

審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 林 晃 升

本論文は”Design and Functionalization of Fullerenes for High-Performance Perovskite Solar Cells (高性能ペロブスカイト太陽電池のためのフラーレンの設計と機能化)”と題し、次世代の太陽電池として期待されるペロブスカイト型太陽電池の電子輸送層やパッシベーション層としてフラーレン混合層やフラーレン誘導体薄膜を作製し、高性能化を実現したものであり、全7章から構成される。

第1章は、Introduction (序論)であり、フラーレンおよびフラーレンカチオンの様々な誘導体の有機化学合成と化学的特徴について系統的に議論するとともに、有機薄膜太陽電池およびペロブスカイト型太陽電池におけるフラーレンおよびフラーレン誘導体の応用の現状について議論している。

第2章は、Purpose, Challenges and Structure of the Thesis (研究目的と論文構成)である。有機薄膜太陽電池においては、フラーレンやフラーレン誘導体が活性層における電子アクセプター材料として標準的に用いられ、様々なフラーレン誘導体の開発が進んでいる。一方、ペロブスカイト型太陽電池においては優れた電子輸送層およびヒステリシスを低減させるパッシベーション層としてのフラーレン応用が期待されることを議論している。

第3章は、Interlayer morphology of fullerenes (フラーレン薄膜のモフォロジー)である。フラーレンを用いた電子輸送層においては、真空蒸着による C_{60} 薄膜の利用が進んでいるが、フラーレン誘導体である PCBM を用いた溶液プロセスでは、高性能化が困難であることが知られていた。この原因が溶液プロセスにおけるフラーレン結晶の成長にあることを突き止め、 C_{60} と C_{70} の混合フラーレンを用いてアモルファス構造とすることで解決している。

第4章は、Electron-transport mobility of fullerenes (フラーレンによる電子輸送)である。フラーレンカチオン化学の手法を用いた独創的な有機化学反応を提案

し、五員環フラーレン誘導体(Full-carbon Indano Fullerene, FIF)を高効率に合成することに成功している。また、このフラーレン誘導体をペロブスカイト型太陽電池の電子輸送層として用いて、優れた性能を実証している。

第5章は、Passivation effect of fullerenes (フラーレンのパッシベーション効果)である。第4章で議論した五員環フラーレン誘導体のアルコキシ基の酸素原子の孤立対電子がペロブスカイト結晶表面の Pb 原子および電子輸送層である SnO₂ 表面の Sn 原子に配位することで、ペロブスカイト／電子輸送層界面を安定化させる効果を明らかにした。また、このフラーレン誘導体をパッシベーション層として用いることで、ペロブスカイト型太陽電池のヒステリシスの大幅な低減を示した。さらに、典型的なペロブスカイト結晶(MAPbI₃)を用いた太陽電池における世界記録となる 20.7%の光電変換効率を実現している。

第6章は、Evaporable fullerene-fused ketone as ETL (電子輸送層としての蒸着可能フラーレンケトン)である。第4章で合成した五員環フラーレン誘導体(FIF)のアルコキシ基をケトン基にかえる高収率な酸化反応を実現し、CuBr₂を触媒とする反応メカニズムを詳細に議論している。また、生成物であるフラーレンケトンは高温安定性に優れ、従来のフラーレン誘導体では不可能であった、真空蒸着による薄膜形成が可能であることを示している。

第7章は、Conclusions (結論) であり、上記の研究結果をまとめたものである。

以上要するに本論文は、ペロブスカイト型太陽電池において、フラーレン C₆₀ と C₇₀ の混合により高性能な電子輸送層が実現できること、独自に開発した高収率有機化学反応によって実現したフラーレン誘導体によって極めて高性能なパッシベーション層が実現することを実証している。本論文は、ナノマテリアルの合成制御および光電変換デバイスに関する新たな知見を与えており、ナノ材料工学及び分子熱工学の発展に寄与するものだと考えられる。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。