



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Optimization of nanoarchitectures for high-performance planar perovskite solar cells [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Shalan, Ahmed Esmail Kamal
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(情報科学)
Dissertation Number	甲第12635号
Issue Date	2017-03-23
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/65847
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Ahmed_Esmail_Kamal_Shalan_review.pdf, 審査の要旨



学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士 (情報科学) 氏名 Ahmed Esmail Kamal Shalan

審査担当者 主 査 教 授 三澤 弘明

副 査 教 授 橋本 守

副 査 准教授 上野 貢生

学位論文題名

Optimization of nanoarchitectures for high-performance planar perovskite solar cells

(高性能ペロブスカイト太陽電池に向けたナノ構造の最適化)

低炭素化社会を実現するためには、再生可能な太陽光エネルギーを高効率にエネルギー変換することが求められている。シリコン (Si) 太陽電池は、発明以来 60 年以上の開発の歴史があり、広く普及している。一方、2009 年に宮坂らは、ペロブスカイト (PSK) 構造を有する鉛ヨウ化物ペロブスカイト ($\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$) を発電部に使用した PSK 太陽電池を発明した。PSK 太陽電池は作製工程が簡便なため、Si 太陽電池に比べて低コストで作製でき、現在、多くの研究者によって光エネルギー変換効率や耐久性向上を目的とした研究が盛んに行われている。

PSK 太陽電池の発電原理は、Si 太陽電池の pn 接合による光起電力効果に基づくものとは異なり、PSK 半導体の光吸収により励起された電子が PSK の電子伝導帯から電子輸送層に、価電子帯の正孔が正孔輸送層に移動して電荷分離が誘起されることに基づく。PSK の励起子は比較的長い寿命を有し、効率良く電荷分離するが、より効果的な電荷分離を実現するためには PSK 層の薄膜化が求められる。しかし、光吸収とのトレードオフの関係から現状では適度な厚みを確保する必要がある。また、報告されている多くの PSK 太陽電池の電子輸送層、並びに正孔輸送層は、有機物で構成されているため、耐久性や安定性は十分ではない。そのような観点から、著者は、PSK 太陽電池の光エネルギー変換効率や安定性を向上させる要素技術に着目し、局在プラズモンを利用して PSK における光吸収効率の向上、また無機正孔輸送層を開発して光電変換効率や安定性を向上させ、PSK 太陽電池の高効率化に繋がる研究成果を挙げることに成功した。

著者は、PSK の光吸収効率を向上させるために、局在表面プラズモン共鳴による光アンテナ効果を示す金ナノ微粒子を配置したプラズモン増強 PSK 太陽電池を構築した。プラズモンによる PSK 太陽電池の高効率化に関しては、先行研究が数件報告されているが、いずれも金ナノ微粒子は電子輸送層近傍の PSK 層に配置され、その光散乱により光吸収効率を高めることを狙った研究である。一方、著者は PSK 内における正孔の易動度は電子の易動度に比べて 7 割弱低いことを考慮して、金ナノ微粒子を正孔輸送層近傍の PSK 層に配置し、光散乱だけではなくプラズモン共鳴に基づく増強された近接場により正孔輸送層近傍の PSK 層を選択的に励起し、高効率な電荷分離の実現を図った。これにより PSK の光吸収効率が低下する波長 680 nm 近傍においても正孔輸送層近傍を励起することが可能になり、金ナノ微粒子を配置していない場合に比べ約 2 倍光電変換効率が増強することを明らかにした。また、プラズモン共鳴スペクトルと光電変換効率の波長依存性を比較したところ、プラズモン共鳴波長よりも短波長側においてより顕著な光電流の増強が生じることを見出し、プラズモン励起により金ナノ微粒子と正孔輸送層界面に電場勾配 (Plasmo-electric potential

effect) が形成され、高効率な電荷分離が誘起されたと考察した。

さらに、著者は、酸化コバルト (CoO_x) を用いた無機正孔輸送層を新たに開発して、光電変換効率と安定性の向上を実現した。PSK 太陽電池の正孔輸送層には、ポリチオフェン系導電性高分子である PEDOT/PSS や有機正孔導電体である Spiro-MeOTAD が一般的に使用されているが、いずれも化学的な安定性は無機物に比べて低い。一方、無機物では、酸化ニッケルや酸化銅などが提案され研究が進められてきた。正孔輸送層の選択では、太陽電池として開回路電圧も大きく取り出すことが求められ、正孔輸送層の価電子帯のエネルギー準位から選択可能な半導体は制限される。著者は、正孔輸送層の価電子帯のエネルギー準位が PSK のそれよりも約 0.2 V ネガティブである CoO_x を正孔輸送層として PSK 太陽電池を構築したところ、開回路電圧 0.95 V でかつ PEDOT/PSS、酸化ニッケル、酸化銅などの正孔輸送層を用いた場合よりも高い太陽エネルギー変換効率 (14.5%) を実現した。また、著者は発光分光計測や発光ダイナミクス計測により、正孔が効率的に CoO_x の価電子帯に移動することを明らかにし、光電変換特性が向上するメカニズムについても検証した。

これを要するに、著者は金属ナノ微粒子が示す光アンテナ効果や PSK から効率的に正孔が輸送される正孔輸送層を用い、PSK 太陽電池における光電変換効率と安定性を向上させる要素技術の開発に成功した。これらの研究から得られた知見は、PSK 太陽電池の高効率化に繋がり、当該研究分野に大きく貢献するものと考えられる。よって著者は、北海道大学博士 (情報科学) の学位を授与される資格のあるものと認める。