与していることを明らかとしている。

第三章では、炭素架橋オリゴ(p-フェニレンビニレン)(COPV)骨格を有する高発光性ポリマーの合成開発とその有機固体レーザーへの応用について述べている。発光ポリマーにおいて長波長の発光は青や緑のものと比較して発光効率が50%以下と低く、それはエネルギーギャップが

狭まることや、パイ共役系の拡張に伴う振動による無放射失活が主な原因だと述べている。これに対し、剛直な骨格であり、ほぼ 100%の発光効率を示す COPV 骨格を用いることによりこれらの無放射失活を抑制することが高発光効率を得るのに効果的であると述べている。COPV のホモポリマーや、様々な共重合体を合成することにより、発光波長を 416 nm から 667 nm まで制御することに成功している。青から緑の領域では 80%以上の発光効率を示す一方で、橙色・赤色発光においても 68%・50%と良好な発光効率を得ることに成功している。蛍光寿命測定により、実際に COPV 骨格が無放射失活を抑制し、放射失活の効率を上昇させていることを明らかとしている。また、COPV が有機固体レーザーにおいて良好な発光特性を示す一方、短波長の発光を示すものは安定性に問題があったという点に着目し、本研究で得られるポリマー材料は反応性末端がポリマー化により保護されているという点から、有機固体レーザーにおいてもポリマー材料の有用性を示している。

第四章は本研究の総括として、本研究で得られた材料・知見の今後の展望について論じている。本研究で BDP 材料はペロブスカイト太陽電池への応用を示したが、有毒な鉛に代わる発電層についても構造の制御により対応可能であると、また COPV ポリマーについては電界発光の例として OLED 構造での発光に予備的な実験ながらも成功しており、いずれも将来性を期待できるものである。

以上のように、本研究は太陽電池や発光素子といった有機デバイスの高性能化にあたって合成的手法による材料開発の重要性を示したものであり、骨格の選択や側鎖の重要性、置換基による機能付加の点で基礎的かつ重要な知見を与えたものであると評価できる。高効率な有機デバイスを達成するために必要な材料の合成手法を提供し、今後さらに幅広く有機デバイスへ応用する足場となっている点も重要である。

なお、本論文は複数の研究者との共同研究であるが、研究計画および検討の主体は論文提出者であり、論文提出者の寄与が十分であると認められる。

したがって、本論文は博士(理学)を授与できる学位論文として価値のあるものと認める。