

令和元年6月19日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2017～2018

課題番号：17H06609

研究課題名(和文) Highly Stable Carbon-sandwiched Perovskite Solar Cells

研究課題名(英文) Highly Stable Carbon-sandwiched Perovskite Solar Cells

研究代表者

田日(JEON, IL)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・特任講師

研究者番号：00807563

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：カーボンナノチューブとフラーレンの相性を利用したカーボンサンドイッチペロブスカイトソーラーセルを製作することにより、ペロブスカイトソーラーセルの安定性を大幅に向上させることに成功した。特に、今回の研究を通じて安定性には有機物の持つChemical Capacitanceと、カーボンナノチューブとホール輸送層との組み合わせによりnanocompositeとなりMoisture barrierの影響で大きく寄与していることを明らかにした。また、Li内包フラーレンTFSIは、単にLiTFSIの代替だけでなく、spiro-MeOTADと相互作用して酸素を防ぐ機能をすることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

By demonstrating the carbon-sandwiched perovskite solar cells (J. Mater. Chem. A, 6, 1382) and endohedral fullerene dopant (Angew. Chem. Int. Ed. 57, 1), we already started to witness follow-up works citing our work. The stability of solar cells nowadays has improved greatly as well.

研究成果の概要(英文)：My research was about replacement of conventional electrodes which limit the potentials of thin-film solar cells, namely, low-cost fabrication, and power conversion efficiency.

I replaced metals, metal oxides, and indium tin oxides by using earth-abundant carbon allotropes, such as fullerene and carbon nanotubes. We discovered that fullerene can indeed replace metal oxides, which cause hysteresis in perovskite solar cells, and realise perovskite solar cells with no hysteresis. In addition, carbon nanotubes could replace the top metal electrodes, which lower the stability of perovskite materials, and function as a moisture barrier, enhancing the device stability even further. Thereby, we realised the carbon-sandwiched perovskite solar cells, which was published in J. Mater. Chem. A, 6, 1382. Moreover, we used endohedral fullerene for the first time in device to replace hygroscopic dopant and improved the stability of perovskite solar cells greatly (Angew. Chem. Int. Ed. 57, 1).

研究分野：Material and Device Engineering

キーワード：Perovskite Solar Cells Organic Solar Cells Carbon Nanotube Fullerene Graphene Polymer Endohedral fullerene Metallo fullerene

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

次世代の太陽電池として期待されるペロブスカイト太陽電池は、高効率ではあるが安定性に問題があり、かつ電極や輸送層に金属酸化物を用いる環境負荷が高いものである。私はその解決策として炭素素材のみで構成されたペロブスカイト太陽電池を提案した。炭素素材を用いることで環境負荷を低減できるだけでなく、ペロブスカイト太陽電池の持つヒステリシスについても解消できると考えた。

## 2. 研究の目的

本研究の最終的な目的は、ペロブスカイト太陽電池の信頼性向上である。前述の通りペロブスカイト太陽電池は高効率なため注目を集めているが、空気中の水分やイオン置換などの外的要因により表面および内部の結晶構造が変化し、変換効率が著しく低下することが知られている。そこで私は、既存のペロブスカイト太陽電池内の親水性物質や、イオンを生成する金属などを炭素材料に代替することで安定性を向上させることを研究目的とした。

## 3. 研究の方法

イオンによるペロブスカイト層の分解を防ぐために、金属電極およびチャージトラップを誘導する酸化物層を、それぞれカーボンナノチューブおよびフラーレンへと置き換えることとした。カーボンナノチューブは金属より導電性は低いが、疎水性であり、水分の遮断力が極めて高い。また、フラーレンは電荷を蓄える力が金属酸化物よりも低く結晶性も低いので、チャージが溜まることなく排出される。一方で、高い吸湿性を示す LiTFSI はペロブスカイト太陽電池に必要な不可欠ドーパントとして知られている。このドーパントを吸湿性が低い Li 内包フラーレン TFSI に置き換える検討も行った。

## 4. 研究成果

カーボンナノチューブとフラーレンの相性を利用したカーボンサンドイッチペロブスカイトソーラーセルを製作することにより、ペロブスカイトソーラーセルの安定性を大幅に向上させることに成功した。特に、今回の研究を通じて安定性には有機物の持つ Chemical Capacitance と、カーボンナノチューブとホール輸送層との組み合わせにより nanocomposite となり Moisture barrier の影響で大きく寄与していることを明らかにした。また、Li 内包フラーレン TFSI は、単に LiTFSI の代替だけでなく、spiro-MeOTAD と相互作用して酸素を防ぐ機能をすることが明らかになった。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 16 件)

- (1) 'Vapor-Assisted Ex-Situ Doping of Carbon Nanotube towards Efficient and Stable Perovskite Solar Cells'  
Jin-Wook Lee<sup>1st</sup>, **Il Jeon<sup>1st</sup>\***, Hao-Sheng Lin, Seungju Seo, Tae-Hee Han, Anton Anisimov, Esko I. Kauppinen, Yutaka Matsuo\*, Shigeo Maruyama\*, Yang Yang\*  
*Nano Letters* 19 (4), 2223-2230 April **2019** [selected for **Inside Cover**] (IF:12.080)
- (2) 'Stable and Reproducible 2D/3D Formamidinium-Lead-Iodide Perovskite Solar Cells'  
Abhishek Thote<sup>1st</sup>, **Il Jeon<sup>1st</sup>\***, Jin-Wook Lee, Seungju Seo, Hao-Sheng Lin, Yang Yang, Hirofumi Daiguji\*, Shigeo Maruyama\*, Yutaka Matsuo\*  
*ACS Applied Energy Materials* March **2019** ASAP [selected for **Inside Cover**]
- (3) 'High Working-Pressure Sputtering of ZnO for Stable and Efficient Perovskite Solar Cells'  
Abhishek Thote<sup>1st</sup>, **Il Jeon<sup>1st</sup>\***, Hao-Sheng Lin, Sergei Manzhos, Takafumi Nakagawa, Donguk Suh, Junho Hwang, Makoto Kashiwagi, Junichiro Shiomi, Shigeo

Maruyama\*, Hirofumi Daiguji\*, Yutaka Matsuo\*

*ACS Applied Electronics Materials* 1 (3), 389-396 March **2019** [selected for **Inside Cover**]

- (4) 'Formation of environmentally stable hole-doped graphene films with instantaneous and high-density carrier doping via a boron-based oxidant'  
Kaito Kanahashi, Naoki Tanaka, Yoshiaki Shoji, Mina Maruyama, **Il Jeon**, Kenji Kawahara, Masatou Ishihara, Masataka Hasegawa, Hiromichi Ohta, Hiroki Ago, Yutaka Matsuo, Susumu Okada, Takanori Fukushima, Taishi Takenobu\*  
*npj 2D Materials and Applications* 3, 7 February **2019**
- (5) 'Single-Walled Carbon Nanotubes in Emerging Thin-Film Solar Cells: Synthesis and Electrode Applications'  
**Il Jeon**, Rong Xiang, Ahmed Shawky, Yutaka Matsuo, Shigeo Maruyama\*  
*Advanced Energy Materials* 1801312 December **2018** [review] (IF:21.875)
- (6) 'Achieving High Efficiency in Solution-Processed C60/C70 Mixed Fullerenes Perovskite Solar Cells'  
Hao-Sheng Lin, **Il Jeon**\*, Rong Xiang, Seungju Seo, Jin-Wook Lee, Chao Li, Amrita Pal, Sergei Manzhos, Mark S. Goorsky, Yang Yang, Shigeo Maruyama, and Yutaka Matsuo\*  
*ACS Applied Materials & Interfaces* 10 (46), 39590-39598 September **2018** [selected for **Inside Cover**] (IF:8.097)
- (7) 'Non-Doped and Unsorted Single-Walled Carbon Nanotubes as Carrier-Selective, Transparent and Conductive Electrode for Perovskite Solar Cells'  
Takahiro Sakaguchi<sup>1st</sup>, **Il Jeon**<sup>1st</sup>, Takaaki Chiba, Ahmed Shawky, Rong Xiang, Shohei Chiashi, Esko I. Kauppinen, Nam-Gyu Park\*, Yutaka Matsuo\*, Shigeo Maruyama\*  
*MRS Communications* 1-6 July **2018** [Invited Article] (IF:3.01)
- (8) 'Polymeric Acid-doped Transparent Carbon Nanotube Electrodes in Organic Solar Cells with the Longest Doping Durability'  
**Il Jeon**<sup>1st</sup>, Clement Delacou<sup>1st</sup>, Hiroshi Okada, Graham E. Morse, Tae-Hee Han, Yuta Sato, Kazu Suenaga, Esko I. Kauppinen, Shigeo Maruyama\*, Yutaka Matsuo\*  
*Journal of Materials Chemistry A* 6, 14553-14559 June **2018** [selected as **A HOT paper** of 2018] (IF:9.931)
- (9) 'Fullerene-Cation-Mediated Noble-Metal-Free Direct Introduction of Functionalized Aryl Groups onto [60]Fullerene'  
Xiao-Yu Yang, Hao-Sheng Lin, **Il Jeon**, Yutaka Matsuo\*  
*Organic Letters* 20 (11), 3372-3376 May **2018** (IF:6.492)

- (10) 'Lithium-Ion Endohedral Fullerene (Li<sup>+</sup>@C<sub>60</sub>) Dopants in Stable Perovskite Solar Cells Induce Instant Doping and Anti-Oxidation'  
**Il Jeon**<sup>1st</sup>, Hiroshi Ueno<sup>1st</sup>, Seungju Seo, Kerttu Aitola, Ryosuke Nishikubo, Akinori Saeki, Hiroshi Okada, Gerrit Boschloo, Shigeo Maruyama, Yutaka Matsuo\*  
*Angewandte Chemie International Edition* 57, 1-6 March 2018 [selected as **VIP**]  
(IF:12.120)
- (11) 'Anthracene-Based Organic Small-molecular Electron-injecting Material for Inverted Organic Light Emitting Diodes'  
Yutaka Matsuo,\* Hiroshi Okada, Yasuhiro Kondo, **Il Jeon**, Huan Wang, Yun Yu, Takeshi Matsushita, Motoki Yanai, Toshiaki Ikuta  
*ACS Applied Materials & Interfaces* 10 (14), 11910-11817 February 2018 (IF:8.097)
- (12) 'Engineering high-performance and air-stable PBTZT-stat-BDTP-8:PC<sub>61</sub>BM/PC<sub>71</sub>BM organic solar cells'  
**Il Jeon**, Ryohei Sakai, Seungju Seo, Graham E. Morse, Hiroshi Ueno, Takafumi Nakagawa, Yang Qian, Shigeo Maruyama, Yutaka Matsuo\*  
*Journal of Materials Chemistry A* 6, 5746-5751 February 2018 (IF:9.931)
- (13) 'Single-walled Carbon Nanotubes in Solar Cells'  
**Il Jeon**, Yutaka Matsuo, Shigeo Maruyama\*  
*Topics in Current Chemistry* 376 (4), 1-28 February 2018 [review] (IF:5.537)
- (14) 'Carbon-sandwiched Perovskite Solar Cell'  
Namyoun Ahn<sup>1st</sup>, **Il Jeon**<sup>1st</sup>, Jungjin Yoon, Esko I. Kauppinen, Yutaka Matsuo\*, Shigeo Maruyama\*, Mansoo Choi\*  
*Journal of Materials Chemistry A* 6, 1382-1389 January 2018 (IF:9.931)
- (15) 'Perovskite Solar Cells using Carbon Nanotubes as both Cathode and Anode Electrodes'  
**Il Jeon**<sup>1st</sup>, Seungju Seo<sup>1st</sup>, Yuta Sato, Clement Delacou, Kazu Suenaga, Esko I. Kauppinen, Shigeo Maruyama\*, Yutaka Matsuo\*  
*The Journal of Physical Chemistry C* 121 (46), 25743-25749 October 2017 (IF:4.484)
- (16) 'Carbon Nanotubes versus Graphene as Flexible Transparent Electrodes in Perovskite Solar Cells'  
**Il Jeon**<sup>1st</sup>, Jungjin Yoon<sup>1st</sup>, Namyoun Ahn, Mohamed Atwa, Clement Delacou, Masaki Sota, Esko I. Kauppinen, Mansoo Choi,\* Shigeo Maruyama,\* Yutaka Matsuo\*  
*The Journal of Physical Chemistry Letters* 8, 5395-5401 October 2017 (IF:9.353)

[学会発表] (計 5 件)

- (1) 'Overcoming Efficiency Limits of Carbon Nanotube-Laminated Metal-Free Perovskite Solar Cells Using 3D/2D FAPbI<sub>3</sub>'  
*MRS Fall Meeting and Exhibit 2018* November 30<sup>th</sup> (NM01.16: Device and Application II) 15 minutes, Boston
- (2) 'Graphene vs Carbon Nanotubes in Perovskite Solar Cells'  
*4 大学ナノコンソーシアムシンポジウム - 4 University Nano-Consortium Symposium (2018.03.29)* 20 minutes, Shin-Kawasaki, Japan
- (3) 'Frontier Applications of Endohedral Fullerenes and Carbon Nanotubes in Perovskite Solar Cells'  
*The 55<sup>th</sup> Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium (FNTG), 8<sup>th</sup> Young Scientists Meeting, Tohoku University, (2018.09.10)* 20 minutes, Sendai, Japan
- (4) 'Application of Carbon Allotropes in Perovskite Solar Cells'  
*12<sup>th</sup> International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (CMCEE 2018) - T1S6: Advanced Multifunctional Nanomaterials and Systems for Photovoltaic and Photonic Technologies (2018.07.23)* 50 minutes, Singapore
- (5) 'Air-Stable Perovskite Solar Cells Using Li-Containing Fullerene Salt as Both Dopant and Anti-Oxidant'  
*MRS Fall Meeting and Exhibit 2017* November 29<sup>th</sup> (ES01.09.02: Perovskite Photovoltaics) 15 minutes, Boston

## 6. 研究組織

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。