

令和 6 年 6 月 25 日現在

機関番号：24201
研究種目：基盤研究(C)（一般）
研究期間：2021～2023
課題番号：21K04809
研究課題名（和文）高耐久性・組成傾斜型マルチギャップペロブスカイト光電変換素子設計原理の構築

研究課題名（英文）Construction of design rules of stable, multi-gap perovskite photovoltaic devices

研究代表者
奥 健夫（Takeo, Oku）

滋賀県立大学・工学部・教授

研究者番号：30221849
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：第一原理計算により種々の元素を導入したペロブスカイト結晶構造安定性やエネルギーバンドギャップ等の電子状態を予測した。実際に、ペロブスカイト前駆体溶液とデカフェニルシクロペンタシラン（DPPS）ホール輸送層を用いた高温熱処理多段階再熔融積層により、結晶構造・微細組織制御したマルチバンドギャップを目指した組成傾斜構造を自己組織的に形成し、高耐久性組成傾斜光電変換素子形成を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、ペロブスカイト前駆体溶液とデカフェニルシクロペンタシランホール輸送層を用いた高温熱処理多段階再熔融積層により、微細構造制御マルチバンドギャップを目指した高耐久性組成傾斜光電変換素子自己組織形成という独自の手法を開発した点で学術的意義があり、簡易に低コストで耐久性の高い光電変換素子を形成できるため、2050年カーボンニュートラル実現に大きく貢献できる可能性を有し、社会的意義は極めて大きい。

研究成果の概要（英文）：The structural stabilities and energy band gaps of perovskite crystals with various elements introduced were predicted by using first-principles calculations. Actually, self-organized compositionally graded structures aiming at multi-band gaps were attained with controlled crystal structures and microstructures by high temperature annealing and multi-step remelting stacking using perovskite precursor solutions and decaphenylcyclopentasilane hole transport layers. Formation of highly durable compositionally graded photovoltaic devices were achieved.

研究分野：物質科学

キーワード：ペロブスカイト 太陽電池 光電変換素子 マルチギャップ 微細構造 組成傾斜 高耐久性 設計原理

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、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2009年に宮坂らによりペロブスカイト太陽電池が開発され(A. Kojima, et al., J. Am. Chem. Soc. 131, 6050 (2009))、さらに多数のグループにより高効率化やPb元素代替に関する研究が精力的に行われてきた。このペロブスカイト太陽電池には「長期不安定性」という最大の課題があり、 ABX_3 ペロブスカイト型結晶と光電変換素子構造の安定性向上が極めて重要な課題となっている。また光電変換効率向上のための材料設計指針の構築も急務となっている。

現在のデバイスの一般的プロセスとして、熱処理により、液体から急速に結晶を成長させる手法が広く使用されている。元素種と溶媒を選択し、熱力学により反応を計算すれば目的とする結晶が得られると予測される。しかし実際には、下地や雰囲気の影響などもあり、必ずしも計算通りに安定な結晶が得られるわけではない。この結晶成長決定因子を明らかにすることは、基礎研究に加えて、デバイス応用面でも重要な課題である。また、ペロブスカイト結晶を構成する原子および分子を選択し、第一原理計算により全エネルギーを計算すれば安定な結晶が得られると予測される。しかし実際には、必ずしも計算通りに安定な結晶が得られるわけではない。この安定性決定因子を明らかにすることは、基礎研究のみならず、デバイス応用研究としても重要な第二の課題となる。これら二つの重要な課題を解決していくことが本研究の主要な動機となっている。

2. 研究の目的

上記の研究課題の核心をなす二つの学術的な課題に答えるため、本研究では、「高耐久性の組成傾斜型ペロブスカイト光電変換素子設計原理の構築」を目的とする。この目的達成のために、以下の2点を目指すこととした。

(1) マルチギャップ構造の自己組織形成プロセスの開発と設計指針の構築

(2) ポリシランホール輸送層導入および高温処理による高耐久性デバイスの形成

本申請の3年間で、「ペロブスカイト結晶成長を決定する因子・ペロブスカイト光電変換素子の安定性を決定する因子」を、本研究独自の「ペロブスカイト前駆体溶液濃度制御、多段階再溶解積層、ポリシラン導入高温熱処理法」により、組成傾斜マルチバンドギャップ制御が可能になる手法を探索する。新規微細構造合成プロセス開発、光電変換素子の構造解析・物性評価・理論解析、材料設計指針構築から追加の実証実験等を実施し、最終目標である高耐久性組成傾斜型ペロブスカイト光電変換素子設計原理を構築する。

3. 研究の方法

高耐久性・組成傾斜型マルチギャップペロブスカイト光電変換素子設計原理の構築にあたり、幅広い学際的バックグラウンドを持つ研究者を結集した。目的として、①結晶構造・微細組織を制御した組成傾斜構造の自己組織形成プロセスの構築、②ポリシランホール輸送層導入および190°C高温処理による高耐久性デバイス形成、にフォーカスして研究を推進した。

当研究グループでは、溶質元素種及び濃度に依存した拡散律速凝集による特徴的な微細構造を有するペロブスカイト構造を形成できることを見出しており、拡散律速による結晶成長機構、界面の原子運動の局所的議論等による詳細な解析を行っていく。

また、第一原理計算・熱力学計算より構造安定性・反応性を予測し、 CH_3NH_3 (MA)位置には、 $HC(NH_2)_2$ 、 $C(NH_2)_3$ 、 $CH_3CH_2NH_3$ 、Cs、Rb、Kなどを導入し、Pb原子位置には、Sn、Geなどの14族元素、Cuなどの遷移金属元素を導入し、さらにI原子位置には、Br、Clのハロゲン元素を導入する。これらの元素導入・置換によるペロブスカイト前駆体溶液濃度制御と多段階再溶解積層により、組成傾斜マルチバンドギャップ制御可能な条件を見出していく。特に、現在世界中で作製されているペロブスカイト太陽電池は、大部分が不活性ガス中100°C程度の温度で製造されており、デバイス製造後に、光電変換特性が大きく低下することが重大な課題となっている。本研究では、大気中で通常よりかなり高い温度で結晶成長を促進する手法を開発した。この方法はグローブボックスを使用せず製造工程を大幅に簡略化すると共に、太陽電池特性の安定化を図ることが可能である。

4. 研究成果

(1) 結晶構造制御による安定化：アルカリ元素・有機分子共置換による安定化

高耐久性・組成傾斜型マルチギャップペロブスカイト光電変換素子設計原理の構築にあたり、幅広い学際的バックグラウンドを持つ研究者を結集した。目的として、①結晶構造・微細組織を制御した組成傾斜構造の自己組織形成プロセスの構築、②ポリシランホール輸送層導入および190°C高温処理による高耐久性デバイス形成、にフォーカスして研究を推進した。光電変換素子の新規合成プロセス開発、光起電力特性などのデバイス評価及びペロブスカイト結晶の第一原理計算

解析に重点をおきながら、界面微細ナノ構造制御によるさらなる発電効率の向上及び安定化も目指した。

まず、A サイトである陽イオン位置に $\text{HC}(\text{NH}_2)_2$ (FA)、 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{NH}_3$ (EA)、 $\text{C}(\text{NH}_2)_3$ (GA)、Cs、Rb、K などを導入、B サイトである Pb 位置には Sn、Cu などを導入し、第一原理計算により結晶構造安定性やエネルギーバンドギャップ等の電子状態を予測し、全エネルギーの低下なども確認できた。図 1 に $\text{MA}_{0.75}\text{GA}_{0.125}\text{Cs}_{0.125}\text{PbI}_3$ の結晶構造、バンド構造、 PbI_6 八面体および Pb(Cu) の部分状態密度(PDOS)を示す。

実際にこれらの元素を導入したペロブスカイト前駆体溶液とデカフェニルシクロペンタシラン (DPPS) 正孔輸送層を用いた高温熱処理多段階再溶融積層によりマルチバンドギャップ制御を試み、 α 相安定化した組成傾斜ペロブスカイト薄膜の形成が可能となった。また DPPS 導入により形成したデバイス形成の光電変換効率が、時間経過とともに向上する高い安定性を示す現象を見出した。

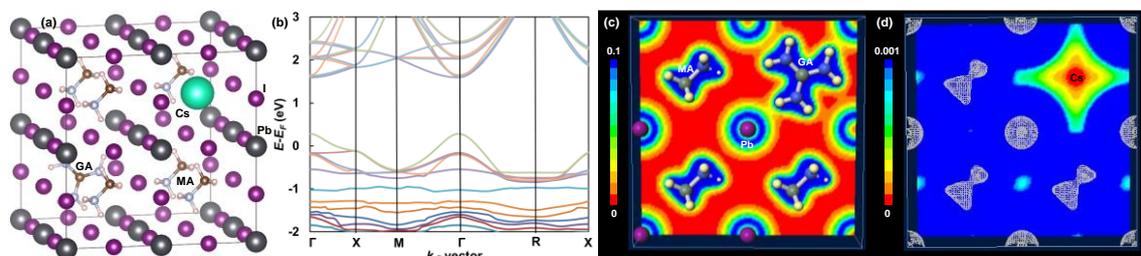


図 1 $\text{MA}_{0.75}\text{GA}_{0.125}\text{Cs}_{0.125}\text{PbI}_3$ の(a) 結晶構造、(b) バンド構造、(c、d) 電子密度分布図

(2) 結晶構造制御による安定化：FAPbI₃ の Cu 置換による安定化

ここではさらに、Cu 導入による光学活性な α 相安定化の可能性を示す。図 2(a)に、 $\text{FA}_{0.875}\text{Cu}_{0.125}\text{PbI}_3$ ペロブスカイト結晶の第一原理バンド構造計算結果を示す。図 2(b)は、1セル当たりの全エネルギー値を示しており、基準の組成である FAPbI₃ の全エネルギーを 0 として、他の組成の全エネルギーは相対値として表している。FA を Cu で置換した場合のみ、全エネルギー値が減少する。実際にアルカリ金属の代わりに Cu^{1+} を FA サイトに導入した場合、X 線回折で α 相の形成が確認された。MA 欠陥が生じて Cu^{1+} と Cu^{2+} の電荷自由度があるため、電荷補償による安定化の可能性はある。計算された部分状態密度(PDOS)から (図 2(c、d))、価電子帯と伝導帯ではそれぞれ、I-p 軌道あるいは Pb-p 軌道が支配的であり、Cu-d 軌道のエネルギーレベルは価電子帯上端より僅かにエネルギーが低い位置に形成される。

表 1 は、FAPbI₃ の FA サイトへ、欠陥(V_{FA})、Rb、Cs、Cu を導入した際の各物性値である。これらの導入によりバンドギャップが変化したことから、FA カチオンの置換によりペロブスカイト結晶のバンドギャップを制御できる可能性が示唆された。 Cu^{1+} 導入により正孔有効質量比はほぼ同じ値を維持している。Born-Oppenheimer 分子動力学計算による自己拡散係数も最小となり、原子移動が抑制され安定性を維持できる可能性が示唆された。

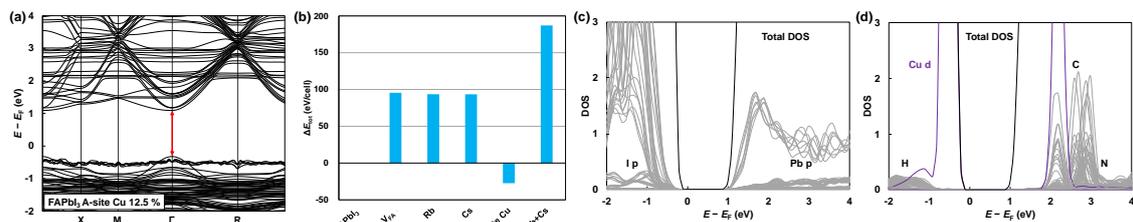


図 2 $\text{FA}_{0.875}\text{Cu}_{0.125}\text{PbI}_3$ の(a) バンド構造、(b) 全エネルギー、(c、d) PbI_6 八面体/Pb(Cu)の PDOS

表 1 各構造に基づく全エネルギー、バンドギャップ、ホールの有効質量比、自己拡散係数

Model	E_{tot} (eV cell ⁻¹)	E_{g} (eV)	m_{h}^*/m_0	D (10 ⁻⁴ cm ² s ⁻¹)
FAPbI ₃	-3744	1.383	0.166	1.01
V _{FA}	-3648	1.424	0.169	1.09
Rb	-3650	1.368	0.170	1.14
Cs	-3650	1.389	0.168	1.14
Cu (A-site)	-3771	1.415	0.171	0.68

(3) 微細構造制御・表面修飾による安定化

MAPbI₃ ペロブスカイト太陽電池は、通常、100°C程度の温度で、不活性ガス中で製造される。ペロブスカイト結晶表面近傍で MA⁺脱離が生じると、電荷補償のため MA 欠陥を埋めようとする他の位置にいる MA への駆動力がはたらく可能性があり、デバイス製造後のペロブスカイト結晶の構造不安定性のために、光電変換特性が大きく低下するという問題がある。

この問題解決のために、ペロブスカイト表面を他の物質で修飾することにより、MA 脱離を抑制し安定性を確保するという方法がある。ここでは、ポリシランを導入し、200°C程度の高温で、かつ大気中エアブローで MAPbI₃ デバイスを作製することで、グローブボックスを使用せず製造工程を大幅に簡略化すると共に、太陽電池特性の安定化を図った。

以下に一例を示す。ポリシラン化合物である DPPS を導入することで、ペロブスカイト表面を DPPS 被覆したペロブスカイト太陽電池を作製した。通常、200°Cの高温熱処理ではペロブスカイト結晶が分解してしまうが、DPPS は 300°Cまで大気中で安定で、さらに一部のポリシランはホール輸送能力も有するため、200°Cで高温安定相である立方晶ペロブスカイトを緻密に形成し、光電変換特性の向上と大気中安定化を同時に達成した。図 3(a)に示すように、クロロベンゼン (CB) のみの表面処理後 190°Cで熱処理したデバイスは光電変換効率も低く、経時変化でさらに低下する。一方、CB に DPPS を添加した CB+DPPS 処理後、220°Cで作製したデバイスは経時変化でも高い安定性を示している。また、CB+DPPS 処理後、190°C熱処理したデバイスでは、250 日後に光電変換効率が上昇した。特に顕著な例として、図 3(b)に示すように、作製直後は 8.3%の光電変換効率が、66 日後に 15.1%まで上昇した。図 3(c)に示すように、66 日後に、結晶子サイズも 486 から 617 Å まで増加し室温時効による結晶成長が生じている。X 線回折などの結果より、ペロブスカイト/DPPS 界面において、熱処理・経時変化での MA 脱離による極薄の PbI₂層が形成していると推察された。図 3(d)のエネルギーレベル図のように、PbI₂層はエネルギーギャップ 2.3-2.6 eV の p 型半導体・ホール輸送層として機能する可能性がある。MAPbI₃ 中の MA⁺、I⁻、Pb²⁺のイオン移動の活性化エネルギーは、それぞれ 0.84、0.58、2.31 eV で Pb²⁺移動は生じにくく、形成した PbI₂層はペロブスカイト表面近傍に形成し、DPPS 層もホール輸送層として機能していると考えられる。さらに、DPPS を 2 重積層させ組成の異なるペロブスカイト結晶層を多層積層させることにより、組成傾斜光電変換素子の形成が可能となった。

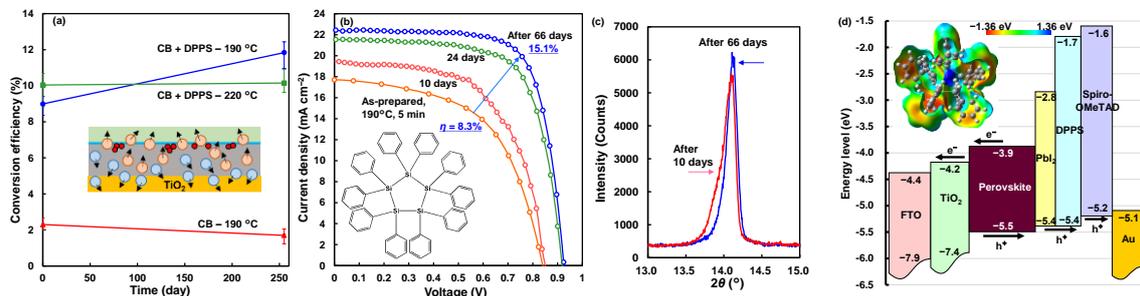


図 3 (a) 変換効率の経時変化、(b)電流密度-電圧特性、(c) 100 反射、(d) エネルギーレベル図

(4) まとめ

現在世界中で作製されているペロブスカイト太陽電池は、大部分が 100°C程度の温度で、不活性ガス中で製造されており、デバイス製造後のペロブスカイト結晶中の CH₃NH₃・I サイトによる構造不安定性のために、光電変換特性が大きく低下することが重大な課題となっている。本研究では、安定化を図るためにはむしろ高温で熱処理すべきという逆の視点でとらえ、ホール輸送能力と高温耐久性を同時に有するポリシランをペロブスカイト層と積層させ 190°Cという通常よりかなり高い温度で、しかも大気中エアブローで結晶成長を促進する手法で、このペロブスカイト形成時にポリシランホール輸送層を高温同時形成することで安定な構造と高効率を実現した。ペロブスカイト前駆体溶液とデカフェニルシクロペンタシランホール輸送層を用いた高温熱処理多段階再溶解積層により、微細構造制御マルチバンドギャップを目指した、高耐久性組成傾斜光電変換素子自己組織形成という独自の手法である点で学術的意義があり、また、簡易に低コストで耐久性の高い光電変換素子を形成でき、2050 年カーボンニュートラル実現に大きく貢献できる可能性を有し社会的意義は極めて大きい。

最後に全体をまとめると、本研究では、第一原理計算により種々の元素を導入したペロブスカイト結晶構造安定性やエネルギーバンドギャップ等の電子状態を予測した。実際に、ペロブスカイト前駆体溶液とデカフェニルシクロペンタシラン (DPPS) ホール輸送層を用いた高温熱処理多段階再溶解積層により、結晶構造・微細組織制御したマルチバンドギャップを目指した組成傾斜構造を自己組織的に形成し、高耐久性組成傾斜光電変換素子形成を実現し、設計原理構築についても現在推進中である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計20件（うち査読付論文 19件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 18件）

1. 著者名 S. Terada, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa	4. 巻 9
2. 論文標題 Ethylammonium bromide- and potassium-added CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite solar cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Photonics	6. 最初と最後の頁 791-1~12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/photonics9110791	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Y. Asakawa, T. Oku, M. Kido, A. Suzuki, R. Okumura, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa	4. 巻 10
2. 論文標題 Fabrication and characterization of SnCl ₂ - and CuBr-added perovskite photovoltaic devices	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Technologies	6. 最初と最後の頁 112-1~12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/technologies10060112	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa and T. Hasegawa	4. 巻 31
2. 論文標題 Electronic structures and photovoltaic properties of copper-, sodium- and ethylammonium-added CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite compound	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Engineering Proceedings	6. 最初と最後の頁 29-1~6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/ASEC2022-13778	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 R. Nonomura, T. Oku, I. Ono, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa	4. 巻 31
2. 論文標題 Effects of cesium/formamidinium co-addition to perovskite solar cells	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Engineering Proceedings	6. 最初と最後の頁 32-1~7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/ASEC2022-13789	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 T. Oku, I. Ono, S. Uchiya, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa and T. Hasegawa	4. 巻 31
2. 論文標題 Effects of guanidinium and cesium addition to CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite photovoltaic devices	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Engineering Proceedings	6. 最初と最後の頁 35-1~5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ASEC2022-13769	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Oku Takeo, Taguchi Masaya, Suzuki Atsushi, Kitagawa Kaede, Asakawa Yugo, Yoshida Satoshi, Okita Masanobu, Minami Satoshi, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu	4. 巻 11
2. 論文標題 Effects of Polysilane Addition to Chlorobenzene and High Temperature Annealing on CH ₃ NH ₃ PbI ₃ Perovskite Photovoltaic Devices	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Coatings	6. 最初と最後の頁 665-1~14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/coatings11060665	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kishimoto Taku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Ueoka Naoki	4. 巻 218
2. 論文標題 Additive Effects of Guanidinium Iodide on CH ₃ NH ₃ PbI ₃ Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 physica status solidi (a)	6. 最初と最後の頁 2100396-1~10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssa.202100396	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ono Iori, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Asakawa Yugo, Terada Shuhei, Okita Masanobu, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu	4. 巻 61
2. 論文標題 Fabrication and characterization of CH ₃ NH ₃ PbI ₃ solar cells with added guanidinium and inserted with decaphenylpentasilane	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SB1024-1~10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac2661	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Okita Masanobu, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu, Hasegawa Tomoya	4. 巻 12
2. 論文標題 Effects of Adding Alkali Metals and Organic Cations to Cu-Based Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 1710-1 ~ 14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/app12031710	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu, Hasegawa Tomoya	4. 巻 62
2. 論文標題 First-principles calculation analysis and photovoltaic properties of Cu compound-added perovskite solar cells	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SK1029-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/accaef	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Oku Takeo, Uchiya Shoma, Okumura Riku, Suzuki Atsushi, Ono Iori, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu, Hasegawa Tomoya	4. 巻 11
2. 論文標題 Effects of Co-Addition of Guanidinium and Cesium to CH ₃ NH ₃ PbI ₃ Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Inorganics	6. 最初と最後の頁 273-1 ~ 12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/inorganics11070273	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi	4. 巻 4
2. 論文標題 Electronic structures and properties of lead-free cesium- or rubidium-based perovskite halide compounds by first-principles calculations	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nano Trends	6. 最初と最後の頁 100020-1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nwnano.2023.100020	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ono Iori, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu, Hasegawa Tomoya	4. 巻 38
2. 論文標題 Effects of ethylammonium and rubidium addition to guanidinium-based CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite photovoltaic devices prepared at 190 °C in ambient air	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Materials Today Communications	6. 最初と最後の頁 107623-1 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtcomm.2023.107623	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi	4. 巻 63
2. 論文標題 Effects of alkali metals or Cu ⁺ addition to -FAPbI ₃ perovskite crystals on electronic structures and photovoltaic properties	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 02SP21-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ad0dbc	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi	4. 巻 8
2. 論文標題 Electronic structures of ABX ₃ perovskite crystals with a monovalent copper ion as the A-site cation	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Chemical Physics Impact	6. 最初と最後の頁 100534-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chphi.2024.100534	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kuroyanagi Keisuke, Oku Takeo, Ono Iori, Okumura Riku, Enomoto Ayu, Suzuki Atsushi, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu, Hasegawa Tomoya	4. 巻 5
2. 論文標題 Effects of guanidinium iodide surface treatment on CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite solar cells with added decaphenylcyclopentasilane	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nano Trends	6. 最初と最後の頁 100030-1 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nwnano.2024.100030	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kuo Yu-Chen, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Ono Iori, Okumura Riku	4. 巻 5
2. 論文標題 Electronic structures of lead-free Sn- or Ge-hybrid perovskite halides studied by first-principles calculation	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Hybrid Advances	6. 最初と最後の頁 100174-1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.hybadv.2024.100174	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi	4. 巻 3
2. 論文標題 Accelerated formation of photoactive formamidinium-based lead triiodide perovskite crystals by the addition of copper iodide	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Chemistry of Inorganic Materials	6. 最初と最後の頁 100052-1 ~ 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cinorg.2024.100052	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okumura Riku, Oku Takeo, Suzuki Atsushi, Fukunishi Sakiko, Tachikawa Tomoharu, Hasegawa Tomoya	4. 巻 56
2. 論文標題 Effects of Copper Substitution in Methylammonium-Based Perovskite Solar Cells	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Engineering Proceedings	6. 最初と最後の頁 46-1 ~ 6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ASEC2023-15403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 奥 健夫、奥村 吏来、小野 伊織、榎本 彩佑、鈴木 厚志	4. 巻 Vol. 50, No. 2, 280号
2. 論文標題 ペロブスカイト結晶薄膜と安定性	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Japan Solar Energy Society (日本太陽エネルギー学会学会誌: 太陽エネルギー)	6. 最初と最後の頁 18-23
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

[学会発表] 計43件(うち招待講演 0件/うち国際学会 19件)

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, and A. Suzuki
2. 発表標題 Search for alternative elements to lead in FAPbI ₃ perovskite solar cells by first-principles calculations and experiments
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y.-C. Kuo, T. Oku, and A. Suzuki
2. 発表標題 Crystal structures of lead-free Sn-based perovskite compounds studied by first-principles calculations
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of copper substitution on electronic structures and photoelectric conversion properties in methylammonium-based perovskite solar cells
3. 学会等名 The 9th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 K. Kuroyanagi, R. Okumura, A. Enomoto, A. Suzuki, T. Oku, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of guanidinium iodide addition to perovskite solar cells
3. 学会等名 18th International Workshop on Supramolecular Nanoscience of Chemically Programmed Pigment (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, and A. Suzuki
2. 発表標題 Electronic structures and device properties of $\text{A}^+\text{-FAPbI}_3$ with inorganic A-site cations
3. 学会等名 18th International Workshop on Supramolecular Nanoscience of Chemically Programmed Pigment (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of copper substitution in methylammonium-based perovskite solar cells
3. 学会等名 The 4th International Electronic Conference on Applied Sciences (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 奥村史来、奥健夫、鈴木厚志、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 ペロブスカイト太陽電池における銅置換の効果
3. 学会等名 第20回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム (第3回日本太陽光発電学会学術講演会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 郭祐禎、奥健夫、鈴木厚志
2. 発表標題 第一原理計算による Cs 及び Rb 系 Pb フリーペロブスカイト結晶の評価
3. 学会等名 第20回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム (第3回日本太陽光発電学会学術講演会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小野伊織、奥健夫、鈴木厚志、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 CH ₃ NH ₃ PbI ₃ ペロブスカイト太陽電池におけるGA添加効果
3. 学会等名 第20回「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム（第3回日本太陽光発電学会学術講演会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畔柳圭佑、奥村史来、榎本彩佑、鈴木厚志、奥健夫、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 電池におけるGAIパッシベーション効果
3. 学会等名 日本材料学会 第9回材料WEEK 材料シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 郭祐禎、奥健夫、鈴木厚志
2. 発表標題 第一原理計算による無機鉛フリーペロブスカイト結晶の評価
3. 学会等名 日本材料学会 第9回材料WEEK 材料シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 奥村史来、奥健夫、鈴木厚志
2. 発表標題 無機カチオン置換による δ -FAPbI ₃ の相安定性とデバイス特性の向上
3. 学会等名 日本材料学会 第9回材料WEEK 材料シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小野伊織、奥健夫、鈴木厚志、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 GA系ペロブスカイト太陽電池へのEA添加効果
3. 学会等名 日本材料学会 第9回材料WEEK 材料シンポジウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小野伊織、奥健夫、鈴木厚志、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 EA およびGA を添加したペロブスカイト太陽電池の作製と評価
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2023年度 第2回講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畔柳圭佑、小野伊織、奥村史来、榎本彩佑、鈴木厚志、奥健夫、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 CH ₃ NH ₃ PbI ₃ ペロブスカイト太陽電池におけるGAI表面処理効果
3. 学会等名 応用物理学会関西支部2023 年度第3回講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 島田遼人、小野伊織、奥村史来、畔柳圭佑、鈴木厚志、奥健夫、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 GA 系ペロブスカイト太陽電池の作製と評価
3. 学会等名 応用物理学会関西支部2023 年度第3回講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 I. Ono, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of guanidinium addition to CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite solar cells
3. 学会等名 Advances in Surfaces, Interfaces and Interphases 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2. 発表標題 First-principles calculation analysis and photovoltaic properties of copper compound-added perovskite solar cells
3. 学会等名 The 33rd International Photovoltaic Science and Engineering Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Nonomura, T. Oku, I. Ono, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of cesium/formamidinium co-additions to perovskite solar cells
3. 学会等名 3rd International Electronic Conference on Applied Sciences (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2. 発表標題 Electronic structures and photovoltaic properties of copper-, sodium- and ethylammonium-added CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite compound
3. 学会等名 3rd International Electronic Conference on Applied Sciences (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Oku, I. Ono, S. Uchiya, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of guanidinium and cesium addition to CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite photovoltaic devices
3. 学会等名 3rd International Electronic Conference on Applied Sciences (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 奥村吏来、奥健夫、鈴木厚志、大北正信、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 MAPbI ₃ におけるCu, Na, EA置換が光電変換特性に与える効果
3. 学会等名 第43回光化学若手の会 (光化学協会・日本化学会共催)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 打屋彰真、奥健夫、小野伊織、鈴木厚志、大北正信、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 GA及びCs添加したペロブスカイト光電変換素子の特性評価
3. 学会等名 第43回光化学若手の会 (光化学協会・日本化学会共催)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 打屋彰真、奥健夫(滋賀県立大、小野伊織、鈴木厚志、大北正信、福西佐季子、立川友晴、長谷川智也
2. 発表標題 GAおよびCsを共添加したペロブスカイト太陽電池の特性評価
3. 学会等名 日本材料学会 第8回材料WEEK 材料シンポジウム「若手学生研究発表会」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Oku, M. Taguchi, K. Kitagawa, A. Suzuki, Y. Asakawa, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa
2. 発表標題 Effects of decaphenylcyclopentasilane insertion and high temperature annealing on CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite photovoltaic devices
3. 学会等名 3rd Coatings and Interfaces Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 T. Oku
2. 発表標題 Crystal structures of various perovskite halide compounds expected for solar cells
3. 学会等名 The 3rd International Online Conference on Crystals (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of co-addition of copper, sodium and ethylammonium to CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite compound
3. 学会等名 The 3rd International Online Conference on Crystals (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 I. Ono, T. Oku, A. Suzuki, Y. Asakawa, S. Terada, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2. 発表標題 Effects of guanidinium addition to CH ₃ NH ₃ PbI ₃ perovskite solar cells inserted with decaphenylpentasilane
3. 学会等名 The 3rd International Online Conference on Crystals (国際学会)
4. 発表年 2022年

1 . 発表者名 K. Takada, T. Oku, A. Suzuki, S. Terada, Y. Asakawa, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2 . 発表標題 Fabrication and characterization of ethylammonium- and rubidium-added perovskite solar cells
3 . 学会等名 The 3rd International Online Conference on Crystals (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 S. Mizuno, T. Oku, Y. Asakawa, S. Terada, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, and T. Hasegawa
2 . 発表標題 Photovoltaic properties and microstructures of polysilane-added perovskite solar cells
3 . 学会等名 The 3rd International Online Conference on Crystals (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 R. Okumura, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2 . 発表標題 Effects of alkali metal and organic cation addition to Cu-based perovskite solar cells
3 . 学会等名 The 25th SANKEN International Symposium (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 I. Ono, T. Oku, A. Suzuki, M. Okita, S. Fukunishi, T. Tachikawa, T. Hasegawa
2 . 発表標題 Perovskite solar cell with guanidinium added to the photoactive layer
3 . 学会等名 The 25th SANKEN International Symposium (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1. 発表者名 小野伊織、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 グラビニウムを添加したペロブスカイト太陽電池の作製と評価
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2021年度 第1回講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水野慎一朗、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 ペロブスカイト太陽電池におけるポリシランの添加効果に関する研究
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料WEEK 材料シンポジウム「若手学生研究発表会」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高田奎之心、寺田周平、浅川由悟、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 Rb添加したEA系ペロブスカイト太陽電池の作製と特性評価
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料WEEK 材料シンポジウム「若手学生研究発表会」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 GAを添加したペロブスカイトの太陽電池の作製と評価
2. 発表標題 小野伊織、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料WEEK 材料シンポジウム「若手学生研究発表会」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奥村史来、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 Cu系ペロブスカイト太陽電池へのアルカリ金属、有機カチオンの添加効果に関する研究
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料WEEK 材料シンポジウム「若手学生研究発表会」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水野慎一朗、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 ペロブスカイト太陽電池へのポリシラン層添加効果
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2021年度第2回講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奥村史来、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 ペロブスカイト太陽電池へのCu、Na、EAの同時添加効果
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2021年度第2回講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高田奎之心、寺田周平、浅川由悟、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 EA及びRb添加したペロブスカイト太陽電池の光起電力特性評価
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2021年度第2回講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小野伊織、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 CH ₃ NH ₃ PbI ₃ ペロブスカイト化合物へのGA添加効果
3. 学会等名 応用物理学会関西支部 2021年度第2回講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小野伊織、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 GA系ペロブスカイト太陽電池の作製と光電変換特性評価
3. 学会等名 日本化学会 第11回CSJ化学フェスタ2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 奥村史来、浅川由悟、寺田周平、鈴木厚志、奥健夫、大北正信、福西佐季子、立川友晴
2. 発表標題 Cu系ペロブスカイト太陽電池へのアルカリ金属、有機カチオンの添加効果
3. 学会等名 日本化学会 第11回CSJ化学フェスタ2021
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計4件

1. 著者名 Editor: Wilbur M. Hulett	4. 発行年 2023年
2. 出版社 Nova Science Publishers	5. 総ページ数 99
3. 書名 Alkali Metals: New Research	

1. 著者名 Editors: Khursheed Ahmad and Waseem Raza	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Wiley-Scrivener	5. 総ページ数 336
3. 書名 Perovskite Materials for Energy and Environmental Applications	

1. 著者名 Editor: Maryann C. Wythers	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Nova Science Publishers	5. 総ページ数 286
3. 書名 Advances in Materials Science Research. Volume 57	

1. 著者名 Editors: Ram K. Gupta, Ajit Behera, Siamak Farhad, Tuan Anh Nguyen	4. 発行年 2023年
2. 出版社 Elsevier	5. 総ページ数 582
3. 書名 Advanced Flexible Ceramics - Design, Properties, Manufacturing, and Emerging Applications	

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 ペロブスカイト太陽電池およびその製造方法	発明者 奥村吏来、榎本彩 佑、奥 健夫、鈴木厚 志	権利者 公立大学法人滋 賀県立大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2024-023349	出願年 2024年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

滋賀県立大学工学部材料科学科 エネルギー環境材料 分野
<http://www.mat.usp.ac.jp/energy/index.html>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	鈴木 厚志 (Suzuki Atsushi)	滋賀県立大学	
研究協力者	奥村 吏来 (Okumura Riku)	滋賀県立大学	
研究協力者	立川 友晴 (Tachikawa Tomoharu)	大阪ガスケミカル株式会社	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------