OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

| | |
|---|---|
| Title | A novel non-invasive image-based analytical method for spatiotemporal mapping of switching kinetics in electrochromic devices |
| Author(s) | Sarkar, Shifa |
| Citation | 大阪大学, 2026, 博士論文 |
| Version Type | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/107046 |
| rights | |
| Note | やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。 |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

Form 3

# Abstract of Thesis

| Name ( Shifa Sarkar ) | |
|---|---|
| Title | A novel non-invasive image-based analytical method for spatiotemporal mapping of switching kinetics in electrochromic devices<br>（エレクトロクロミックデバイスにおける応答速度の時空間マッピングのための新規な非侵襲的画像ベース解析手法） |


## Abstract of Thesis

Electrochromic devices (ECDs) reversibly modulate their optical properties under an applied electrical potential and are promising for smart windows, low-power displays, and adaptive optical systems. Conventional characterization methods, such as UV-vis transmittance spectroscopy and chronoamperometry, provide important device-level information on optical modulation and electrochemical response. However, these methods generally represent the device as an averaged system and cannot fully resolve local switching delay, spatial nonuniformity, or direction-dependent kinetic variation across the active area. This limitation is especially important for large-area ECDs, where transport-, interfacial-, and fabrication-related nonuniformities can strongly influence practical performance. In this dissertation, a novel, quantitative image-based analytical framework was developed for spatially resolved evaluation of electrochromic switching. Fe(II)-based metallosupramolecular polymer, polyFeL1, was used as the electrochromic layer, and nickel hexacyanoferrate was used as the counter-electrode material. Digital-microscope videos recorded during electrochromic operation were converted into grayscale image sequences, segmented into local analytical regions, and analyzed to obtain contrast-time profiles, switching-time maps, kinetic parameters, and resistance-related descriptors. Using a 5 × 5 cm2 solid-state polyFeL1/NiHCF ECD, the developed method revealed clear spatial switching nonuniformity during the colored-to-bleached transition. The active area was divided into 8,448 analytical segments using 5 × 5-pixel averaging. The local reaction time at 90% grayscale contrast change ranged from ~0.8 to 2.0 s, with faster switching near the device edges and delayed switching near the central region. Representative segment analysis showed that the edge region reached the 90% contrast threshold in 1.10 s, whereas the central region required 1.80 s. The fitted time constants and effective segmental resistance values also increased from the edge to the center, from 134.5 to 184.9 Ω·cm2, indicating that local optical delay was associated with larger effective transport limitations. The method was further extended to bidirectional switching analysis. Both color-to-bleach and bleach-to-color processes showed spatial nonuniformity, but the bleach-to-color transition was slightly faster and more uniform. At the ± 20% tolerance criterion, the switching uniformity was 75.59% for color-to-bleach and 79.71% for bleach-to-color. The asymmetry analysis showed that most of the device area exhibited nearly symmetric switching, while localized directional mismatch occurred mainly near the periphery. AFM analysis confirmed that the observed kinetic differences were not caused solely by macroscopic film-thickness variation. Finally, the image-based approach was applied to large-area polyFeL1/NiHCF smart-window devices. Large-area 200 × 200 mm2 ECD panels were fabricated, installed in a smart-window frame containing a total of 60 ECDs, and evaluated under practical operating conditions. The deployed Ibaraki device showed partial colored-state fading after more than one year of practical operation, but retained a maximum optical contrast of 66% at 580 nm, confirming measurable electrochromic performance under real operating conditions. Image-based analysis of the twelve selected Ibaraki ECDs using 20 × 20 segmentation (pixel averaging) revealed device-to-device variation in the initial-colored state, grayscale modulation, and bidirectional reaction-time distribution. These results show that the developed method can be applied to both laboratory-scale devices and practical large-area ECD panels. Overall, this dissertation demonstrates that electrochromic switching is a spatially distributed process that cannot be fully described by averaged optical or electrochemical measurements alone. The developed image-based method provides a noninvasive, automated, quantitative, and full-field approach for evaluating switching kinetics, spatial uniformity, bidirectional asymmetry, and resistance-related behavior in ECDs. This work provides a material-data analytical basis for understanding spatial switching behavior and guiding future optimization of the performance, reproducibility, and reliability of large-area electrochromic smart-window devices.

様式７

# 論文審査の結果の要旨及び担当者

| 氏　名（　Shifa Sarkar　） | | |
|---|---|---|
| | （職） | 氏　名 |
| 論文審査担当者 | 主 査　招へい教授 | 樋口　昌芳（物質・材料研究機構） |
| | 副 査　教授 | 土屋　達弘 |
| | 副 査　教授 | 三浦　典之 |
| | 副 査　招へい准教授 | 今村　岳　（物質・材料研究機構） |

## 論文審査の結果の要旨

エレクトロクロミックデバイス（ECD）は電気化学的酸化還元によって光学特性を可逆的に変化させる調光・表示デバイスであり、スマートウィンドウ（調光窓）や不揮発性ディスプレイ（低消費電力型ディスプレイ）などへの応用が期待される。ECDは、コントラスト（透明時と着色時の透過率差）や色変化速度、着色効率、繰り返し耐久性などの観点でその性能が評価される。このような性能評価に関して、可視吸収スペクトルなどの分光測定やクロノアンペロメトリーなどの電気化学測定が現在一般的に用いられている。しかしながら、これらの計測手法はECDの局所データあるいは平均データのみを与えるため、実用化においてしばしば問題となっているエレクトロクロミック（EC）変化に関する空間的な不均一性（色むら）を確認・評価することができない。EC変化は、デバイスを構成するEC材料層、電解質層、対極材料層、導電膜層における電子・イオン移動特性及び層間の界面物性などの影響を受ける。EC変化の空間的解析法の創出は、ECDにおける電子・イオン伝導機構の解明という学術的意義がある。また製膜プロセスといったECDの製造過程の改良などの応用・実用化の面でも価値がある。

以上の研究背景のもと、本論文では動画（画像）データを用いた新しいECDの空間的解析手法を提案している。具体的には、EC材料として鉄イオンを含むメタロ超分子ポリマー、対極材料としてプルシアンブルーのニッケル誘導体、電解質として過塩素酸リチウムからなるECDを作製し、電圧印加に伴うEC変化をデジタル顕微鏡で撮影、動画データを得た。動画を構成する各画像（ピクセルデータ）はグレースケール処理及びセグメント処理され、これによりECDは8,448個にセグメント化された。動画データからそれぞれのセグメントにおけるコントラストの時間変化プロファイルを求め、これと抵抗とキャパシタからなる回路モデルとをカーブフィッティングさせることで、ECDの各セグメントにおける抵抗値を算出することに成功している。本研究は、これまで評価が難しかったEC変化における空間的な不均一性を、ECDの各位置における抵抗値の違いとして定量化した点で学術的な進歩があったと言える。

更に、本論文の第4章と第5章では、上記の手法をEC変化の消色過程と着色過程の両過程に適用するとともに、茨城県庁舎の窓に設置した大型ECDパネルの解析にも拡張している。

以上をまとめると、本論文は従来の分光学的及び電気化学的測定手法では困難なECDの分析に関して、動画（画像）データを用いることでEC変化の空間的かつ非侵襲的な定量的解析手法を創出した。今回、EC材料としてメタロ超分子ポリマーを用いているが、本解析手法は酸化タングステンやビオロゲンといった他のEC材料からなるECDにも広く適用できる汎用性を有すると考えられる。またある程度大型のデバイスに対する本手法の実施可能性も示唆している。データ科学に基づいて将来の材料・デバイス創製につながる独創的な学術的成果を挙げている。

よって、博士（情報科学）の学位論文として価値のあるものと認める。