

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「エネルギー高効率利用のための相界面
科学」

研究課題「酸化物半導体プリカーサーを用いる
相互侵入型無機・有機(無機)バルクヘテロナノ界面
の一括構築と太陽電池への応用」

研究終了報告書

研究期間 平成24年10月～平成30年3月

研究代表者：早瀬 修二
(九州工業大学生命体工学研究科
教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

ZnO プリカーサーと p 型半導体ポリマーから成る無機有機バルクヘテロ界面を一括して作製する塗布型太陽電池に関する研究を提案し採択されたが、研究開始後に無機物と有機物からなる高効率ペロブスカイト(PVK)太陽電池が報告され、研究を取り巻く社会情勢が大きく変化した。このため、研究方針を変更するべく、PVK 太陽電池の界面に関する新提案を行い、研究総括、アドバイザーからの審査を受けた。その結果、研究総括から“提案者のオリジナル研究である TiO₂/PVK 界面のトラップパッシベーション技術に関する研究に集中し、ヘテロ接合界面と太陽電池特性との関係を明確にし高効率を実現することを目的にし、界面科学の推進を通じて、将来の実現につながる大きな成果を期待する。”とのコメントを受け、研究方針を変更することとなった。以下にその詳細を示す。

太陽電池シミュレーション(立命館大学)により、TiO₂/PVK/ホール輸送層(HTL)構造の光入射側のヘテロ界面(TiO₂/PVK)の電荷再結合速度が太陽電池性能を大きく左右することがわかった。効率はヘテロ界面のトラップ密度が 10¹⁵/cm³まで減少するにつれ向上するが、それ以上トラップ密度を低下させても効率は向上しない。さらに効率を上げるためには、ヘテロ界面ではなく PVK 結晶層(光吸収層)の電荷再結合を抑制する必要がある。例えば、ヘテロ界面トラップ(電荷再結合中心)密度の低下により効率は 18%まで向上し、この状態でさらに結晶層の欠陥を少なくすることにより(拡散距離:2 μm)、22%以上の効率が期待できる。本プロジェクトでは前者のヘテロ界面電荷再結合とそのヘテロ界面構造に関する研究に焦点を絞る。シミュレーションに従ってまず光入射側のヘテロ界面である TiO₂/PVK 層ヘテロ界面の構造と太陽電池効率との関係を詳細に検討した(九州工業大学)。チタニア/PVK 層ヘテロ界面には Ti-O-Pb 結合が形成され、これらの結合はヘテロ界面のトラップ(電荷再結合中心)密度を低減していることがわかった。時間分解スペクトルの測定からトラップ(電荷再結合中心)密度を低減したチタニア/PVK ヘテロ界面ではキャリアの寿命が長くなっており、界面トラップ(電荷再結合中心)密度の低減により電荷再結合が抑制されていることを実証できた(電気通信大学、九州工業大学)。またヘテロ界面トラップ(電荷再結合中心)密度と効率の関係は S 字カーブになり、太陽電池シミュレーションの結果と類似していることも上記説明を支持した(九州工業大学、立命館大学)。一方、光入射方向と反対のヘテロ界面である PVK 層/HTL 層界面に PVK 界面と反応する F 原子を有する界面活性剤薄膜を挿入することにより、ヘテロ界面でのキャリア寿命が延びた(九州工業大学、電気通信大学)。これは上記界面活性剤薄膜が PVK 層/HTL 層ヘテロ界面での電荷再結合を抑制していることを示唆している。これらの界面構築により変換効率は 15%から 18%まで向上できた。これらの界面に関する研究によって得られた手法を、赤外光電変換が可能な SnPb 混合金属ペロブスカイト太陽電池の性能向上に応用した。SnPb 混合金属 PVK のバンドギャップは太陽電池として理想的な 1.4V に最適化することができる唯一の PVK 太陽電池であるが、電荷再結合による Voc のロスが大きく、高効率化が困難と考えられていた。Pb-PVK 太陽電池ヘテロ界面の研究で得られた知見を元にヘテロ界面の状態を調べたところ、大きな Voc ロスは TiO₂/SnPbPVK ヘテロ界面の高いトラップ(電荷再結合中心)密度によって起こされていることを見出した。このヘテロ界面をなくすること、および他の研究プロジェクトの結果である SnPbPVK 結晶層の欠陥密度の低減、およびスパイク構造の導入により、研究初期の 5%の効率を 17%の効率まで向上させることができた。Voc のロスが 0.43eV となり、この値は Pb-PVK とほぼ同等である。今後さらに効率を上げるためには、800-1000nm での光吸収率を上げるために SnPbPVK 膜厚を厚くし(500nm-700nm)、膜厚以上のキャリア拡散距離を実現できるように、SnPbPVK 層の欠陥密度をさらに低減する必要がある。

一方、界面での電荷再結合を抑制する方法として、上記ヘテロ界面トラップ(電荷再結合中心)密度の低減以外に、CIGS 太陽電池で電荷再結合が抑制されることが実証されている n 型層(無機太陽電池の分野ではバッファー層(緩衝層)と呼ぶ)の伝導帯にスパイク構造を導入す

る検討を行った。本研究は無機太陽電池(立命館大学、宮崎大学)と PVK 太陽電池(九州工業大学、電気通信大学)とのグループ内融合で初めて可能となった。原理を確認するためにモデル n 型酸化膜として ZnMgO 層を用い、FTO glass/ZnMgO/PVK/HTL/Ag/Au 構造の太陽電池を作製した。この酸化膜をモデルとして使った理由は Mg ドープ量により伝導帯準位をコントロールできることが知られているためである(宮崎大学、立命館大学)。ZnO に Mg をドープすることにより、n 型緩衝層の伝導帯準位がペロブスカイト層の伝導帯準位よりも浅いスパイク構造が作製できた。効率はクリフ構造の ZnO を n 型緩衝層に用いた場合よりもスパイク構造のバンド構造を有する n 型 ZnMgO を用いた場合のほうの効率が向上し、スパイク構造が効率向上に有効であることが実証できた。さらに n 型緩衝層はキャリア密度が低く、キャリア移動度が高いほど、さらに膜密度が低い構造が良い効率を与えることを見出した(宮崎大学、電気通信大学、立命館大学、九州工業大学共同)。今後高効率化へのこれらの緩衝層に関する指針を TiO₂ 層に適応し、高効率化を実現する。

(2) 顕著な成果

研究計画変更前の成果

1. n 型 ZnO (無機) と p 型ポリマー P3HT (有機、含色素) の無機有機バルクヘテロ構造を一括で作製するために、n 型 ZnO の前駆体として可溶性の ZnEt₂ を用い、ZnEt₂ と P3HT 溶液の混合物をスピコートした。効率は 2-3% でバルクヘテロ太陽電池として機能することは確認した
2. ペロブスカイト (PVK) 層と無機 p または n 型層のバルクヘテロ構造を作製するためにペロブスカイトと可溶性無機酸化物前駆体 (例えば Pb-xanthate) を混合した溶液を塗布し加熱する事により、n 型 PVK 層/p 型 PbS のバルクヘテロ構造を一括で作製する方法を提案した。実際に PVK 層と PbS 量子ドットのバルクヘテロ構造が確認でき、8.5% の効率を実証できた。
3. キサンテイト原料を用いることで、CuInS₂ および Cu₂ZnSnS₄ 太陽電池光吸収層用化合物半導体ナノ粒子およびナノフィルムを低温 (150 度以下) で作製することに初めて成功した。(特願 2013-185403、特願 2013-185404)
4. ジエチル亜鉛を希釈する溶媒の種類により、多孔質酸化亜鉛および緻密酸化亜鉛薄膜の作製を制御することに成功した。またドナー性不純物を添加することにより、この方法で成膜した多孔質酸化亜鉛薄膜の導電性を制御することにも成功した (特願 2014-039550)

研究計画変更後の成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. PVK 太陽電池のヘテロ界面が太陽電池性能に与える影響と高効率化への指針提案

概要:これまで、TiO₂/PVK ヘテロ界面の構造に関する報告はほとんど無かった。本プロジェクトで PVK 太陽電池のヘテロ界面構造を特定し、ヘテロ界面トラップ(電荷再結合中心)密度と太陽電池特性の関係を表す実測曲線が太陽電池シミュレーションから得られる曲線と類似していることから、ヘテロ界面トラップ(電荷再結合中心)密度が太陽電池性能に与える影響を実証できた。高効率化にはヘテロ界面に存在するトラップ(電荷再結合中心)密度をパッシベーションにより低減する必要があり、さらに効率を向上するためには PVK 層のトラップ(電荷再結合中心)密度を低減する必要があるという指針が提案できた。

2. 高効率化のために n 型緩衝層に求められる電子、物理物性についての提案

概要:これまで n 型の緩衝層に求められる性能として導電性が高いという一般的な表現が用い

られていた。本プロジェクトでは n 型緩衝層として素性が明らかになっている ZnMgO 膜を使い、電子、物理物性と太陽電池性能の関係を詳細に調べたところ、高効率化のためには n 型緩衝層のキャリア密度が小さく、キャリア移動度が大きいことが必要であるという指針が得られた。さらに膜密度が低い n 型緩衝層のほうが高い効率が得られることがわかった。これらの観点からの n 型緩衝層設計指針はこれまでに提案されていない。

3. スパイクバンド構造を有する PVK 太陽電池の提案

概要:これまで PVK から n 型半導体膜(緩衝層)を経て導電性膜(電極)への電荷収集をするために、前記の順に伝導帯が深くなるバンド構造がよく用いられていた。これは電荷移動が伝導帯準位の浅いところから深いところに向かって移動しやすいということで説明されている。本プロジェクトでは CIGS に使われているスパイク型バンド構造を初めて PVK 太陽電池に応用し、n 型半導体膜(緩衝層)の伝導帯が PVK のそれよりも浅いスパイク型バンド構造にしたときに相対的に高い効率を示すことを初めて見出した。スパイク構造が PVK 太陽電池に有効であることを示した報告は無い。

< 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

1. 混合金属 SnPb ペロブスカイト(PVK)太陽電池の高効率化

概要:混合金属 SnPb-PVK は太陽電池に最適な 1.4eV 程度のバンドギャップにチューニングできるため、また低 Pb 含有太陽電池の光吸収層として期待されていたが Voc のロスが大きく、効率は 5% 程度と低かった。本クレスト研究の Pb-PVK 太陽電池で得られたヘテロ界面に関する研究手法を用い、ヘテロ界面のトラップ(電荷再結合中心)密度を低減し、効率を 17% 以上に上げることに成功した。Voc のロスが従来の 0.9eV 程度から 0.43eV と Pb-PVK の Voc ロスと同等まで低下した。赤外光電変換が可能であるため、ペロブスカイト光電変換素子として新しい用途が期待できる。上記界面、バンド構造に関する研究結果は、現在大きな注目を集めている Pb フリー太陽電池にも応用され、Sn-PVK 太陽電池の効率が 2% から 7% 程度まで向上した。これらの効率はそれぞれのペロブスカイト太陽電池の中で、世界のトップレベルの効率である。

2. 結晶面によって量子ドットから酸化物半導体への電子注入障壁が大きく異なる研究結果

概要:単結晶チタニア(ルチル)の 111、110、001 結晶面を用い、その結晶界面に CdSe 量子ドットを形成し、CdSe 量子ドットから単結晶チタニアへの電子注入障壁を詳細に調べた。CdSe 量子ドットの伝導帯準位は成長する結晶面により変化することが分かった。同じエネルギー準位差(CdSe 伝導帯準位-チタニア伝導帯準位)で比べたところ、111 結晶面に形成した CdSe 量子ドットからチタニアへの電子注入速度は 110、001 結晶面上に形成した CdSe 量子ドットよりも 10 倍程度早いことを明らかにした。電子注入時のエネルギーロス太陽電池の開放電圧を大きく下げるため、本研究の成果は高電圧高効率太陽電池形成へ共通基盤技術として広く応用が可能である。本研究は基板の結晶面の情報を受け取り、その上に成長する PVK の結晶構造が異なる、結晶サイズが異なるという重要な結果を得ることができた。これまで基板結晶面とその上に成長するペロブスカイト構造との関係を議論した報告は無い。

3. ホットキャリア寿命が長く、次世代ホットキャリア高効率太陽電池への発展が期待できる CsPbI₃ 太陽電池

概要:ホットキャリア型太陽電池は次世代の高電圧型高効率太陽電池として期待されている。伝導帯準位以上に励起された電子(ホット電子)が伝導帯準位に緩和する前に取り出すことができるため高電圧太陽電池が期待できる。通常ホットキャリアの緩和は早く(fs オーダー)電荷を電極に取り出すことが困難である。代表的な半導体 GaAs でもホットキャリアの緩和は 0.1ps 程度と報告されている。量子ドット化することによりホットキャリアの緩和が遅くなることが知られており、PbS 量子ドットでは 0.4ps 程度である。CREST の山下チームは軌道計算により

CsPbI₃ のホットエレクトロンの寿命が長くなると予想していた。我々はすでに 4-5%の効率を示す CsPbI₃ 太陽電池を世界に先駆けて報告していた(Snaith らの論文が我々の論文よりも早く publishされたが、我々の投稿日時は Snaith よりも三か月早い)。我々のグループは山下グループと議論しながらこの CsPbI₃ を用いてホットエレクトロンの寿命を測定したところ、確かにホットエレクトロンの寿命は 2-3ps と従来の量子ドットよりも長く、また従来の MAPbI₃ の 0.8ps よりも長いことが分かった。1ps よりも長いホットエレクトロン寿命は少なくとも塗布型薄膜では他に例を見ない。

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

①「九州工業大学」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
早瀬 修二	九州工業大学 生命体工学研究科	教授	H24.10～
尾込 祐平	同上	助教	H24.10～
Ripolles Teresa	同上	助教	H27.10～

研究項目

バンドエンジニアリングによる PVK 太陽電池の界面構築と高効率化

バンドエンジニアリングによりペロブスカイト太陽電池の高効率化を達成する。開放電圧 (Voc) のロスはチタニア/PVK 界面の電荷再結合によってもたらされている。電荷再結合を防止するために、CIGS 太陽電池で用いられているスパイクバンド構造を導入するとともに、界面欠陥 (トラップ) 密度を低減する。

②電気通信大学グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
沈 青	電気通信大学大学院 情報理工学研究科	教授	H24.10～
豊田 太郎	同上	特任教授	H24.10～
常 進	同上	ポスドク	H25.11～H27.10
Zhang Yang	同上	ポスドク	H28.4～H29.3
张耀红	同上	D3	H26.11～
丁超	同上	D2	H27.12～

時間分解スペクトルによる電荷分離界面の電荷分離機構の解明

ペロブスカイト太陽電池の変換効率を向上させるためには各界面での電荷再結合を抑制することが鍵となる。本研究では、時間分解分光法を駆使し、バンドコントロールしたペロブスカイト太陽電池(電子輸送層とペロブスカイトとの界面にスパイクバンド構造を導入)および電子輸送層とペロブスカイトとの界面に界面パッシベーション層を挿入した太陽電池の電荷分離・再結合機構の解明を行い、得られた結果をデバイス作製グループにフィードバックすることにより、高効率化の方向性を

示す。同時に試料とデバイスの作製も行う。

・

③ 「宮崎大」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
吉野 賢二	宮崎大学工学部	教授	H24.10～
持原 晶子	同上	技術補佐員	H24.12～H28.8
渡邊 眞倫	同上	技術補佐員	H27.4～H29.6
今井 正人	同上	研究員	H27.4～H29.6

研究項目

高効率太陽電池のための中間層および緩衝膜の作製と光学的、電気的物性の解明および大気生成プロセスの解明

ペロブスカイト太陽電池の電圧ロスには界面欠陥を介した電荷再結合によっておこるため、それらを抑制するためにチタニアとペロブスカイトとの界面に修飾薄膜層を挿入する。本研究では、界面修飾薄膜層として酸化物半導体である $Zn_{(1-x)}Mg_{(x)}O$ を用いる。X の値を変えることにより、禁制帯幅および伝導帯エネルギー準位をコントロールする。低温かつスピンコート法で作製できる金属プリカーサーの作製、薄膜化技術、およびその光学的・電気的物性を評価し、大気生成メカニズムを解明する。それらの薄膜技術をバンドコントロールしたペロブスカイト太陽電池の作製のために、九州工業大学に提供する。

②立命館大学グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
峯元 高志	立命館大学理工学部	教授	H28.4～
Md.Mijanur Rahman	立命館大学総合科学技術研究機構	専門研究員	H28.4～
平山 輝明	立命館大学大学院理工学研究科	M1～2	H28.4～

研究項目

高効率デバイス理論設計と界面修飾薄膜層作製

太陽電池用1次元デバイスシミュレータを用いてペロブスカイト太陽電池の変換効率向上に必要なとされる要求物性を明らかにする。特に、界面・バルクにおける欠陥密度とキャリア寿命の太陽電池特性への影響を定量的に明らかにするとともに、実デバイスとの比較を行うことで、高効率化のボトルネックを明らかにする。さらに、界面でのキャリア再結合を低減するための伝導帯位置制御可能な界面修飾薄膜層を開発することでペロブスカイト太陽電池の高効率化を果たし、プロジェクト全体の目標達成に貢献する。

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について
(研究チーム外での連携や協働についてご記入ください。ライフ分野では臨床医等を含みます。)

本研究チームはシミュレーション—キャリアダイナミクス解析—半導体物性測定—太陽電池特性評価とバランスよく連携できるチームであるが、本チーム内でできない項目については以下と連携している。

1. 分子軌道計算: 九州工業大学 生命体工学研究科 飯久保智 准教授
2. インピーダンス解析: スペイン ジェウマ1世大学 Juan Bisquert 教授
3. ダイナミクス解析: フランス Fonctions Optiques pour les Technologies de l'information
Jacky Even 教授
4. 無機色素(量子ドット)の合成: 中国華東理工大学 Xinhua Zhong 教授
5. 無機色素(量子ドット)のダイナミクスの評価: 中央大学 理工学部応用化学科片山建二教授
6. ホール輸送材の合成: 日本大学 理工学部 物質応用化学科 大月穰教授

§ 3 研究実施内容及び成果

3. 1 九州工業大学 早瀬グループ (1)研究実施内容及び成果

3. 1. 1 可溶性 p 型半導体前駆体 (Pb xantate) と可溶性 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{I}$ (MAI) との混合フィルムからの Pb ペロブスカイト/PbS(含量子ドット)界面の形成

これまで Pb ペロブスカイトは前駆体の $\text{CH}_3\text{NH}_3(\text{MAI})$ と PbI_2 を反応させて合成していた。本研究で Pb ザンテート (PbXT) が MAI と反応することにより n 型 Pb ペロブスカイトが生成することを新しく見出した。また、PbXT は 152°C で自己分解し、p 型半導体 PbS を

生成することがこれまでの研究で分かっており、分解温度、または PbX と MAI の比を変えることにより、一括塗布で n 型 Pb ペロブスカイト/p 型 PbS 界面を作製できることを明らかにした (図 3.1.1.1)。このように一括プロセスで太陽電池 (FTO glass/c-TiO₂/mp-TiO₂/MAPbI₃/PbS(bulkhetero-structure)/Ag/Au) を作製したところ、8.53% (開放電圧 Voc: 0.74, 短絡電流 Jsc: 20.86mA/cm², 極性因子: 0.56) の太陽電池特性を確認できた。今後高効率化を図るためには加熱温度などのプロセス条件の最適化が必要であるが、一括プロセスで作製された界面の有効性を実証するためには十分な効率と考える。短絡

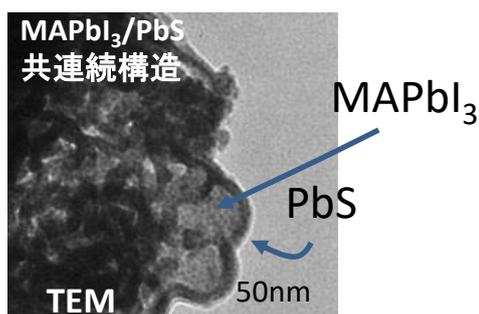


図 3. 1. 1. 1 一括プロセスで作成した MAPbI₃ (n 型) と PbS (p 型) の共連続ナノコンポージット

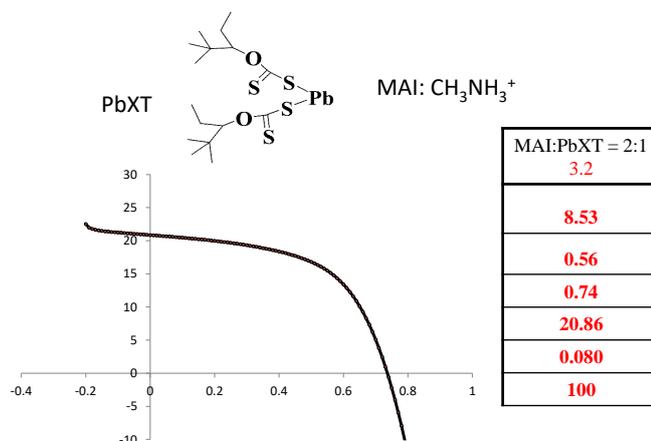


図 3. 1. 1. 2 一括プロセスで作成した MAPbI₃ (n 型) と PbS (p 型) の共連続ナノコンポージットを光吸収層として使った太陽電池特性

電流が高いことから内部抵抗が低い電荷分離界面が形成されていると推定できる。また、膜深さ方向に S 元素の分布を調べたところ表面に PbS 成分が多いことを確認しており、太陽電池として PbS(p 型)/Pb perovskite (n 型)バルクヘテロ構造になっていると予想できる。一方、本方法で作製した PbS 層に PbS 量子ドットが含まれていることを初めて見出した。MAI が量子ドット表面保護基として PbS 量子ドットのサイズをコントロールしていると考えられる。本研究は一括塗布によって n 型 Pb ペロブスカイト/p 型 PbS 界面を有する太陽電池が作製できたことを実証しており、今後他の金属ゼンテートを使うことにより、n 型無機半導体/p 型無機半導体界面の一括形成へと一般化できる。

3. 1. 2. Pb-PVK 太陽電池のヘテロ界面構造と太陽電池性能に関する研究

光入射側の界面であるチタニア/ペロブスカイト層界面の構造と太陽電池効率との関係を詳細に検討した。チタニア/ペロブスカイト層には Ti-O-Pb 結合が形成され、これらの結合によりチタニア界面のトラップ密度が低減した(図 3.1.2.1)。また時間分解スペクトルの測定からトラップ密度を低減したチタニア/ペロブスカイト界面でキャリアの寿命が長くなっていることがわかり、界面トラップ密度の低減により電荷再結合が抑制されていることを実証できた(電気通信大学との共同研究)。PbCl₂ でポーラスチタニア界面をパッシベーションすると、反応温度によってパッシベーションの程度を変えることができ、トラップ密度を変えることができる。界面のトラップ密度と効率、Voc の関係は逆 S 字形であり、界面のトラップ密度がある程度下がるとトラップ密度は効率には大きく関与しなくなることがわかる(図 3.1.2.1)。この結果はデバイスシミュレーションの結果と非常によく一致し

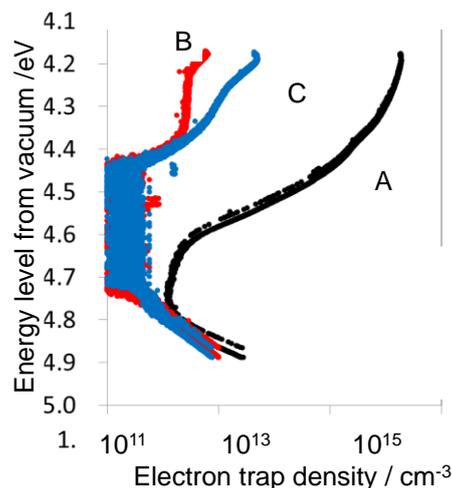


図 3.1.2.1 ナノポーラスチタニアのトラップ密度分布とパッシベーション後のトラップ密度相対比較
A: ポーラスチタニアのみ、B: ポーラスチタニアを PbI₂ で塗布、C: B を DMF で洗浄しチタニアに直接吸着している PbI₂ のみを残した複合体

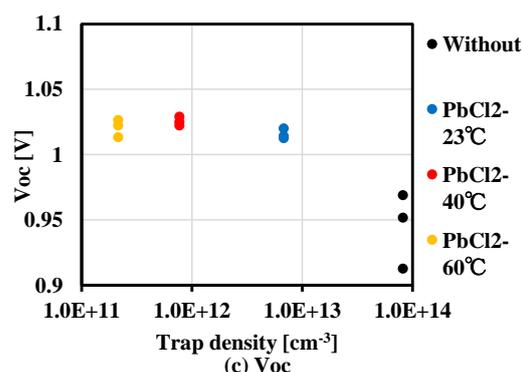
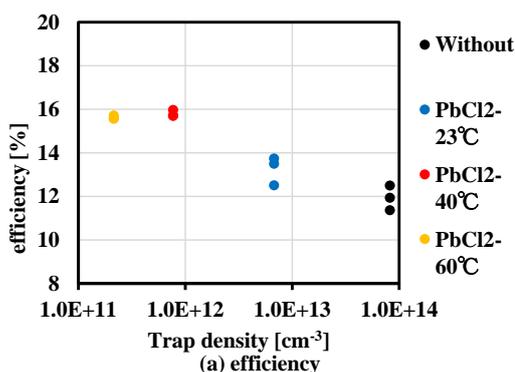


図 3.1.2.2 ポーラスチタニア/MAPbI₃ 界面のトラップ密度と効率、Voc の関係

ていた(峯元計算結果)。デバイスシミュレーションによると、さらに効率を上げるためにはペロブスカイト結晶の欠陥を低減する必要がある。

一方、光入射と反対の界面であるペロブスカイト層/ホールトランスファー層界面にF原子を有する界面活性剤薄膜を挿入することにより(図 3.1.2.3)、キャリア寿命が延びたことから、F原子薄膜がペロブスカイト層/ホールトランスファー層界面での電荷再結合を抑制する効果があることがわかった。TFBA の添加量に最適値があり、最適値よりも多いと性能は低下した(図 3.1.2.4)。添加量が多いと絶縁層として働いたためと考えられる。これらの界面構築により変換効率は従来の 15% から 18% まで向上できた。Pb-PVK の界面構造と電荷トラップ密度、および効率の関連を明確にした報告は無い。

3. 1. 3. スパイクバンド構造を持ったペロブスカイト太陽電池(電気通信大学、立命館大学、宮崎大学共同、詳細は電気通信大学の研究結果記載を参照願いたい)
界面での電荷再結合を抑制する方法として、上記トラップ密度の低減以外に、CIGS 太陽電池で電荷再結合が抑制されることが実証されているスパイク型バンド構造を導入する検討を行った。モデル酸化膜として ZnMgO バッファ層 (PVK/ZnMgO/FTO/glass) を用いた。ZnO に Mg をドーピングすることにより、緩衝層の伝導帯準位がペロブスカイト層の伝導帯準位よりも高いスパイクバンド構造とすることができた。効率はクリフ構造の ZnO を緩衝層に用いた場合よりも、スパイクバンド構造の ZnMgO を用いた場合が向上し、スパイクバンド構造が効率向上に効率に有効であると推定できた。スパイクバンド構造を有する PVK 太陽電池に関する報告は無い。

3. 1. 4. 赤外領域に高い光電変換機能を有する Sn/Pb 二元系ペロブスカイト太陽電池
従来の Pb ペロブスカイトは 400nm-800nm の可視光のみを光電変換できるが、今後さらに短絡電流値を大きくし効率を上げるためには 400nm-1000nm の可視光および近赤外光を光電変換する必要があった。これまでの研究で Sn ペロブスカイトは可視光から 1200nm までの近赤外光を含む光吸収があることがすでに報告されていたが、空气中で不安定であり太陽電池としての発電は報告されていなかった。我々は Sn/Pb の 1:1 化合物が比較的空气中で安定であり、可視光から 1100nm 程度の近赤外域までの範囲で高い内部量子収率(1000nm で 0.75 程度)で光電変換することを初めて見出し、可視-赤外光変換ペロブスカイト太陽電池として世界に先駆けて報告した。光音響スペクトルを用いて結晶欠陥を相対的に評価し、その欠陥を少なくすることにより短絡電流として 30mA/cm² と世界トップの短絡電流値を実現できた(電気通信大学と共同)。しかし、効率は 3-5% に

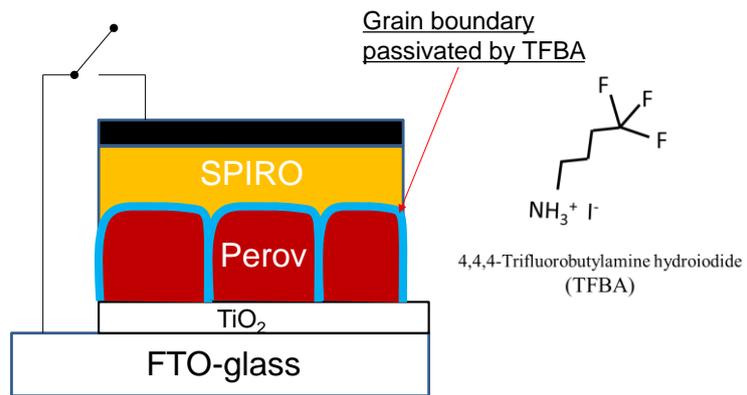


図 3. 1. 2. 3 ホール輸送層 (SPIRO) /MAPbI₃ 界面へのフッ化アルキルアンモニウム塩の挿入 (ペロブスカイト溶液に TFBQA を添加し、一括で PVK/TFBA/SPIRO 界面を形成)

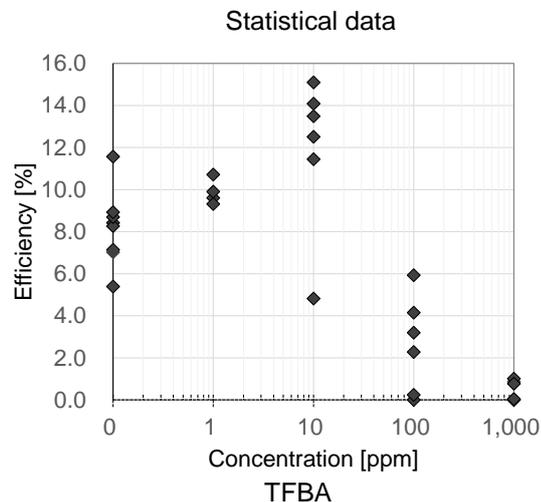


図 3. 1. 2. 4. TFBA 添加量と太陽電池効率の関係(太陽電池構成は図 4. 1. 2. 3 を参照)

留まっており、 V_{oc} のロスが 0.9V 程度と非常に大きいことがわかっていました。そこで Pb-PVK 太陽電池の界面に関する研究によって得られた手法を SnPb 混合金属ペロブスカイト太陽電池に適用し、SnPb-PVK とチタニア界面のトラップ密度を測定したところ、チタニアだけの表面のトラップ密度よりも SnPb-PVK/チタニア界面のトラップ密度が高くなることを見出した。つまりチタニアと SnPb ペロブスカイトの界面に Ti-O-Sn 結合が形成され、これがトラップとなる。そのためヘテロ界面にトラップが多く形成されることがわかった。SnPb-PVK/mp-TiO₂ ヘテロ界面に薄膜 Y₂O₃ を形成し、直接 SnPb-PVK と mp-TiO₂ がコンタクトすることを避けたデバイスを作製したところ、確かに V_{oc} のロスが小さくなり V_{oc} および効率とも向上した。これらの実験事実はチタニアと SnPb-PVK が接することにより界面で発生するトラップ密度が Y₂O₃ 薄膜を挿入することで減少した結果であると説明できる(図 3.4.1)。

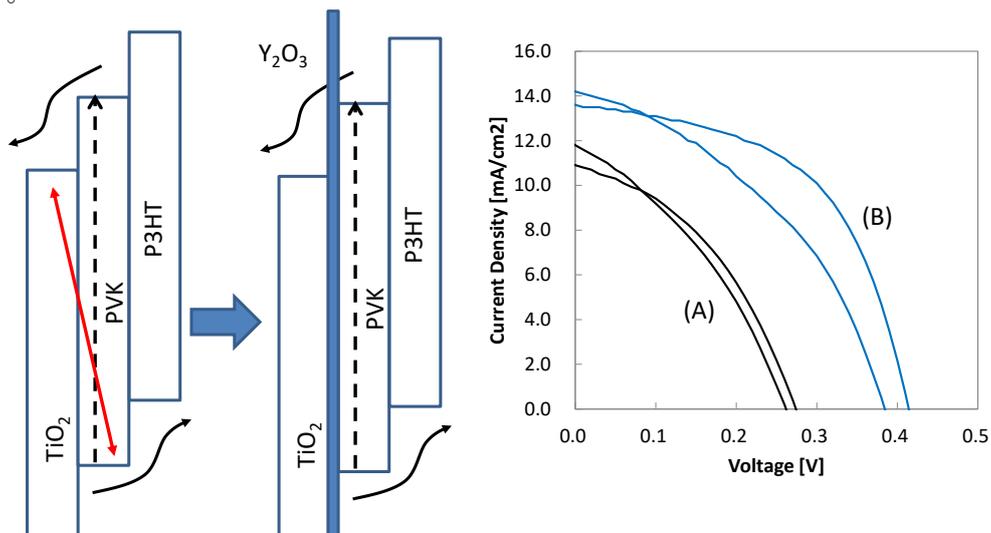


図 3.1.4.1. mp-TiO₂/Y₂O₃/SnPb-PVK と mp-TiO₂/SnPb-PVK のヘテロ界面を有するペロブスカイト太陽電池の効率比較

(A)

しかし非常に広い表面積を持つ mp-TiO₂ 表面を Y₂O₃ 薄膜で完全に被覆することは難しく、 V_{oc} のロスは改善されたとはいえ、まだ 0.78V と大きかった。そこでチタニアとのコンタクトを避けるため、チタニアの代わりに n 型半導体として C60 を使用して逆構造の太陽電池を作製したところ、 V_{oc} のロスが非常に大きく向上することがわかった。C60 を n 型半導体を使用することによって

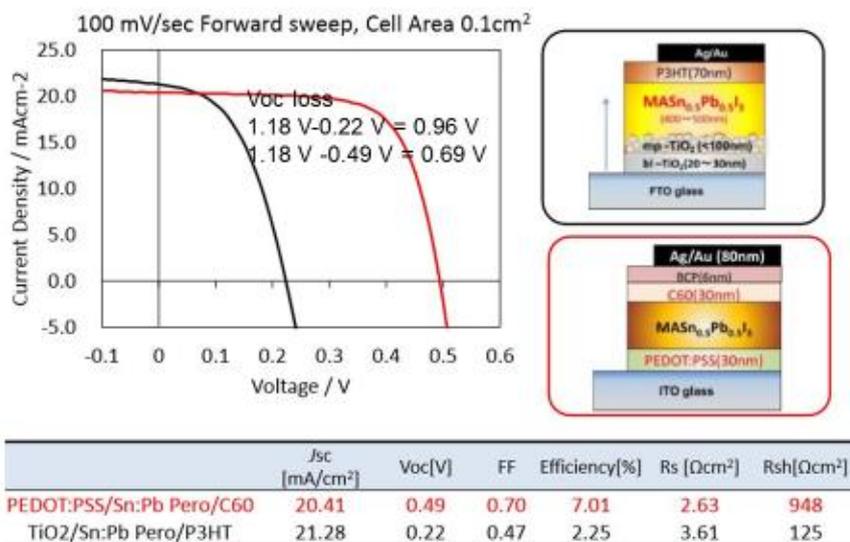


図 3.1.4.2. n 型層に C60 を用いた逆構造太陽電池と mp-TiO₂ を用いた順構造太陽電池の比較

Voc のロスが0.69と減少した(図 3.1.4.2)。さらに最適化することにより Voc のロスが0.43Vとなり、Pb-PVK 太陽電池とほぼ同等まで Voc のロスを低減できた。この結果、当初5%の効率を16%の効率まで向上させることができた(図 3.1.4.3)。

Eff: 15.93, Jsc: 26.53mA/cm², Voc, 0.77V, FF: 0.78

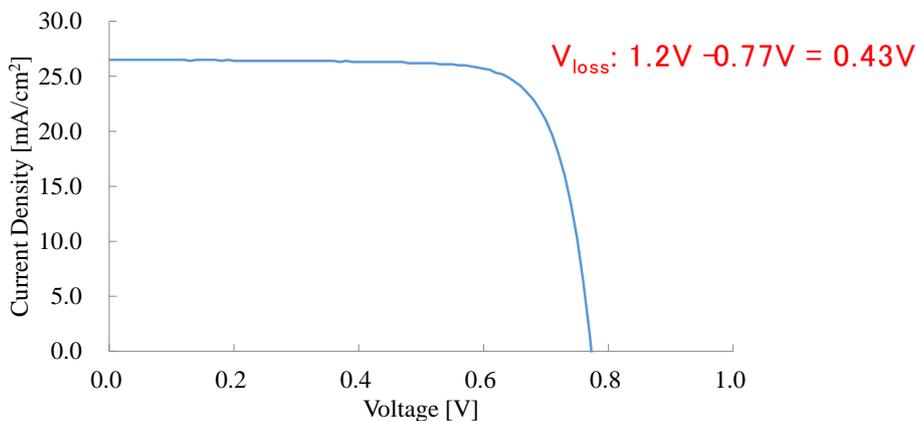


図 3. 1. 4. 3. n 型層に C60 を用いた逆構造太陽電池のペロブスカイト結晶欠陥を少なくした SnPb-PVK 太陽電池特性

3. 2 電気通信大学 沈グループ

3. 2. 1. ペロブスカイト太陽電池の変換効率を向上させるためには各界面での電荷再結合を抑制することが鍵となる。本研究グループでは、時間分解分光法を駆使し、バンドコントロールしたペロブスカイト太陽電池(電子輸送層とペロブスカイト層にスパイクバンド構造を導入)および電子輸送層とペロブスカイトの界面に界面パッシベーション層を挿入した太陽電池の電荷分離・再結合機構の解明を行い、得られた結果をデバイス作製にフィードバックすることにより、高効率化の指針を提案する。同時に試料とデバイスの作製も行った。主に以下の 3 つの内容を行った。

1. スピンコート法を用いた塗布型伝導帯位置制御可能な界面修飾薄膜層の開発
2. 塗布型界面修飾薄膜層を用いたペロブスカイト太陽電池の試作
3. バンドコントロールしたペロブスカイト太陽電池(界面制御を含む)の各ヘテロナノ界面での電荷分離・電荷再結合プロセスの解明

まず、スピンコート法を用いて伝導帯準位の制御が可能な塗布型 Zn_{1-x}Mg_xO(x: 0 - 0.2)緩衝層の開発を行った。作製した Zn_{1-x}Mg_xO(x: 0 - 0.2)膜に対して、光電子分光(XPS)スペクトル、光電子収量分光(PYS)スペクトル、光吸収と発光スペクトルなど各種特性評価を行った。その結果より、Mg の組成比xが 0 から 0.2 まで増加するに伝、Zn_{1-x}Mg_xO のバンドギャップの価電子帯位置はほぼ同じであるが伝導帯位置は-4.13 eV から-3.85 eV までシフトしたことが分かった(Figure 3.2.1)。そのため、ペロブスカイト(MAPbI₃)光吸収層を Zn_{1-x}Mg_xO(x: 0 - 0.2)膜の上に作製した際に、Zn_{1-x}Mg_xO(x: 0 - 0.2)/MAPbI₃界面はCliff構造(x: 0)からSpike構造(x: 0.05 以上)に変化することを明らかにした。一方、Zn_{1-x}Mg_xO の発光スペクトルは Mg の組成比 x に強く依存することを見出した。Figure 3.2.2 に示すように、Zn_{1-x}Mg_xO の伝導帯と価電子帯のバンド端における発光は 350 nm-400nm の間に見られるが、450 nm から 600 nm まで欠陥準位によるブロードな発光ピークが見られ

る。欠陥準位に起源する発光の相対的な強度は、 x が0から0.1まで増加と共にわずかに減少したが、 x が0.1から0.25まで増加と共に顕著に増加したことが判明した。次に、上記で開発した $Zn_{1-x}Mg_xO$ ($x: 0 - 0.2$) 緩衝層を用いて、ガラス / FTO / $Zn_{1-x}Mg_xO$ ($x: 0 - 0.2$) / MAPbI₃ / Spiro-OMeTAD / Au 構造 (Figure 3.2.3) を持つペロブスカイト太陽電池を作製した。Figure 3.2.3 にその断面SEM観察像を示す。Figure 3.2.4 に作製したペロブスカイト太陽電池の光電変換特性の x 依存性を示す。表 3.2.1 に各光電変換特性のパラメータ、すなわち短絡電流密度 J_{sc} 、開放電圧 V_{oc} 、曲線因子 FF とエネルギー変換効率 PCE の x 依存性を示す。 x が0から0.1まで増加に伴い、 J_{sc} 、 V_{oc} 、FF と PCE は増大した。その原因は Figure 3.2.1 に示すように、 x の増加に伴い $Zn_{1-x}Mg_xO$ と MAPbI₃ の界面がCliff構造からSpike構造へ変化し、この界面での電荷再結合が著しく抑制できたことである。特に、Figure 3.2.1(b) に示すように、 V_{oc} のロス (ペロブスカイトのバンドギャップ E_g と開放電圧 V_{oc} との差) は $x=0.1$ の場合では一番小さかった。一方、 x が0.1より大きくなると、 J_{sc} 、 V_{oc} 、FF と PCE は再び小さくなったことが分かった。これは x が0.1より大きい場合では、スピノコート法で作製した $Zn_{1-x}Mg_xO$ 膜における欠陥密度が大きくなったためだと考えられる (Figure 3.2.2)。時間分解レーザー分光法 (過渡吸収法: TA法) を用いて、バンドコントロールしたペロブスカイト太陽電池の FTO / $Zn_{1-x}Mg_xO$ ($x: 0 - 0.2$) / MAPbI₃ 界面における電子注入と再結合ダイナミクスを評価した。電子注入時間の x 依存性を Figure 3.2.5 (a) に示す。この結果より、ペロブスカイトからの電子注入時間は x が0から0.1まで増加した場合ではほとんど変化せず 6 ns ぐらいであることが、 x がさらに増加すると電子注入が 7 ns ぐらいまで遅くなったことが分かった。Figure 3.2.5 (b) にこの界面での再結合時間の x 依存性を示す。 x が0から0.1まで増加すると共に再結合が抑制され 0.8 ms から 1.4 ms まで遅くなったが、 x が0.1より大きくなると再結合が再び早くなったことは明らかになった。これらの結果より上記に示した光電変換特性の x 依存性をよく説明でき、 $Zn_{1-x}Mg_xO$ 界面修飾層のエネルギー準位とその欠陥特性などの性質はペロブスカイト太陽電池の光電変換特性の向上の鍵であることを証明した。

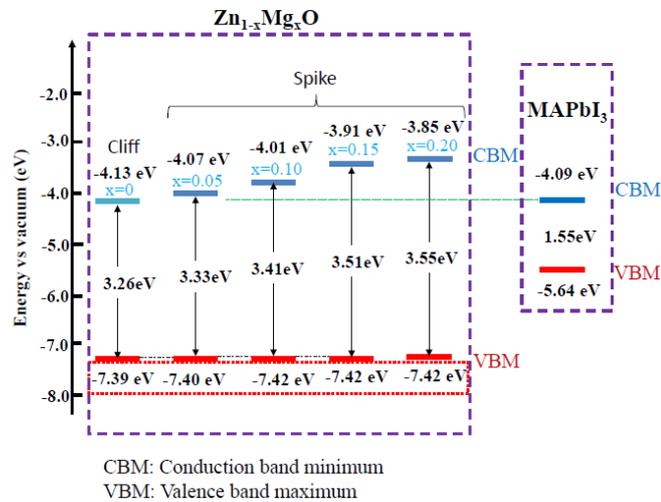


Figure 3.2.1 Energy level of MAPbI₃ and $Zn_{1-x}Mg_xO$

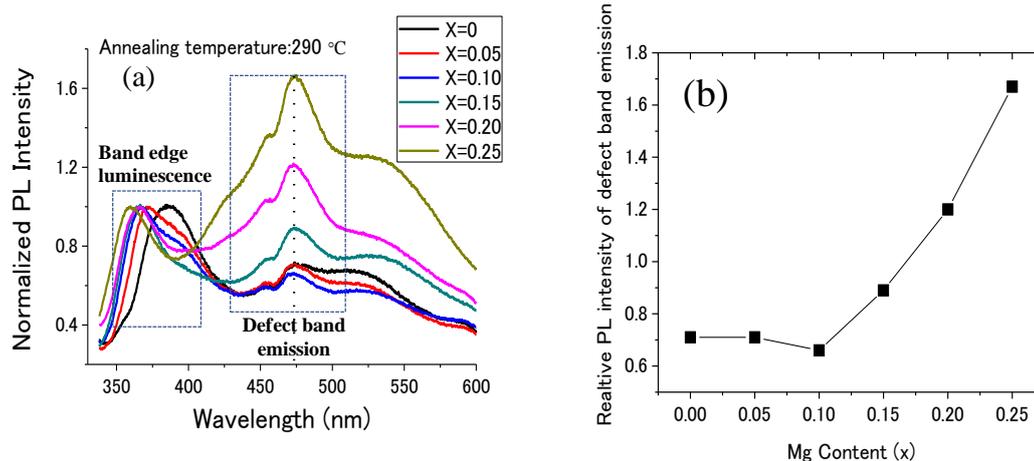


Figure 3.2.2 (a) Dependence of the photoluminescence (PL) spectra of $Zn_{1-x}Mg_xO$ on x . PL is normalized at the band edge PL intensity; (b) Dependence of the relative PL intensity of the defect emission at 475 nm on x .

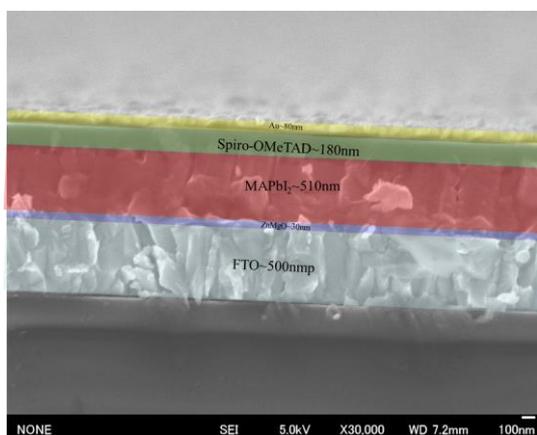


Figure 3.2.3 SEM image of the cross section of the perovskite solar cell.

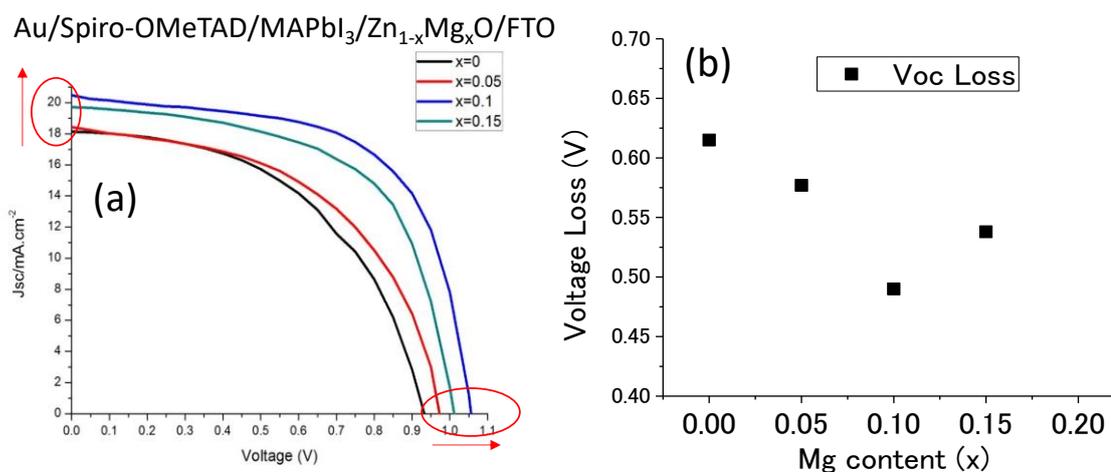


Figure 3.2.4 (a) Photovoltaic performance of the planar structure perovskite solar cells using $Zn_{1-x}Mg_xO$ (x : 0 - 0.2) as the electron selection layer for different x ; (b) Dependence of the Voc loss of the perovskite solar cells on x .

Table 3.2.1 Dependences of J_{sc} , V_{oc} , FF and PCE of the perovskite solar cells (glass/FTO/ $Zn_{1-x}Mg_xO$ ($x: 0 - 0.2$)/MAPbI₃/Spiro-OMeTAD/Au) on x of the interfacial layer $Zn_{1-x}Mg_xO$.

Sample	J_{sc} (mA/cm ²)	V_{oc} (mV)	FF	PCE(%)
X=0	18.15	935	0.502	8.52
X=0.05	18.43	973	0.514	9.22
X=0.1	20.46	1060	0.617	13.32
X=0.15	19.72	1012	0.593	11.84

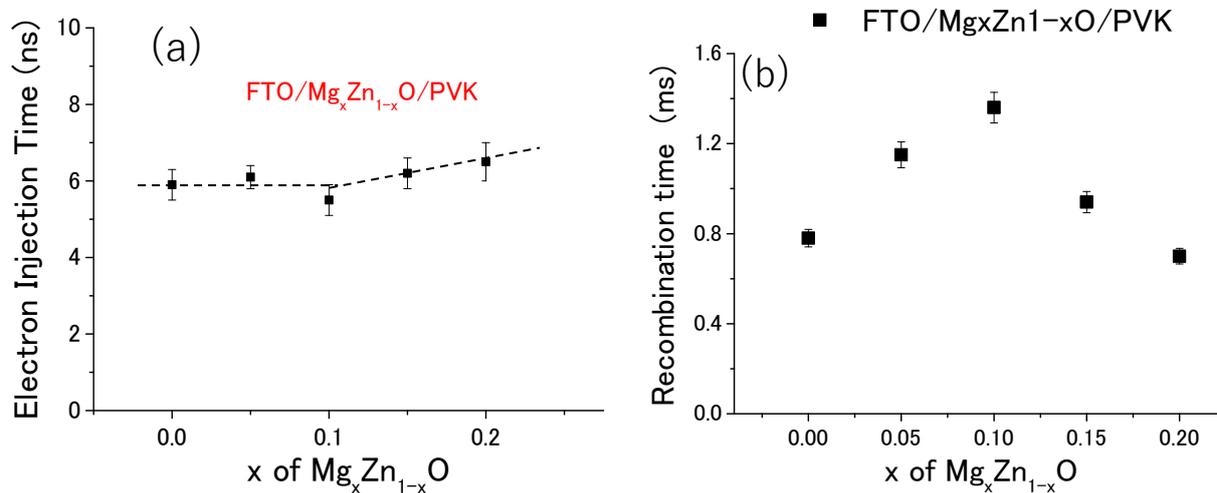


Figure 3.2.5 (a) Electron injection time (b) recombination time at the FTO/ $Zn_{1-x}Mg_xO$ ($x: 0-0.2$)/MAPbI₃ interface for different x .

3. 3 宮崎大学 吉野グループ

3. 3. 1. スパイク構造を有する緻密緩衝層に関する検討

n 型半導体とペロブスカイト界面にスパイク構造を導入するためペロブスカイト伝導帯よりも浅い伝導帯を有すると期待できる $ZnMgO$ 膜作製の検討を行った。Fig. 3. 3. 1. にスピコート法で作製した $ZnMgO$ 膜の熱処理温度を変化させた X 線スペクトルを示す。ICDD と比較すると、熱処理温度が 100 °C 以上のサンプルにおいて、(10-10)、

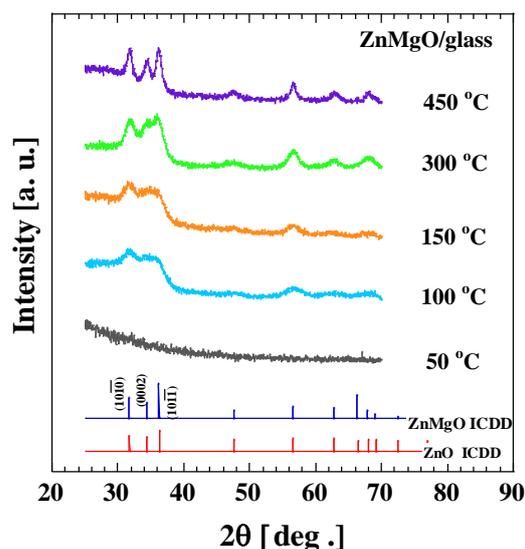


Fig. 4.3.1 XRD for $ZnMgO$

(10-11)面のピークが確認できた。このことから、熱処理温度が 100°C以上から ZnMgO の結晶が形成されたと考えられる。*a* 軸, *c* 軸の格子定数は、熱処理温度が増加するにしたがって各格子定数の値が ICDD の値に近づく傾向がみられた。このことから熱処理温度が増加するにしたがって Mg が Zn と置換し、ZnMgO が生成していることが明らかとなった。

3. 3. 2. 2 種類の溶媒で希釈したジエチル亜鉛(DEZ)原料を用いて、スピコート法により室温で成膜し、50~200°Cで熱処理を行った。Fig.4.3.2 に 150°Cで熱処理をして作製した ZnO 膜の SEM の表面画像を示す。使用する溶媒により、ZnO 薄膜が緻密および多孔質を作り分けることができた。DEZ と溶媒の沸点の大小関係が起因していることを突き止めた。X 線回折より作製した 2 種類の ZnO 膜は、いずれも ICDD カードのピーク位置と一致しており、多結晶 ZnO 膜が形成されていることを確認した。

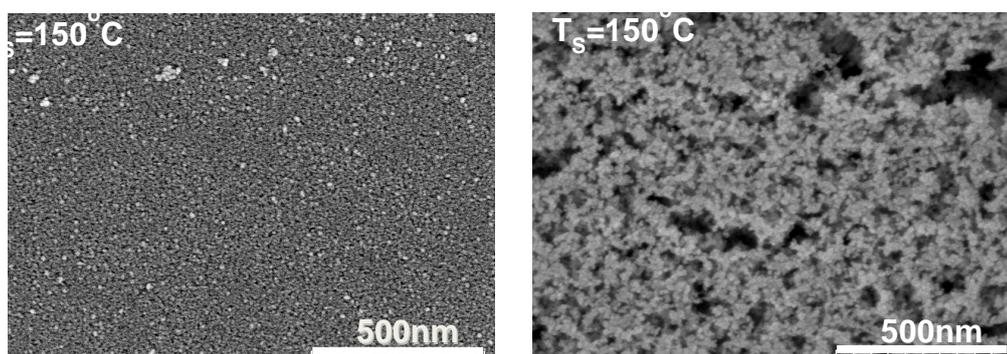


Fig. 3.3.2 SEM image of porous (left) and compact (right) ZnO

3. 4 高効率デバイス理論設計と界面修飾薄膜層作製(立命館大学 峯元グループ)

3. 4. 1. 本グループでは、デバイスシミュレーションを用いたデバイス設計・動作解析およびスパッタ法を用いた界面修飾薄膜層の開発を行った。まず、シミュレーションによってペロブスカイト太陽電池の界面再結合速度およびペロブスカイト層の品質が太陽電池性能に与える影響を解析した。シミュレータには Gent 大学(ベルギー)で開発された Solar Cell Capacitance Simulator (SCAPS)を用いた。太陽電池構造は光入射側から、SnO₂:F(透明電極)/TiO₂(ホールブロッキング層)/ペロブスカイト(MAPbI₃:光吸収層)/Spiro-OMeTAD(ホール輸送層)とした。TiO₂とペロブスカイトの伝導帯不連続量、およびペロブスカイトと Spiro-OMeTAD の価電子帯不連続量はともにゼロとした。Fig.3.4.1 に光入射側界面(TiO₂/ペロブスカイト)と裏面側界面(ペロブスカイト/Spiro-OMeTAD)の界面再結合速度が太陽電池パラメータに与える影響を示す。電子と正孔の捕獲断面積はともに $2 \times 10^{-14} \text{cm}^2$ 、熱速度はともに 10^7cm/s とした。再結合速度の基準値を 10^4cm/s とし、光入射側界面の再結合速度を変化させるときは裏面側界面の再結合速度を基準値に固定し、また、逆の場合にも同様にした。全ての太陽電池パラメータは、光入射側界面の再結合速度に大きく依存し、裏面側界面にはほぼ影響を受けないことが分かった。ペロブスカイトで生成された電子と正孔は、内蔵電界によって電子は光照射側界面に、正孔は裏面側界面に分離される。よって、光入射側界面に正孔が存在すれば分離された電子と再結合が起こる。光入射側では光照射によって電子と正孔が常に供給されるため再結合が起こりやすい。一方、裏面側界面では、分離された正孔は存在するが光生成電子が少ないために再結合が比較的少なくなる。本シミュレーションではペロブスカイト層の光吸収係数が大きいために、裏面側界面における再結合はほぼ無視できる水準であった。すなわち、ペロブスカイト太陽電池の高性能化には光入射側界面における再結合速度の低減が重要であることがわかった。しかし、裏面側界面の品質も、ペロブスカイト層が薄い場合(すなわち、裏面近傍でも十分に電子が発生する状況)や、固定電荷が発生する場合には、

性能に影響を与える。光照射側の再結合速度は 10^2cm/s 以下であれば十分に高効率を得られることがわかった。

Fig.3.4.2 には光入射側の界面欠陥密度・再結合速度とペロブスカイトのライフタイムを変えた場合の太陽電池特性を示す。効率は界面欠陥密度が $10^9/\text{cm}^2$ までは密度が低下するにつれ高くなるが、 $10^9/\text{cm}^2$ 以下にしても変化しなくなる。一方、この界面状態でペロブスカイトの欠陥を低減しライフタイムを向上させると大きな効率向上が期待できる。界面の欠陥密度とペロブスカイトの欠陥密度は相互に連携しており、界面欠陥密度が高いときには効率は界面欠陥密度に大きく依存し、界面欠陥密度がある程度小さくなるとペロブスカイト結晶内欠陥の影響が大きくなる。高効率化のための研究方針としては界面欠陥密度を $10^9/\text{cm}^2$ まで低減できる技術を確立した後に、ペロブスカイトバルク結晶内欠陥を低減する方針が推奨できることが明らかとなった。

次に界面修飾薄膜層としてスパッタ法によって $\text{Zn}_{1-x}\text{Mg}_x\text{O}$ (ZMO) を作製し、これをペロブスカイト太陽電池に用いた。ZMO は Mg 濃度(x)によって伝導帯位置を制御できるためスパイク構造を形成することが可能であり、光照射側の接合(即ち ZMO/ペロブスカイト界面)における再結合を低減させることができると理論的に考えられる。しかし、スパッタ法を用いた場合には、前述の電通大の報告にあるスピコート法を用いた場合に比べ、 J_{sc} が低く、高い効率を得ることができなかった。膜厚の影響を当初考えたが両手法ともに $20\sim 50\text{nm}$ 程度であり効率との明確な相関は見られなかった。そこで太陽電池特性に影響を与える ZMO の物性値を明らかにするため、ZMO の物性(Mg 濃度、密度、抵抗率)と性能の相関解析を行った。**Fig.3.4.3** にスパッタ法およびスピコート法によって作製された ZMO を用いたペロブスカイト太陽電池の性能と ZMO の物性値の散布図行列を示す。対角線よりも下側には対応するパラメータ対の相関係数を示している。相関係数とは二つの変数の線形な関係の強弱を示す数値であり+1 であれば完全に正に線形であり、-1 であれば完全に負に線形である。0 であれば無相関であることを示す。図の見方であるが、例えば、左上角の図は効率と抵抗率(ただし、 $\log_{10}(\rho)$)の関係を示しており、縦軸に効率、横軸に抵抗率をとったものになっている。対応する相関係数は左下角に示してあり-0.29 である。さて、図より、 J_{sc} と密度に負の強い相関(相関係数:-0.82)があることがわかった。スパッタ膜は密度が $5.0\sim 5.6\text{g/cm}^3$ でありバルクと同程度に高い値であるが、スピコート膜は $3.3\sim 3.9\text{g/cm}^3$ でありバルクに対して $6\sim 7$ 割程度と低い値である。スピコート膜の低い密度が高い J_{sc} と関係していることが示唆された。次に、 V_{oc} は Mg 濃度と抵抗率の両方と負の相関(それぞれ-0.51 と-0.54)があり、FF と密度に負の相関(-0.57)があることがわかった。 J_{sc} 、 V_{oc} 、FF の積である効率は密度と負の強い相関(-0.88)があることがわかった。理論的には、 V_{oc} と FF が Mg 濃度に関係するため、Mg 濃度と効率に強い相関があると想定していたが、実際には-0.16 という負の弱い相関があるのみであった。これは密度が効率を強く制限しているために Mg 濃度との相関が見えなくなっているためと考えられるため、スピコート膜のデータのみを用いて **Fig.3.4.4** に示す散布図行列を作成した。 J_{sc} と比較的相関が強いのは Mg 濃度(0.42)であったが、その相関度は強くなかった。理論から予想されるように、 V_{oc} と Mg 濃度に正の強い相関(0.84)があることが分かったが、同時に抵抗率とも正の強い相関(0.81)があることがわかった。ここで Mg 濃度と抵抗率の相関(0.67)を考えると比較的強い相関があることから両者の影響を明確に切り分けることは難しい(しかし、後述のように重要なパラメータは Mg 濃度である)。FF と Mg 濃度にも正の強い相関(0.78)があることが分かった。最終的に、効率と Mg 濃度に正の相関(0.69)があることが明らかとなった。一方、効率と抵抗率には正の弱い相関(0.31)しかないために、効率を第一に左右するのは Mg 濃度であることがわかった。効率と密度が無相関(-0.07)となったが、これは密度が最適範囲(即ち、低密度)にあれば効率を制限しないことを示している。以上の結果より、ZMO は密度が低く、かつ適した Mg 濃度を持った場合にペロブスカイト太陽電池の効率が高くなることが明らかとなった。

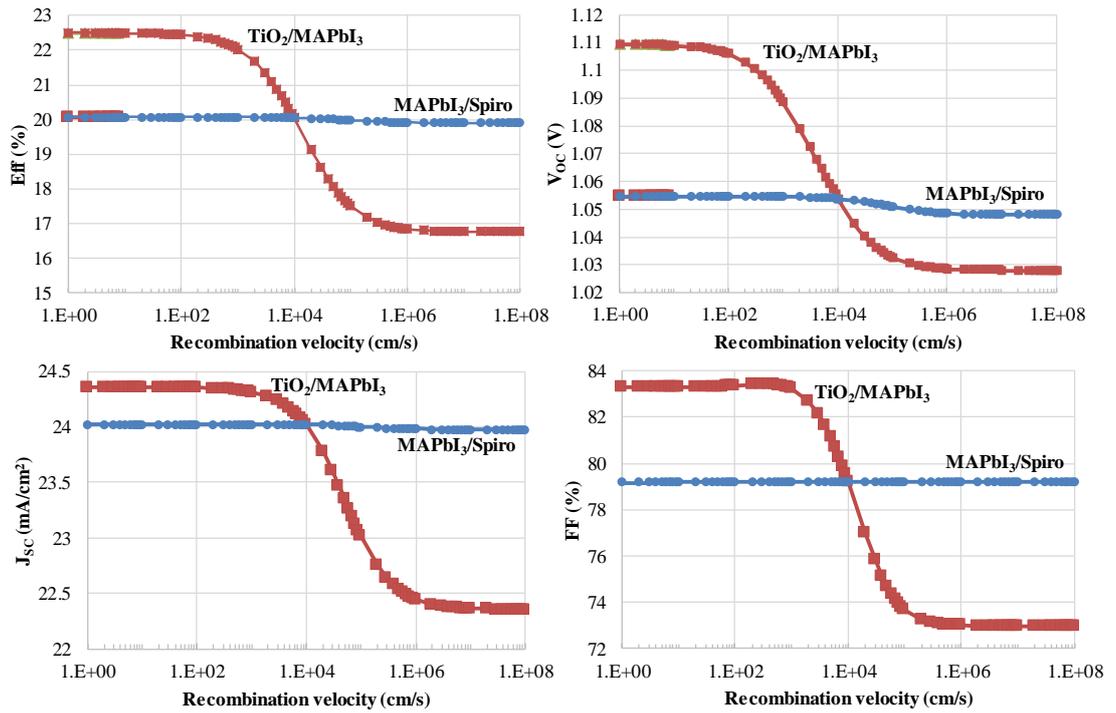
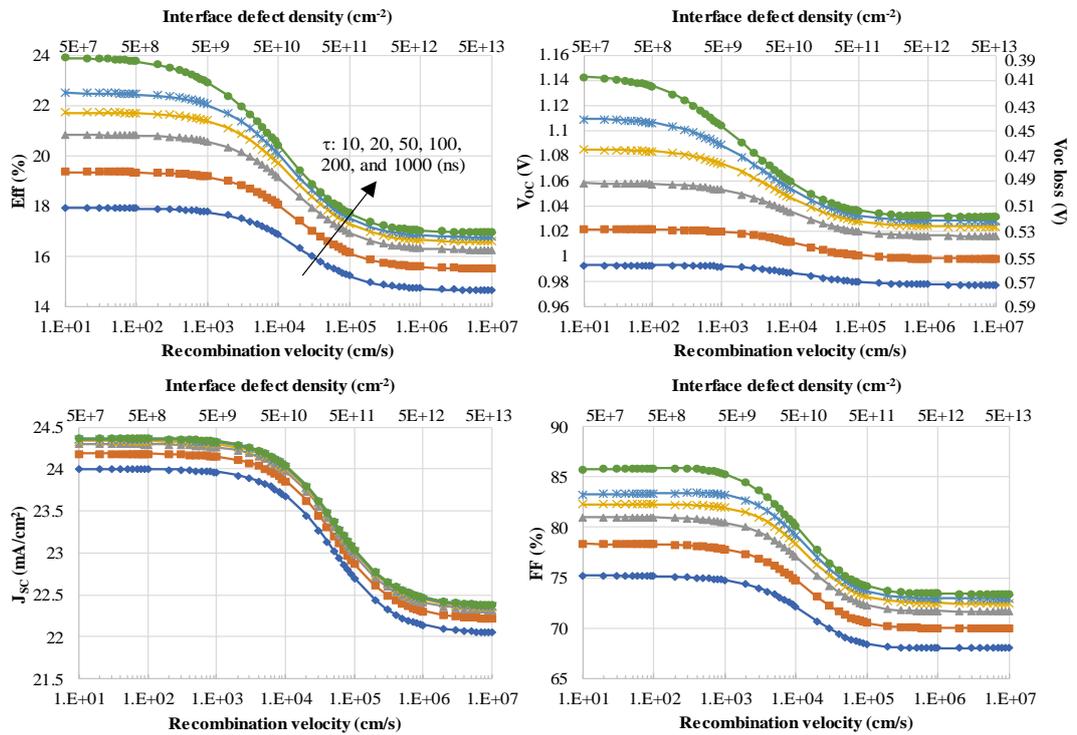


Fig. 3.4.1 Relationship between photovoltaic parameters and recombination velocity at front and rear hetero-interfaces.



Eg: 1.55eV, τ : 10~1000 ns, μ : 2 cm²/Vs, σ : 2x10⁻¹⁴ cm², v_{th} : 10⁷ cm/s, recom. v. of absorber/HTM: 10⁴ cm/s

Fig. 3.4.2 Photovoltaic parameters from view point of interface and perovskite bulk qualities.

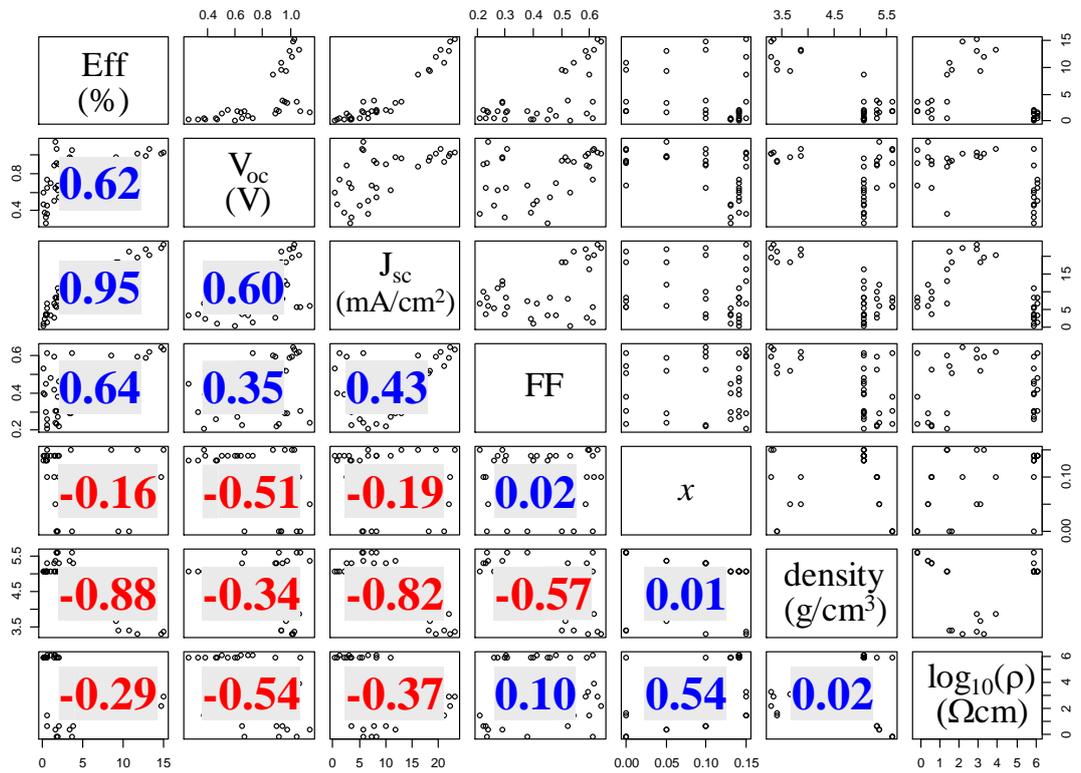


Fig. 3.4.3 Scatter plot matrix of perovskite solar cells with ZMO layer by sputtering and spin coating methods.

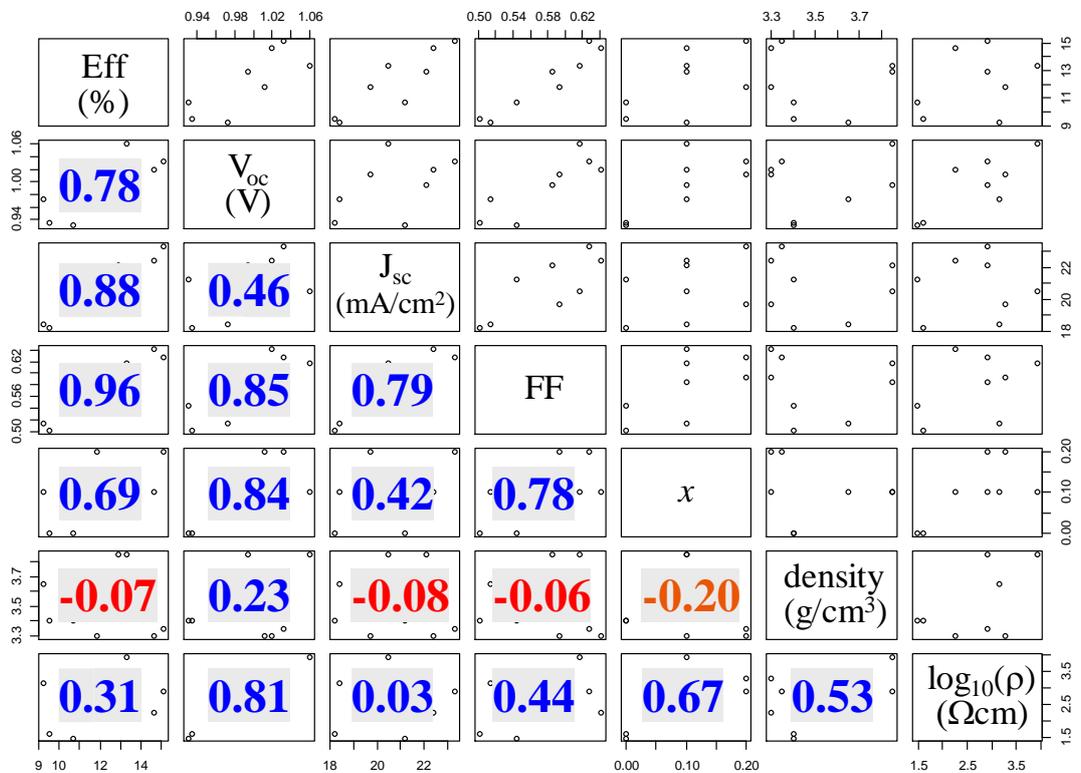


Fig. 3.4.4 Scatter plot matrix of perovskite solar cells with ZMO layer by spin coating

method.

§ 4 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内(和文)誌0件、国際(欧文)誌79件)

1. 著者、論文タイトル、掲載誌 巻、号、発行年

1. Chao Ding, Yaohong Zhang, Feng Liu, Yukiko Kitabatake, Shuzi Hayase*, Taro Toyoda, Ruixiang Wang, Kenji Yoshino*, Takashi Minemoto* and Qing Shen*. "Understanding charge transfer and recombination by interface engineering for improving the efficiency of PbS quantum dot solar cells". *Nanoscale Horiz.*, in presses (2018). DOI: 10.1039/C8NH00030A
2. Taro Toyoda*, Qing Shen*, Kanae Hori, Naoki Nakazawa, Keita Kamiyama, and Shuzi Hayase. "Crystal Growth, Exponential Optical Absorption Edge, and Ground State Energy Level of PbS Quantum Dots Adsorbed on the (001), (110), and (111) Surfaces of Rutile-TiO₂". *J. Phys. Chem. C*, impress (2018) DOI: 10.1021/acs.jpcc.7b12675
3. Feng Liu, Yaohong Zhang, Chao Ding, Taro Toyoda, Yuhei Ogomi, Teresa S. Ripolles, Shuzi Hayase, Takashi Minemoto, Kenji Yoshino, Songyuan Dai, Qing Shen*. "Ultrafast electron injection from photoexcited perovskite CsPbI₃ QDs into TiO₂ nanoparticles with injection efficiency near 99%". *J. Phys. Chem. Lett.*, 2018, 9, pp294-297.
4. Qing Shen*, Teresa S. Ripolles*, Jacky Even*, Yaohong Zhang, Chao Ding, Feng Liu, Takuya Izuishi, Naoki Nakazawa, Taro Toyoda, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase*. "Ultrafast selective extraction of hot holes from cesium lead iodide perovskite films". *J. Energy Chem.*, 2018, DOI:10.1016/j.jechem.2018.01.006
5. Woon Yong Sohn, James E. Thorne, Yaohong Zhang, Shota Kuwahara, Qing Shen, Dunwei Wang, Kenji Katayama. "Charge carrier kinetics in hematite with NiFeOx coating in aqueous solutions: dependence on bias voltage". *J. Photochem. Photobio. A Chem.*, 2018, 353, pp344-348.
6. Vincent Tiing Tiong, Ngoc Duy Pham, Teng Wang, Tianxiang Zhu, Xinluo Zhao, Yaohong Zhang, Qing Shen, John Bell, Linhua Hu, Songyuan Dai and Hongxia Wang. "Octadecylamine-functionalized single-walled carbon nanotubes for facilitating the formation of a monolithic perovskite layer and stable solar cells". *Adv. Funct. Mater.*, 2018, 1705545.
7. Feng Liu, Chao Ding, Yaohong Zhang, Teresa S. Ripolles, Taichi Kamisaka, Taro Toyoda, Shuzi Hayase*, Takashi Minemoto, Kenji Yoshino, Songyuan Dai, Masatoshi Yanagida, Hidenori Noguchi, and Qing Shen*. "Colloidal Synthesis of Air-Stable Alloyed CsSn_{1-x}Pb_xI₃ Perovskite Nanocrystals for Use in Solar Cells", *J. Am. Chem. Soc.*, 2017, 139 (46), pp 16708-16719.
8. Qing Shen*, Teresa S. Ripolles*, Jacky Even*, Yuhei Ogomi, Koji Nishinaka, Takuya Izuishi, Naoki Nakazawa, Yaohong Zhang, Chao Ding, Feng Liu, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto, Kenji Katayama, Shuzi Hayase. "Slow hot carrier cooling in cesium lead iodide perovskites", *Appl. Phys. Lett.*, 2017, 111, pp153903.
9. Feng Liu, Yaohong Zhang, Chao Ding, Syuusuke Kobayashi, Takuya Izuishi, Naoki Nakazawa, Taro Toyoda, Tsuyoshi Ohta, Shuzi Hayase, Takashi Minemoto, Kenji Yoshino, Songyuan Dai, and Qing Shen*. "Highly Luminescent Phase-Stable CsPbI₃ Perovskite Quantum Dots Achieving Near 100% Absolute Photoluminescence Quantum Yield". *ACS Nano*, 2017, 11 (10), pp 10373-10383.
10. Taro Toyoda*, Qing Shen*, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, and Shuzi Hayase. "Dependences of the Optical Absorption, Ground State Energy Level, and Interfacial Electron Transfer Dynamics on the Size of CdSe Quantum Dots Adsorbed on the (001), (110), and (111)

- Surfaces of Single Crystal Rutile TiO₂". *J. Phys. Chem. C*, 2017, 121 (45), pp 25390–25401. Guohua Wu, Yaohong Zhang, Ryuji Kaneko, Yoshiyuki Kojima, Kosuke Sugawa, Towhid H. Chowdhury, Ashraful Islam, Qing Shen, Md. Akhtaruzzaman, Takeshi Noda, and Joe Otsuki, A 2,1,3-Benzooxadiazole Moiety in a D-A-D-Type Hole-Transporting Material for Boosting the Photovoltage in Perovskite Solar Cells, *Sol. RRL*, in press (2017). DOI: 10.1002/solr.201700096.
11. Wenran Wang, Guocan Jiang, Juan Yu, Wei Wang, Zhenxiao Pan, Naoki Nakazawa, Qing Shen, and Xinhua Zhong, High Efficiency Quantum Dot Sensitized Solar Cells Based on Direct Adsorption of Quantum Dots on Photoanodes, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2017, 9, 22549–22559, DOI:10.1021/acsami.7b05598.
 12. Guohua Wu, Yaohong Zhang, Ryuji Kaneko, Yoshiyuki Kojima, Qing Shen, Ashraful Islam, Kosuke Sugawa, and Joe Otsuki, A 2,1,3-Benzooxadiazole Moiety in a D-A-D-type Hole-Transporting Material for Boosting the Photovoltage in Perovskite Solar Cells, *J. Phys. Chem. C*, 2017, 121, 17617–17624, DOI:10.1021/acs.jpcc.7b04614.
 13. Yaohong Zhang, Guohua Wu, Iván Mora-Seró, Chao Ding, Feng Liu, Qingxun Huang, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Taro Toyoda, Ruixiang Wang, Joe Otsuki, and Qing Shen, "Improvement of photovoltaic performance of colloidal quantum dot solar cells using organic small molecule as hole-selective layer", *The Journal of Physical Chemistry Letter*, 2017, 8, 2163–2169, DOI: 10.1021/acs.jpcllett.7b00683.
 14. Wenxiang Peng, Jun Du, Zhenxiao Pan, Naoki Nakazawa, Jiankun Sun, Zhonglin Du, Gencai Shen, Juan Yu, Jin-Song Hu, Qing Shen, and Xinhua Zhong, Alloying Strategy in Cu-In-Ga-Se Quantum Dots for High Efficiency Quantum Dot Sensitized Solar Cells, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2017, 9, 5328–5336, DOI: 10.1021/acsami.6b14649.
 15. Motoki Hironaka, Taro Toyoda, Kanae Hori, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Qing Shen: Photovoltaic Properties of CdSe Quantum Dot Sensitized Inverse Opal TiO₂ Solar Cells: The Effect of TiCl₄ Post Treatment, *Journal of Modern Physics*, 2017, 8, 522–530, <https://doi.org/10.4236/jmp.2017.84034>.
 16. Jin Chang, Yuhei Ogomi, Chao Ding, Yao Hong Zhang, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Kenji Katayama and Qing Shen: Ligand-dependent exciton dynamics and photovoltaic properties of PbS quantum dot heterojunction solar cells, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2017, 19, 6358–6367, DOI: 10.1039/C6CP06561A.
 17. Chao Ding, Yaohong Zhang, Feng Liu, Naoki Nakazawa, Qingxun Huang, Shuzi Hayase, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Ruixiang Wang, and Qing Shen*: Recombination Suppression in PbS Quantum Dot Heterojunction Solar Cells by Energy-Level Alignment in the Quantum Dot Active Layers, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, accepted (2017). DOI: 10.1021/acsami.7b06552.
 18. Masato Imai, Marin Watanabe, Akiko Mochihara, Himeka Tominaga, Kenji Yoshino, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Atmospheric growth of ZnO films deposited by spray pyrolysis using diethylzinc solution, *Journal of Crystal Growth*, 2017, 468, 473–476.
 19. Kenji Yoshino, Himeka Tominaga, Akiko Ide, Kensuke Nishioka, Toshio Naka, Annealing effects on Ga-doped ZnO thin films grown by atmospheric spray pyrolysis using diethylzinc solution, *Phys. Status Solidi C* (2017) (accepted).
 20. Ogomi Y., Hirotani D., Fujiwara K., Sakaguchi K., Shen Q., Toyoda T., Yoshino K., Wakamiya A., Ripolles T., Hayase S., Near IR sensitive Sn based perovskite solar cells with high current density reaching 30mA/cm², *Conference Record of the IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, 2016, 808–811, DOI:10.1109/PVSC.2016.7749717.
 21. Masahiro Moriya, Daisuke Hirotani, Tsuyoshi Ohta, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Teresa S. Ripolles, Kenji Yoshino, Taro Toyoda, Takashi Minemoto, Shuzi Hayase, Architecture of the Interface between the Perovskite and Hole-Transport Layers in Perovskite Solar Cells, *ChemSusChem*, 2016, 9, 2634–2639,

DOI:10.1002/cssc.201600848.

22. Murugan Vigneshwaran, Takeshi Ohta, Satoshi Iikubo, Gaurav Kapil, Teresa S. Ripolles, Yuhei Ogomi, Tingli Ma, Shyam S. Pandey, Qing Shen, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto, Shuzi Hayase, Facile Synthesis and Characterization of Sulfur Doped Low Bandgap Bismuth Based Perovskites by Soluble Precursor Route, *Chemistry of Materials* 2016, 28, 6436–6440, DOI:10.1021/acs.chemmater.6b02315.
23. Teresa S. Ripolles, Ajay K. Baranwal, Koji Nishinaka, Yuhei Ogomi, Germà Garcia-Belmonte, Shuzi Hayase Mechanisms of charge accumulation in the dark operation of perovskite solar cells, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2016, 18, 14970–14975, DOI:10.1039/c6cp01427e.
24. Teresa S Ripolles, Koji Nishinaka, Yuhei Ogomi, Youhei Miyata, Shuzi Hayase, Efficiency enhancement by changing perovskite crystal phase and adding a charge extraction interlayer in organic amine free-perovskite solar cells based on cesium, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 2016, 144, 532–536, DOI:10.1016/j.solmat.2015.09.041.
25. Akira Nagaoka, Michael A. Scarpulla, Kenji Yoshino, Na-doped Cu₂ZnSnS₄ single crystal grown by traveling-heater method, *Journal of Crystal Growth*, 2016, 453, 119–123.
26. Jeffery A. Aguiar, Mehmet E. Erkan, Dennis S. Pruzan, Akira Nagaoka, Kenji Yoshino, Helio Moutinho, Mowafak Al-Jassim and Michael A. Scarpulla, Cation ratio fluctuations in Cu₂ZnSnS₄ at the 20 nm length scale investigated by analytical electron microscopy, *Physica Status Solidi (a)* 2016, 213, 2392–2399.
27. Low-temperature growth of porous and dense ZnO films for perovskite solar cells on ITO substrate, Kenji Yoshino, Akiko Ide, Akiko Mochihara, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, *Chemistry Letters*, 2016, 45, 176–178.
28. Yaohong Zhang, Chao Ding, Guohua Wu, Naoki Nakazawa, Jin Chang, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Kenji Katayama, and Qing Shen, Air Stable PbSe Colloidal Quantum Dot Heterojunction Solar Cells: Ligand-Dependent Exciton Dissociation, Recombination, Photovoltaic Property, and Stability, *J. Phys. Chem. C*, 2016, 120, 28509–28518. DOI: 10.1021/acs.jpcc.6b10920.
29. Tomah Sogabe, Qing Shen, Koichi Yamaguchi: Recent progress on quantum dot solar cells: a review, *J. Photon. Energy*. 2016, 6(4), 040901, doi:10.1117/1.JPE.6.040901.
30. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase, and Qing Shen*: Adsorption and Electronic Structure of CdSe Quantum Dots on Single Crystal ZnO: A Basic Study of Quantum Dot-Sensitization System, *The Journal of Physical Chemistry C*, 2016 120 (30), 16367–16376, DOI: 10.1021/acs.jpcc.6b04130.
31. Yaohong Zhang, Zhiguo Yi, Guohua Wu, Qing Shen, Novel Y doped BiVO₄ thin film electrodes for enhanced photoelectric and photocatalytic performance, *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2016, 327, 25–32.
32. Koki Sato, Keita Ono, Takuya Izuishi, Shota Kuwahara, Kenji Katayama, Taro Toyoda, Shuzi Hayase and Qing Shen, The effect of CdS on the charge separation and recombination dynamics in PbS/CdS double-layered quantum dot sensitized solar cells, *chemical physics*, in press (2016). <http://dx.doi.org/10.1016/j.chemphys.2016.03.014>.
33. Shuang Jiao, Jin Wang, Qing Shen, Yan Li and Xinhua Zhong : Surface engineering of PbS quantum dot sensitized solar cells with a conversion efficiency exceeding 7%, *J. Mater. Chem. A*, 2016, in press, DOI: 10.1039/C6TA02465C.
34. Jin Wang, Yan Li, Qing Shen, Takuya Izuishi, Zhenxiao Pan, Ke Zhao and Xinhua Zhong: Mn doped quantum dots sensitized solar cells with power conversion efficiency exceeding 9%, *J. Mater. Chem. A*, 2016, 4, 877–886, DOI: 10.1039/C5TA09306F.
35. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Hisayoshi Kobayashi, Shuzi Hayase, and Qing Shen: The Electronic Structure and Photoinduced Electron Transfer

- Rate of CdSe Quantum Dots on Single Crystal Rutile TiO₂: Dependence on the Crystal Orientation of the Substrate, *J. Phys. Chem. C*, 2016, 120, 2047–2057, DOI: 10.1021/acs.jpcc.5b09528.
36. Jun Du, Zhonglin Du, Jin–Song Hu, Zhenxiao Pan, Qing Shen, Jiankun Sun, Donghui Long, Hui Dong, Litao Sun, Xinhua Zhong, and Li–Jun Wan: Zn–Cu–In–Se Quantum Dot Solar Cells with a Certified Power Conversion Efficiency of 11.6%, *J. Am. Chem. Soc.*, 2016, 138, 4201–4209, DOI: 10.1021/jacs.6b00615.
 37. Soya Nakayashiki, Hirofumi Daisuke, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, “Interface structure between titania and perovskite materials observed by quartz crystal microbalance system” *Journal of Photonics for Energy*, 2015, 5(1), 057410–1–7.
 38. Junwei Yang, Jin Wang, Ke Zhao, Takuya Izuishi, Yan Li, Qing Shen, and Xinhua Zhong, CdSeTe/CdS Type–I Core/Shell Quantum Dot Sensitized Solar Cells with Efficiency over 9%, *J. Phys. Chem. C*, 2015, 119, 28800–28808, DOI: 10.1021/acs.jpcc.5b10546.
 39. Qing Shen, Kenji Katayama, Taro Toyoda: Characterization of hot carrier cooling and multiple exciton generation dynamics in PbS QDs using an improved transient grating technique, *J. Energy Chem.*, 2015, 24, 712–714, doi:10.1016/j.jechem.2015.11.002.
 40. Masaya Akimoto, Taro Toyoda, Tsuyoshi Okuno, Shuzi Hayase, Qing Shen: Effect of defects in TiO₂ nanotube thin film on the photovoltaic properties of quantum dot–sensitized solar cells, *Thin Solid Films*, 2015, 590, 90–97, DOI:10.1016/j.tsf.2015.07.038
 41. Jin Chang, Takuya Oshima, Sojiro Hachiya, Kouki Sato, Taro Toyoda, Kenji Katayama, Shuzi Hayase, Qing Shen: Uncovering the charge transfer and recombination mechanism in ZnS–coated PbS quantum dot sensitized solar cells, *Solar Energy*, 2015, 122, 307–313, DOI:10.1016/j.solener.2015.08.035.
 42. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Tsuyoshi Okuno, Masaya Akimoto, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase and Qing Shen, Electronic structures of two types of TiO₂ electrodes: inverse opal and nanoparticulate cases, *RSC Adv.*, 2015, 5, 49623–49632, DOI: 10.1039/C5RA07092A.
 43. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Jin Chang, Taro Toyoda, Kosei Fujiwara, Kenji Yoshino, Koki Sato, Kouhei Yamazaki, Masaya Akimoto, Yuki Kuga, Kenji Katayama, and Shuzi Hayase, Optical Absorption, Charge Separation and Recombination Dynamics in Sn/Pb Cocktail Perovskite Solar Cells and Their Relationships to Photovoltaic Performances, *J. Mater. Chem. A*, 2015, 3, 9308–9316, DOI: 10.1039/C5TA01246E.
 44. Jin Chang, Yuki Kuga, Iván Mora–Seró, Taro Toyoda, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Juan Bisquert, and Qing Shen*: High Reduction of Interfacial Charge Recombination in Colloidal Quantum Dot Solar Cells by Metal Oxide Surface Passivation, *Nanoscale*, 2015, 7, 5446–5456, DOI: 10.1039/C4NR07521H.
 45. Shuang Jiao, Qing Shen, Iván Mora–Seró, Jin Wang, Zhenxiao Pan, Ke Zhao, Yuki Kuga, Xinhua Zhong, and Juan Bisquert, Band Engineering in Core/Shell ZnTe/CdSe for Photovoltage and Efficiency Enhancement in Exciplex Quantum Dot Sensitized Solar Cells, *ACS Nano*, 2015, 9, 908–915, DOI: 10.1021/nn506638n.
 46. Free–carrier dynamics and band tails in Cu₂ZnSn(S_xSe_{1–x})₄ : Evaluation of factors determining solar cell efficiency, Le Quang Phuong, Makoto Okano, Genki Yamashita, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, Akira Nagaoka, Kenji Yoshino, and Yoshihiko Kanemitsu, *Physical Review B*, 2015, 92, 115204–1–7.
 47. Growth and characterization of Cu₂ZnSn(S_xSe_{1–x})₄ Single crystal grown by traveling heater method, Akira Nagaoka, Ryoji Katsube, Shigeru Nakatsuka, Kenji Yoshino, Tomoyasu Taniyama, Hideto Miyake, Koichi Kakimoto, Michael A. Scarpulla, Yoshitaro Nose, *Journal of Crystal Growth*, 2015, 423, 9–15.
 48. Photocarrier dynamics in undoped and n–doped Cu₂ZnSnS₄ single crystals revealed by ultrafast time–resolved terahertz spectroscopy, Le Quang Phuong, Makoto Okano, Genki

- Yamashita, Masaya Nagai, Masaaki Ashida, Akira Nagaoka, Kenji Yoshino, Yoshihiko Kanemitsu, *Applied Physics Express*, 2015, 8, 062303-1-4.
49. Solution growth of chalcopyrite compounds single crystal, Akira Nagaoka, Yoshitaro Nose, Hideto Miyake, Michael A. Scarpulla, Kenji Yoshino, *Renewable Energy*, 2015, 79, 127-130.
 50. Junwei Yang, Takuya Oshima, Witoon Yindeesuk, Zhenxiao Pan, Xinhua Zhong*and Qing Shen: Influence of Linker Molecules on Interfacial Electron Transfer and Photovoltaic Performance of Quantum Dot Sensitized Solar Cells, *J. Mater. Chem. A*, 2014, 2, 20882-20888, DOI: 10.1039/C4TA04353G.
 51. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Jin Chang, Syota Tsukamoto, Kenji Kukihara, Takuya Oshima, Naoya Osada, Kenji Yoshino, Kenji Katayama, Taro Toyoda and Shuzi Hayase, Charge transfer and recombination at the metal oxide/CH₃NH₃PbCl₂/*spiro*-OMeTAD interfaces: uncovering the detailed mechanism behind high efficiency solar cells, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2014, 16, 19984-19992, DOI: 10.1039/C4CP03073G.
 52. Zhenxiao Pan, Iván Mora-Seró, Qing Shen, Hua Zhang, Yan Li, Ke Zhao, Jin Wang, Xinhua Zhong, and Juan Bisquert, High-Efficiency “Green” Quantum Dot Solar Cells, *J. Am. Chem. Soc.*, 2014, 136, 9203-9210, DOI: 10.1021/ja504310w.
 53. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Effect of TiO₂ Crystal Orientation on the Adsorption of CdSe Quantum Dots for Photosensitization Studied by the Photoacoustic and Photoelectron Yield Methods, *J. Phys. Chem. C*, 2014, 118, 16680-16687, DOI: 10.1021/jp412657x.
 54. Masaya Akimoto, Qing Shen, Shuzi Hayase and Taro Toyoda: Photoacoustic spectroscopy of TiO₂ nanotube electrode adsorbed with CdSe quantum dots and its photovoltaic properties, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2014, 53, 07KB08.
 55. Soichiro Taya, Shota Kuwahara, Qing Shen, Taro Toyoda and Kenji Katayama: Role of lithium and co-existing cations in electrolyte to improve performance of dye-sensitized solar cells, *RSC Adv.*, 2014, 4, 21517-21520, DOI: 10.1039/C4RA02309A.
 56. N. Osada, T. Oshima, S. Kuwahara, T. Toyoda, Q. Shen* and K. Katayama*: Photoexcited carrier dynamics of double-layered CdS/CdSe quantum dot sensitized solar cells measured by heterodyne transient grating and transient absorption methods, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2014, 16, 5774, DOI: 10.1039/c3cp55177f.
 57. Shota Kuwahara, Soichiro Taya, Naoya Osada, Qing Shen, Taro Toyoda and Kenji Katayama, Effect of electrolyte constituents on the motion of ionic species and recombination kinetics in dye-sensitized solar cells, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2014, 16, 5242-5249, DOI: 10.1039/C3CP53964D.
 58. Feng Liu, Jun Zhu, Junfeng Wei, Yi Li, Linhua Hu, Yang Huang, Oshima Takuya, Qing Shen, Taro Toyoda, Bing Zhang, Jianxi Yao, and Songyuan Dai: Ex Situ CdSe Quantum Dot-Sensitized Solar Cells Employing Inorganic Ligand Exchange To Boost Efficiency, *J. Phys. Chem. C*, 2014, 118, 214-222, DOI: 10.1021/jp410599q.
 59. Yuhei Ogomi, Atsushi Morita, Syota Tsukamoto, Takahiro Saitho, Qing Shen, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Shyam S Pandey, Tingli Ma, Shuzi Hayase “All-Solid Perovskite Solar Cells with HOCO-R-NH₃⁺I⁻ Anchor-Group Inserted between Porous Titania and Perovskite” *The Journal of Physical Chemistry C*, 2014, 118(30), 16651-16659
 60. Yuhei Ogomi, Atsushi Morita, Syota Tsukamoto, Takahiro Saitho, Naotaka Fujikawa, Qing Shen, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Shyam S. Pandey, Tingli Ma, Shuzi Hayase: “CH₃NH₃S_nxPb(1-x)I₃ Perovskite Solar Cells Covering up to 1060 nm” *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2014, 5(6), 1004-1011
 61. Yuhei Ogomi, Kenji Kukihara, Qing Shen, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Shyam Pandey, Hisayo Momose, Shuzi Hayase “Control of Charge Dynamics through a Charge-Separation Interface for All-Solid Perovskite-Sensitized Solar Cells” *ChemPhysChem*,

- 2014,15(6),1062–1069
62. Hikaru Oga, Akinori Saeki, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Shu Seki “Improved Understanding of the Electronic and Energetic Landscapes of Perovskite Solar Cells: High Local Charge Carrier Mobility, Reduced Recombination, and Extremely Shallow Traps”: *Journal of the American Chemical Society*, 2014,136(39),13818–13825
 63. Tetsuro Katayama, Akira Jinno, Eisuke Takeuchi, Syoji Ito, Masaru Endo, Atsushi Wakamiya, Yasujiro Murata, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Hiroshi Miyasaka “Inhomogeneous Deactivation Process with UV Excitation in Submicron Grains of Lead Iodide Perovskite-based Solar Cell as Revealed by Femtosecond Transient Absorption Microscopy” *Chemistry Letters*, , 2014, 43(10).1656–1658.
 64. Atsushi Wakamiya, Masaru Endo, Takahiro Sasamori, Norihiro Tokitoh, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Yasujiro Murata “Reproducible Fabrication of Efficient Perovskite-based Solar Cells: X-ray Crystallographic Studies on the Formation of CH₃NH₃PbI₃ Layers” *Chemistry Letters*, 2014, 43(5), 711–713.
 65. A. Nagaoka, H. Miyake, T. Taniyama, K. Kakimoto, Y. Nose, M. A. Scarpulla, K. Yoshino, Effects of sodium on electrical properties in Cu₂ZnSnS₄ single crystal, *Appl. Phys. Lett.*, 2014, 104, 152101–1–4.
 66. L. Q. Phuong, M. Okano, Y. Yamada, A. Nagaoka, K. Yoshino, and Y. Kanemitsu, Temperature-dependent photocarrier recombination dynamics in Cu₂ZnSnS₄ single crystals, *Appl. Phys. Lett.* 2014, 104, 081907–1–4.
 67. A. Nagaoka, K. Yoshino, H. Taniguchi, T. Taniyama, K. Kakimoto, and H. Miyake, Growth and characterization of Cu₂ZnSn(S_xSe_{1-x})₄ alloys grown by the melting method, *J. Crystal Growth*, 2014, 386, 204–207.
 68. Sandeep K. Das, Daiki Yamashita, Yuhei Ogomi, Shyam S. Pandey, Kenji Yoshino, Shuzi Hayas “Single-step fabrication of all-solid dye-sensitized solar cells using solution-processable precursor” *Phys. Status Solidi A*, 2013, 210(9), 1846–1850.
 69. Sandeep K. Dasa, Katsunori Abe, Kenji Yoshino, Yuhei Ogomi, Shyam S. Pandey, Shuzi Hayase, “Controlling the processable ZnO and polythiophene interface for dye-sensitized thin film organic solar cells” *Thin Solid Films*, 2013, 536, 302–307.
 70. W. Yindeesuk, Q. Shen, S. Hayase, and T. Toyoda: Optical absorption of CdSe quantum dots on electrodes with different morphology, *AIP Advances*, 2013, 3,102115.
 71. T. Toyoda, Y. Onishi, K. Katayama, T. Sawada, S. Hayase, and Q. Shen: Photovoltaics and photoexcited carrier dynamics of double-layered CdS/CdSe quantum dot-sensitized solar cells, *J. Mater. Sci. Eng. A&B* 2013, 3, 601–608.
 72. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Sandeep K. Das, Shyam S. Pandey, Kenji Yoshino, Kenji Katayama, Hisayo Momose, Taro Toyoda and Shuzi Hayase, Huge suppression of charge recombination in P3HT-ZnO organic-inorganic hybrid solar cells by locating dyes at the ZnO/P3HT interfaces, *Phys.Chem. Chem. Phys.*, 2013, 15, 14370–14376.
 73. Naotaka Maeda, Hiroaki Hata, Naoya Osada, Qing Shen, Taro Toyoda, Shota Kuwahara and Kenji Katayama: Carrier dynamics in quantum-dot sensitized solar cells measured by transient grating and transient absorption methods, *Phys.Chem. Chem. Phys.*, 2013, 15, 11006–11013.
 74. L. Q. Phuong, M. Okano, Y. Yamada, A. Nagaoka, K. Yoshino, and Y. Kanemitsu, Photocarrier localization and recombination dynamics in Cu₂ZnSnS₄ single crystals, *Appl. Phys. Lett.* 2013, 103, 191902–1–40.
 75. Akira Nagaoka, Hideto Miyake, Tomoyasu Taniyama, Koichi Kakimoto, and Kenji Yoshino Correlation between intrinsic defects and electrical properties in the highquality Cu₂ZnSnS₄ single crystal, *Appl. Phys. Lett.* 2013, 103, 112107–1–4.
 76. Akira Nagaoka, Kenji Yoshino, Hiroki Taniguchi, Tomoyasu Taniyama, Koichi Kakimoto and Hideto Miyake Growth and characterization of Cu₂ZnSnS₄ single crystals, *Physica Status Solidi*

- (A) 2013, 210, 1328-1331.
77. L. Q. Phuong, M. Okano, Y. Yamada, A. Nagaoka, K. Yoshino, and Y. Kanemitsu, Photocarrier localization and recombination dynamics in Cu₂ZnSnS₄ single crystals, Appl. Phys. Lett., 2013, 103, 191902-1-40.
 78. Akira Nagaoka, Hideto Miyake, Tomoyasu Taniyama, Koichi Kakimoto, and Kenji Yoshino, Correlation between intrinsic defects and electrical properties in the highquality Cu₂ZnSnS₄ single crystal, Appl. Phys. Lett., 2013, 103, 112107-1-4.
 79. Akira Nagaoka, Kenji Yoshino, Hiroki Taniguchi, Tomoyasu Taniyama, Koichi Kakimoto and Hideto Miyake, Growth and characterization of Cu₂ZnSnS₄ single crystals, Physica Status Solidi (A), 2013, 210, 1328-1331.

(2)その他の著作物(総説、書籍など)

1. HAYASE Shuzi, Research following Pb Perovskite Solar Cells, Electrochemistry, 2017, 85, 222-225, DOI:10.5796/electrochemistry.85.222.
2. ペロブスカイト太陽電池研究の最新状況, 早瀬修二, オプトニューズ 2017, 12.
3. Q.Shen, Y. Ogomi, T. Toyoda, K. Yoshino, S. Hayase, "Optical Absorption, Charge Separation and Recombination Dynamics in Pb and Sn/Pb Cocktail Perovskite Solar Cells and Their Relationships to the Photovoltaic Properties" Perovskite Materials - Synthesis, Characterisation, Properties, and Applications, Chapter 13, pp. 403-421, Likun Pan (Ed.), (InTech, Feb. 2016), ISBN 978-953-51-4587-5.
4. 尾込 祐平, 早瀬 修二, 非 Pb 系ペロブスカイト型太陽電池の研究開発動向, Electrochemistry, 2016, 84, 449-453, DOI:10.5796/electrochemistry.84.449.

(3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

- ① 招待講演 (国内会議26件、国際会議35件)
1. 発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

国内会議招待講演:

1. 沈 青、豊田太郎:「量子ドット太陽電池の電荷分離界面の構築と高効率化への道筋」、日本化学会第97春季年会、東京、2017年3月18日 3D1-33
2. Sn系ペロブスカイト太陽電池の界面構築と高効率化およびPbフリー化研究の現状, 早瀬修二, スマートエネルギーWeek 3/1-3/3 2017 東京ビックサイト
3. シリコン系太陽電池に肉薄する高効率を有するプリンタブル太陽電池～最近の技術動向と展望～早瀬修二, 公益社団法人日本技術士会 CPD行事 2017/2/25/福岡
4. ペロブスカイト太陽電池の基礎およびその研究最前線—高効率化、耐久性、Pbフリー—早瀬修二, 応用物理学会 チュートリアル資料 2017/3/15 横浜
5. Enhancement of efficiency for Sn/Pb mixed metal perovskite solar cells from the view point of interface and crystal architecture, What retards the enhancement of the efficiency? 175委員会 有機太陽電池部会講演会 2017/2/5/東京大学
6. ハロゲン化ペロブスカイト太陽電池の最新研究動向と展望—ヘテロ界面構造と太陽電池特性—早瀬修二, 表面科学会九州支部の総会特別講演 2017/4/8/福岡
7. ペロブスカイト太陽電池の基礎およびその研究最前線—高効率化、耐久性、Pbフリー—, 早瀬修二, 応用物理学会 チュートリアル資料 2017/9/5 福岡
8. ペロブスカイト太陽電池の界面構造と太陽電池特性, 早瀬修二, 学振175委員会 有機太陽電池部会/8/30/2017 Kyoto ペロブスカイト太陽電池のヘテロ界面制御と赤外変換

- 早瀬修二 有機エレクトロニクスシンポジウム 2016/12/5/ 京都
9. ハロゲン化ペロブスカイト太陽電池の現状、課題、および将来展望 早瀬修二 応用物理学学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会3月研究会(産総研 副都心センター)3/18 2016
 10. 沈 青、豊田太郎: 量子ドット太陽電池のナノ界面制御と高効率化, 日本化学会第 96 春季年会、京都、2016 年 3 月 25 日 2J4- 28
 11. 沈 青:「高速レーザー分光法による太陽電池での光励起キャリアダイナミクスの解明ー量子ドット太陽電池とペロブスカイト太陽電池についてー」、第 77 回応用物理学学会秋季学術講演会、分科会シンポジウム: フォトニュースの未来を担う研究者、招 14p-A41-8、2016 年 9 月 14 日 朱鷺メッセ(新潟市)
 12. 沈 青、豊田太郎:「量子ドット太陽電池のナノ界面制御と高効率化」、第 77 回応用物理学学会秋季学術講演会、有機分子・バイオエレクトロニクス 分科内招待講演 招 13p-B4-1、2016 年 9 月 13 日 朱鷺メッセ(新潟市)
 13. 早瀬修二(九工大)、赤外光電変換ペロブスカイト太陽電池の効率向上について、第76回応用物理学学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場、2015 年 9 月 14 日
 14. 早瀬修二(九工大)、二元 SnPb 太陽電池の性能向上に向けて、有機太陽電池シンポジウム 京都 2015/7/17
 15. 早瀬修二(九工大)、太陽電池の現状と将来、新学術領域、修善寺、2015/6/12
 16. 尾込裕平(九工大)、ペロブスカイト太陽電池の高効率化と電荷注入界面の構造、九州表面・真空研究会 2015、2015 年 06 月
 17. 早瀬修二(九工大)、ペロブスカイト太陽電池の基礎、次世代の太陽電池発電シンポジウム、福島、2015/5/29
 18. 沈青:ペロブスカイト型の電荷ダイナミクス、CiRfSE シンポジウム、筑波大学、2015 年 3 月 12 日
 19. 沈青:ペロブスカイト系太陽電池の最前線 I、第五回次世代太陽電池研究会、宮崎、2015 年 6 月 5 日
 20. 沈青:量子ドット太陽電池の多重励起子生成の解析、応用物理学会有機分子・バイオエレクトロニクス分科講習会 「次世代太陽エネルギー変換デバイスの研究開発を支える先端計測」、東京、2015 年 11 月 6 日
 21. 沈青:ペロブスカイト太陽電池の光励起キャリアダイナミクス、学振175委員会 有機系太陽電池分科会 第3回研究会、北九州、2015 年 11 月 27 日
 22. 沈青:量子ドット太陽電池の光励起キャリアダイナミクスと界面制御による光電変換特性向上、第 11 回量子ナノ材料セミナー、東京、2015 年 12 月 8 日
 23. 豊田太郎:量子ドット太陽電池の開発 - 基礎データの蓄積 -, 第 51 回環境浄化光触媒研究会、(社)産業環境管理協会会議室、2013 年 7 月 2 日
 24. 豊田太郎:半導体量子ドット増感太陽電池、電子ジャーナル第 1897 回テクニカルセミナー、連合会館、2013 年 12 月 6 日
 25. 豊田太郎:メゾスコピック半導体を利用する増感太陽電池 - 基礎データの集積 -, 関西大学化学フォーラム、2013 年 12 月 7 日

国際会議の招待講演 :

1. Enhancement of efficiency for perovskite solar cells consisting of Sn from view point of interfacial and crystal architecture, Shuzi Hayase, IUMRS/8/28/2017 Kyoto.
2. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto and Shuzi Hayase: Photoexcited Carrier Dynamics, Interface Passivation and Mechanism for Improving Photovoltaic Performance in perovskite solar cells, Asia Pacific Hybrid and Organic Photovoltaics Conference (AP-HOPV17) (Yokohama, Japan, Feb. 3-4, 2017)
3. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto and Shuzi Hayase:

- Effects of Interface Engineering on Photoexcited Carrier Dynamics and Photovoltaic Performance in Perovskite Solar Cell, 2017 China PV Technology International Conference, (Xian, China, March 30–April 1, 2017).
4. Taro Toyoda, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Hisayoshi Kobayashi, Shuzi Hayase, and Qing Shen: Photoinduced electron transfer dynamics of CdSe quantum dots on single crystal rutile-TiO₂: Dependence on the crystal orientation of the substrate, 4th World Congress and Expo on Nanotechnology and Materials Science, (Barcelona, Spain, April 5–7, 2017).
 5. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto and Shuzi Hayase: Effects of Interface passivation on Photoexcited Carrier Dynamics and Photovoltaic Performance in Perovskite Solar Cell, the 4th Conference on New Generation Solar Cells, (Beijing, China, May 27–28, 2017).
 6. Enhancement of efficiency for mixed metal Sn/Pb perovskite solar cells –What lowers efficiency–, Shuzi Hayase, HOPV 2017/5/22/ EPFL
 7. Enhancement of Sn/Pb mixed metal halide perovskite solar cells from view point of hetero-interfacial trap distribution, Shuzi Hayase, SSI-21 2017/6/22/ Padova
 8. Perovskite solar cells–what affects the efficiency from view point of interface, Shuzi Hayase
 9. UPM-KYUTECH Joint seminar 2017/3/9/ UPM
 10. Enhancement of efficiency for perovskite solar cells consisting of Sn from view point of interface and crystal architecture, What retards the enhancement of the efficiency? Shuzi Hayase, Taiwan–Japan Symposium of Chemistry 2017/2/24/ Fukuoka–Sn based perovskite solar cells–
 11. Interface architecture and Sn/Pb binary perovskite, Shuzi Hayase, ABXPB, Spain 3/3/2016.
 12. Perovskite solar cells, Enhancement of efficiencies from the view point of New Perovskite Material and Interface Architecture, Shuzi Hayase, Next generation solar cell conference Tokyo Institute of Technology 1/28–29 2016.
 13. Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase: Quantum Dot and Perovskite Solar Cells: Interface Engineering, Photoexcited Carrier Dynamics and Mechanism for Improving Photovoltaic Performance, Japanese Swiss Energy Materials Workshop (Zurich, Swiss, March 7–9, 2016).
 14. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Kenji Katayama, Keita Kamiyama, Hisayoshi Kobayashi, Shuzi Hayase, Qing Shen: Anisotropic Adsorption and Photoinduced Electron Transfer of CdSe Quantum Dots on Single Crystal Rutile TiO₂, The 1st International Conference on New Photocatalytic Materials for Environment, Energy and Sustainability (Göttingen, Germany, June 7–10, 2016).
 15. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto and Shuzi Hayase: Photoexcited Carrier Dynamics in Perovskite Solar Cells: Uncovering the Mechanism for Achieving High Efficiency, 10th Aseanian Conference on Nano–Hybrid Solar Cells (Beijing, China, Sep. 20–24, 2016).
 16. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Tsuyoshi Okuno, Masaya Akimoto, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase, Qing, Shen: Electronic Structures of Inverse Opal and Nanoparticulate TiO₂ Electrodes The 21st International Conference on Semiconductor Photocatalysis & Solar Energy Conversion (Atlanta, U. S. A., Nov. 13–16, 2016).
 17. Qing Shen, Taro Toyoda, and Shuzi Hayase: Perovskite and Quantum Dot Solar Cells: Photoexcited Carrier Dynamics, Interface Engineering and Mechanism for Improving Photovoltaic Performance, 12th China SoG Silicon and PV Power Conference (Jiaxing, China, Nov. 24–26, 2016)
 18. Sn Photoconversion devices with infrared sensitivity, Shuzi Hayase, Pacificchem, Hawaii 12/17 2015
 19. Shuzi Hayase, Printable solar cells Perovskite solar cells with IR photoelectric conversion properties Seminar in OIST, 4/23/2015

20. Shuzi Hayase, Infrared–light responsible perovskite solar cells, MRS spring meeting , San Francisco, 4/9/2015
21. Shuzi Hayase, Sn/Pb binary perovskite solar cells with IR sensitivity and architecture of charge injection interfaces, IUPAC –2015 Busan 10 July /2015
22. Shuzi Hayase Crystalline defect and interface structure for Sn/Pb binary perovskite solar cells, KJF2015 Jeju, Korea, 7–9 Sep.
23. Shuzi Hayase Crystalline defect and interface structure for Sn/Pb binary perovskite solar cells, PSCO–2015, Lausanne, Switzerland, 29.September, 2015
24. Q. Shen, Y. Ogomi, K. Yoshino, T. Toyoda and S. Hayase: Uncovering the Detailed Mechanism behind High Efficiency Perovskite Hybrid Solar Cells by Studying Charge Separation and Recombination Dynamics, The 2nd Conference on New Generation Solar Cells (Peking, China, May 23–25, 2015).
25. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino and Shuzi Hayase: Optical absorption, charge separation and recombination in perovskite solar cells and their relationships to photovoltaic performances, Organic/dye–sensitized/perovskite solar cell workshop (Xian, China, Dec. 5–6, 2015). Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase, and Qing Shen: Effect of TiO₂ crystal orientation on the adsorption and photoinduced electron transfer: CdSe quantum dot–sensitization system, 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Honolulu, Hawaii, U. S. A), Dec. 15, 2015
26. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase and Qing Dhen, Effect of TiO₂ Crystal Orientation on the Adsorption and Photoinduced Electron Transfer: CdSe Quantum Dot–Sensitized System, The 19th International Conference On Semiconductor Photocatalysis and Solar Energy Conversion, San Diego, USA, Nov. 17–20, 2014.
27. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Syota Tsukamoto, Kenji Kukihara, Takuya Oshima, Naoya Osada, Kenji Yoshino, Kenji Katayama, Taro Toyoda and Shuzi Hayase, , Uncovering the Mechanism of High Efficiency of Perovskite Solid–State Hybrid Solar Cells by Studying Charge Separation and Recombination , The 15th IUMRS–International Conference in Asia (IUMRS–ICA 2014), Fukuoka, Japan, Aug. 25–28, 2014.
28. Qing Shen and Taro Toyoda: Carrier Dynamics of Semiconductor Quantum Dots and their Applications to Solar Cells, 2013 Energy Materials Nanotechnology East Meeting, Beijing, China, Sep. 7–10, 2013.
29. Qing Shen and Taro Toyoda: Ultrafast Carrier Dynamics and Photovoltaic Property of Quantum Dot Sensitized Solar Cells, the International Conference on Photonics Solutions, Pattaya, Thailand, May 26–28, 2013.
30. Taro Toyoda, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Optical and Photovoltaic Studies of Quantum–Dot–Sensitized Solar Cells, The 18th International Conference on Semiconductor Photocatalysis and Solar Energy Conversion, San Diego, USA, Nov. 17–21, 2013.
31. Taro Toyoda and Qing Shen, Quantum–Dot–Sensitized Solar Cells: Effect of Nanostructured TiO₂ Morphologies on Photovoltaic Properties, The 2nd International Conference on Photocatalysis and Solar Energy Conversion: Development of Materials and Nanomaterials, Kyoto, July 8–12, 2013.
32. Taro Toyoda and Qing Shen, Photovoltaic Characteristics and Photoexcited Carrier Dynamics of Multilayered Quantum Dot–Sensitized Solar Cells, The 10th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, San Diego, USA, June 2–7, 2013.
33. Taro Toyoda and Qing Shen, Effect of Nanostructured TiO₂ Morphologies on Photovoltaic Properties of Quantum Dot–Sensitized Solar Cells, Global Photovoltaic Conference 2013 (GPVC2013) and The 8th Aseanian Conference on Dye–Sensitized & Organic Solar Cells (DSC–OPV8), Busan, Korea, Nov. 23–26, 2013.
34. Taro Toyoda, Shuzi Hayas, and Qing Shen, Photovoltaic Characteristics and Photoexcited

Carrier Dynamics of Multi-Layered Quantum-Dot Sensitized Solar Cells, 2013 International Conference on Small Science, Las Vegas, USA, Dec. 15-18, 2013.

35. Taro Toyoda and Qing Shen, Semiconductor Quantum Dot Sensitized Solar Cells: Effect of Nanostructured TiO₂ Morphologies on Photovoltaic Properties, 2013 International Symposium on Chemical and Polyscale Technologies for Biomedical Application and Environmental Sustainability, Oshamanbe, Sept. 7-10, 2013.

② 口頭発表 (国内会議62件、国際会議33件)

1. 発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

国内学会の口頭発表:

1. Wang Zhen , Gaurav Kapil, Chao Ding, Qing Shen, Kenji Yoshino, Shuzi Hayas, N-Butylamine surface treatment to decompose ligands and 2D self-assembled controlled connected-nanocrystals arrays, 応用物理学会、東京、2018年3月19日
2. Teresa Ripolles, Chi Huey Ng, Kengo Hamada, Siow Hwa Teo, Hong Ngee Lim, Juan Bisquert, Shuzi Hayase, Origin of Open Circuit Voltage in wide band gap absorbers of all inorganic Cesium Perovskite Solar Cells, 応用物理学会、東京、2018年3月19日
3. 富永 姫香、吉野 賢二、沈 青、豊田 太郎、峯 元 高志、尾込 祐平、早瀬 修二、スピコート法で作製した ZnMgO 膜の電気特性, 応用物理学会、東京、2018年3月19日
4. 廣谷 太佑、西村 昭美、藤川 直耕、沈 青、豊田 太郎、吉野 賢二、早瀬 修二 Pb(II)-Xanthate前駆体を用いた Perovskite 結晶の熱分解 特性 応用物理学会、東京、2018年3月19日
5. 濱田 健吾、田中 僚、沈 青、豊田 太郎、尾込 裕 平、早瀬 修二、フラーレン誘導体表面修飾による Sn 系ペロブスカイト太陽電池の改善, 応用物理学会、東京、2018年3月19日
6. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二、スピコート法による ZnMgO バッファ層の作製と太陽電池への応用、応用物理学会、横浜、2017年3月15日
7. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二、スピコート法による ZnMgO の Mg 濃度変化、応用物理学会、福岡、2017年9月7日
8. Chao Ding, Yaohong Zhang, Shuzi Hayase, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, K. Yoshino, T. Minemoto and Qing Shen, Bandgap Engineering of Sol-Gel Synthesized Zn_{1-x}Mg_xO films as Electron-Transporting Layers for PbS Colloidal Quantum Dot Solar Cells、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 14 日
9. 知史, 大関 修平, 北島 有紀子, 豊田 太郎, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 沈 青、ZnO 修飾した TiO₂ ナノロッド電極を用いた CdSe 量子ドット増感太陽電池の光電変換特性、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 15 日
10. 豊田 太郎, 廣瀬 靖, 小林 久芳, 早瀬 修二, 沈 青、アナターゼ型 TiO₂ 単結晶 (001), (102)面に吸着した CdSe 量子ドットの光吸収評価、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 16 日
11. 小林 宗右, 丁 超, 豊田 太郎, 吉野 賢二, 峯元高志, Jakapan Chantana, 早瀬 修二, 沈青、無機リガンドの表面修飾による量子ドット太陽電池の光電変換特性の変化とそのメカニズム、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 16 日
12. 山崎 康平, 藤野 秀一郎, 豊田 太郎, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 沈 青、固体型 Sb₂S₃ 太陽電池の各界面における再結合過程の評価、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 17 日

13. 廣中 基記, 豊田 太郎, 堀 奏江, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 沈 青, 逆オパール構造 TiO₂ 電極を用いた固体型半導体増感太陽電池の作製と光電変換機能の向上, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 2017 年 3 月 17 日
14. 豊田 太郎, 奥野 剛史, 神山 慶太, 早瀬 修二, 沈 青, 逆オパール構造とナノ粒子構造を有する増感太陽電池用 TiO₂ 電極の光吸収・発光・光電子収量特性評価, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 2017 年 3 月 14 日
15. 出石 拓也, 張 耀紅, 中澤 直樹, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 片山 建二, 峯元 高志, 沈 青, CuInS₂ 量子ドットの表面修飾による発光特性と光励起電子のダイナミクスの変化, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 2017 年 3 月 17 日
16. 豊田太郎, 沈 青, 神山慶太, 片山建二, 早瀬修二, 異なるルチル型 TiO₂ 単結晶に吸着した CdSe 量子ドットの光吸収・イオン化エネルギー・光誘起電子移動 - 基板面方位と粒径依存性, ナノ学会第 15 回大会, 札幌, 2017 年 5 月 10-12 日
17. 豊田太郎, 沈 青, 堀 奏江, 神山慶太, 早瀬修二, ルチル型 TiO₂ 単結晶 (001), (110), (111)面に吸着した PbS 量子ドットの光吸収とイオン化エネルギー, 第 78 回応用物理学会, 福岡, 2017 年 9 月 5 - 8 日
18. 北畠有紀子, 丁超, 張耀紅, 大冢修平, 豊田太郎, 早瀬修二, 片山健二, 沈青, Pb 量子ドットヘテロ接合型太陽電池の開放電圧の粒径依存性, 第 78 回応用物理学会, 福岡, 2017 年 9 月 5 - 8 日
19. 堀 奏江, 張 耀紅, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈 青, Pb 量子ドットヘテロ接合型太陽電池の開放電圧の粒径依存性界面パッシベーションによる CdSe 量子ドット増感逆オール構造 TiO₂ 太陽電池の界面再結合の抑制, 第 78 回応用物理学会, 福岡, 2017 年 9 月 5-8 日
20. 豊田 太郎, Yindeesuk Witoon, 神山 慶太, 片山 建二, 早瀬 修二, 沈 青, ルチル型 TiO₂ 結晶に吸着した CdSe 量子ドットの光吸収と光誘起電子移動の異方性, 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2016 年 3 月 19 日
21. 沈青, Teresa S. Ripolles, 尾込 裕平, 西中浩二, 出石拓也, 片山建二, 豊田太郎, 吉野賢二, 早瀬修二, ペロブスカイト CsPbI₃ の遅いホットキャリア緩和と P3HT への高速ホール移動, 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2016 年 3 月 22 日
22. 小野 敬太, 豊田 太郎, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 吉野 賢二, 沈 青, 固体型 PbS 量子ドット太陽電池における電荷分離・輸送メカニズム, 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, 2016 年 3 月 19 日
23. 沈 青, Teresa S. Ripolles, 尾込 裕平, 西中浩二, 出石拓也, 片山建二, 豊田太郎, 吉野賢二, 早瀬修二, Hot carrier dynamics in CsPbI₃ perovskite and fast hole transfer to P3HT, 2016 年光化学討論会, 東京大学, 2016 年 9 月 7 日
24. 豊田太郎, Witoon Yindeesuk, 神山慶太, 片山建二, 小林久芳, 早瀬修二, 沈 青, CdSe 量子ドットからルチル型 TiO₂ 単結晶への光誘起電子移動: 量子ドット増感系における基礎研究, 2016 年光化学討論会, 東京大学, 2016 年 9 月 7 日
25. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二, スピンコート法による ZnMgO 膜の低温作製, 応用物理学会, 新潟, 2016年9月14日
26. 藤野 秀一郎, 山崎 康平, Yaohong Zhang, Chao Ding, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈青, 固体型 Sb₂S₃ 増感太陽電池の光吸収と光電変換特性 - 熱処理温度依存性-, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ(新潟市), 2016 年 9 月 13 日
27. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二, スピンコート法による Mg 添加 ZnO 膜のアニール効果, 日本学術振興会, 第 13 回 「次世代の太陽光発電システム」シンポジウム, 長岡, 2016年 5 月 19 日
28. Yaohong Zhang, Ding Chao, Jin Chang, Taro Toyoda, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Qing Shen, 固 Air stable PbSe quantum dot heterojunction solar cell: ligand dependent exciton dissociation, recombination, photovoltaic property and stability, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ(新潟市), 2016 年 9 月 13 日
29. 堀 奏江, 中澤 直樹, 藤野 秀一郎, 廣中基記, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈 青, 量子ドット

- ト吸着した逆オパール構造 TiO₂ 光電極の界面における電荷移動 –界面パッシベーション効果–、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ(新潟市)、2016 年 9 月 13 日
30. 中澤 直樹, 出石 拓也, 小林 宗右, Yaohong Zhang, Chao Ding, 峯元 高志, チャン タナ ジャカパン, 早瀬 修二, 豊田 太郎, 沈 青, PbS 量子ドット太陽電池における CdCl₂ 表面パッシベーション効果、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ(新潟市)、2016 年 9 月 13 日
 31. 豊田 太郎, ウイトウーン インデイスク, 神山慶太, 片山 建二, 小林 久芳, 早瀬 修二, 沈 青, CdSe 量子ドット / ルチル型 TiO₂ 単結晶増感系の光誘起電子移動評価:速度定数と移動成分のドットサイズ依存性、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ(新潟市)、2016 年 9 月 13 日
 32. Yaohong Zhang, Chao Ding, Jin Chang, Taro Toyada, Shuzi Hayase, Qing Shen, Ligand-dependent performance of PbSe quantum dot planar heterojunction solar cell, 第 26 回日本 MRS 年次大会, 横浜市開港記念会館, 2016 年 12 月 21 日
 33. Chao Ding, Yaohong Zhang, Shuzi Hayase, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda and Qing Shen, Controllable ZnMgO Thin Films as Highly Transparent Electron-Transporting Layers for PbS Colloidal Quantum Dot Photovoltaics, 第 26 回日本 MRS 年次大会, 横浜市開港記念会館, 2016 年 12 月 21 日
 34. 豊田太郎、ウイツーンインデイスク、神山慶太、片山建二、早瀬修二、沈青、ルチル型 TiO₂ 単結晶基板に吸着した CdSe 量子ドットのイオン化ポテンシャルと光誘起電子移動、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015 年 3 月 14 日
 35. 豊田太郎、ウイツーンインデイスク、神山慶太、早瀬修二、沈青、TiO₂ 単結晶への CdSe 量子ドット吸着の面方位依存性、ナノ学会第 13 回大会、東北大学、2015 年 5 月 11 日
 36. 豊田太郎、ウイツーンインデイスク、神山慶太、早瀬修二、沈青、ZnO 単結晶上 CdSe 量子ドット吸着の面方位依存性–光音響分光法と光電子収量分光法による評価、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015 年 3 月 14 日
 37. 久家 佑輝、常 進、豊田 太郎、尾込裕平、早瀬 修二、吉野 賢二、沈 青、PbS 量子ドット薄膜における光励起キャリアダイナミクス –電荷分離の量子ドット間距離依存性–、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015 年 3 月 14 日
 38. 山崎 康平、佐藤 光希、豊田 太郎、片山 建二、尾込 陽平、早瀬 修二、沈 青、固体型 Sb₂S₃ 増感太陽電池の各界面における電荷再結合ダイナミクス、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015 年 3 月 14 日
 39. 沈 青、尾込 裕平、豊田 太郎、藤原幸星、山崎 康平、佐藤 光希、片山 建二、吉野 賢二、早瀬 修二、CH₃NH₃Sn_xPb_{1-x}I₃ ペロブスカイトの Sn 混合比 x による光吸収特性と電荷分離・再結合特性の変化、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015 年 3 月 14 日
 40. 豊田太郎、ウイツーンインデイスク、神山慶太、片山建二、早瀬修二、沈青、ルチル型 TiO₂ 単結晶基板に吸着した CdSe 量子ドットのイオン化ポテンシャルと光誘起電子移動、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015 年 3 月 14 日
 41. 出石 拓也, 張 耀紅, 中澤 直樹, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 片山 建二, 峯元 高志, 沈 青, CuInS₂ 量子ドットの表面修飾による発光特性と光励起電子のダイナミクスの変化、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋、2015 年 9 月 15 日
 42. 豊田 太郎, 奥野 剛史, 神山 慶太, 早瀬 修二, 沈 青、逆オパール構造とナノ粒子構造を有する増感太陽電池用 TiO₂ 電極の光吸収・発光・光電子収量特性評価、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋、2015 年 9 月 14 日
 43. 廣中 基記, 豊田 太郎, 堀 奏江, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 沈 青、逆オパール構造 TiO₂ 電極を用いた固体型半導体増感太陽電池の作製と光電変換機能の向上、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋、2015 年 9 月 17 日
 44. 豊田太郎、W. Yindeesuk、神山慶太、早瀬修二、沈 青、ZnO 単結晶基板に吸着した CdSe 量子ドットの光吸収とイオン化ポテンシャル、第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋、2015 年 9 月 17 日

45. 豊田太郎, W. Yindeesuk, 奥野剛史, 秋元正哉, 神山慶太, 早瀬修二, 沈 青, 逆オパール構造とナノ粒子構造を有するTiO₂電極の電子構造, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋, 2015年9月17日
46. 梶知史, 常進, 豊田太郎, 尾込裕平, 早瀬修二, 沈青, 量子ドット太陽電池への応用を目的としたTiO₂ナノロッドとナノチューブ電極の特性評価, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋, 2015年9月16日
47. Jin Chang, Yuki Kuga, Taro Toyoda, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Kenji Katayama, and Qing Shen, Correlation between Capping Ligands and Photovoltaic Properties in PbS Quantum Dot Solar Cells, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋, 2015年9月13日
48. 持原晶子, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二, 錫・鉛複合ペロブスカイトを用いた有機無機ハイブリッド太陽電池の結晶構造評価, 応用物理学会, 神奈川, 2014年9月20日
49. 吉野賢二, 持原晶子, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二, 非真空プロセスによる酸化亜鉛薄膜の低温作製と太陽電池への応用, 応用物理学会, 神奈川, 2014年9月20日
50. 豊田太郎, ウイツーンインディースク, 神山慶太, 早瀬修二, 沈青, dSe 量子ドット吸着のTiO₂結晶面方位による効果 — 光音響分光と光電子収量分光による評価 —, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 2014年3月18日
51. 大島卓也, 長田直哉, 片山健二, 尾込裕平, 早瀬修二, 豊田太郎, 沈青, 吉野賢二, CdS, CdSe 複合化量子ドット増感TiO₂光電極の光励起キャリアダイナミクス, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 2014年3月18日
52. 沈青, 尾込裕平, 塚本翔太, 久木原賢治, 大島卓也, 長田直也, 片山建二, 吉野賢二, 豊田太郎, 早瀬修二, 有機・無機ハイブリッド太陽電池の電荷分離界面における電荷分離機構の解明と高効率化への提案, 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学, 2014年3月18日
53. 豊田太郎, Witoon Yindeesuk, 神山慶太, 早瀬修二, 沈 青, TiO₂単結晶へのCdSe量子ドット吸着の面方位依存性, ナノ学会第12回大会, 京都大学, 2014年5月24日
54. 秋元 正哉, 豊田 太郎, 奥野 剛史, 早瀬 修二, 尾込 祐平, 吉野 賢二, 沈 青, ナノ粒子構造TiO₂及びナノチューブ構造TiO₂のフォトルミネッセンスと光電変換特性, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 2014年9月17日
55. 沈 青, 尾込裕平, 塚本翔太, 藤原幸星, Witoon Yindeesuk, 佐藤光希, 片山建二, 吉野賢二, 豊田太郎, 早瀬修二, Sn/Pb ペロブスカイト太陽電池の電荷分離機構の解明と高効率化への提案, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 2014年9月19日
56. 豊田太郎, Witoon Yindeesuk, 神山慶太, 早瀬修二, 沈 青, ルチル型TiO₂各種結晶面への光誘起電子移動, CdSe 量子ドット増感系, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 2014年9月19日
57. 豊田太郎, Witoon Yindeesuk, 神山慶太, 奥野 剛, 早瀬修二, 沈 青, TiO₂基板モルフォロジーの電子構造に及ぼす効果, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 2014年9月19日
58. 盛 由貴, Luan Chunyan, Juan Antonio Zapien, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 奥野 剛史, 豊田太郎, 沈 青: AZO 基板を用いた ZnO ナノロッドの作製と太陽電池への応用, 第60回応用物理学会春季学術講演会 (2013年3月27日 神奈川工科大学)
59. 宮本 真伍, 福本 貴文, 丹羽 勇介, 前田 直孝, 片山 建二, 尾込 祐平, 早瀬 修二, 沈青, 豊田 太郎: TiO₂上に吸着されたSb₂S₃の光励起キャリアダイナミクス, 第60回応用物理学会春季学術講演会 (2013年3月28日 神奈川工科大学)
60. 沈青, 尾込裕平, S. K. Das, S. S. Pandey, 吉野賢二, 豊田太郎, 早瀬修二: ZnO/dye/P3HTハイブリッド太陽電池のナノ界面における電荷分離と再結合ダイナミクス, 第60回応用物理学会春季学術講演会講演 (2013年3月28日 神奈川工科大学)
61. 金應旻, 盛 由貴, 尾込 裕, 早瀬 修二, 豊田 太郎, 沈 青: CdSe 量子ドットを吸着した

TiO₂ ナノチューブ電極の光電変換特性、第 60 回応用物理学会春季学術講演会(2013 年 3 月 27 日 神奈川工科大学)

62. 久家佑輝、尾込裕平、早瀬修二、豊田太郎、沈 青: 固体型 PbS 量子ドット太陽電池における光電変換特性、第 60 回応用物理学会春季学術講演会講演 (2013 年 3 月 29 日 神奈川工科大学)。

国際学会の口頭発表: 33件

1. Yaohong Zhang, Guohua Wu, Chao Ding, Yang Zhang, Feng Liu, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Joe Otsuki, and Qing Shen: Suppression of recombination in PbS and PbSe based quantum dot solar cells by surface and interface engineering, Asia Pacific Hybrid and Organic Photovoltaics Conference (AP-HOPV17) (Yokohama, Japan, Feb. 3-4, 2017)
2. Qing Shen, Feng Liu, Teresa S. Ripolles, Naoki Nakazawa, Yaohong Zhang, Yuhei Ogomi, Koji Nishinaka, Takuya Izuishi, Taro Toyoda, Shuzi Hayase: "Slow Hot Carrier Cooling in Bulk CsPbI₃ Perovskite and CsPbI₃ Quantum Dots", International Conference on Hybrid and Organic Photovoltaics (HOPV17) (Lausanne, Switzerland, May 21-24, 2017).
3. Taro Toyoda, Qing Shen, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, and Shuzi Hayase: Size-dependent optical absorption, ground state energy, and interfacial electron transfer dynamics of CdSe quantum dots on single crystal rutile-TiO₂ (001), (110), and (111) surfaces, 10th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (Tokyo, Japan, July 5, 2017)
4. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto, Shuzi Hayase: Photoexcited Carrier Dynamics, Interface Passivation and Mechanism for Improving Photovoltaic Performance of Perovskite Solar Cell, The 15th International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM 2017) (Kyoto, Japan, Aug. 27-Sep. 1, 2017).
5. Chao Ding, Yaohong Zhang, Shuzi Hayase, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Takashi Minemoto, Qing Shen: Bandgap engineering of Magnesium-doped Zinc Oxide as Electron-Transporting Layers for PbS Colloidal Quantum Dot Solar Cells and Perovskite Solar Cells, Bandgap engineering of Magnesium-doped Zinc Oxide as Electron-Transporting Layers for PbS Colloidal Quantum Dot Solar Cells and Perovskite Solar Cells
6. Qing Shen, Teresa S. Ripolles, Yuhei Ogomi, Koji Nishinaka, Taro Toyoda, Takuya Izuishi, Kenji Yoshino, Shuzi Hayase: Slow hot carrier cooling in caesium lead iodide (CsPbI₃) perovskite, 2016 MRS Spring Meeting & Exhibit (Phoenix, USA, March 28-April 1, 2016).
7. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Hisayoshi Kobayashi, Shuzi Hayase: The Electronic Structure and Photoinduced Electron Transfer Rate of Cadmium Selenide Quantum Dots on Single Crystal Rutile TiO₂, the 26th international symposium on photochemistry (Osaka, Japan, April 3-8, 2016).
8. Qing Shen, Teresa S. Ripolles, Yuhei Ogomi, Koji Nishinaka, Takuya Izuishi, Kenji Katayama, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Shuzi Hayase: Slow hot carrier cooling and ultrafast hole transfer in CsPbI₃ perovskite: potential for hot carrier solar cell application, the 26th international symposium on photochemistry (Osaka, Japan, April 3-8, 2016).
9. Qing Shen, Teresa S. Ripolles, Yuhei Ogomi, Koji Nishinaka, Takuya Izuishi, Kenji Katayama, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, Shuzi Hayase: "Slow Hot Carrier Cooling and Fast Hole Transfer to P3HT in Cesium Lead Iodide (CsPbI₃) Perovskite", International Conference on Hybrid and Organic Photovoltaics (HOPV16) (Swansea, UK, June 28-July 1, 2016).
10. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Hisayoshi Kobayashi, Shuzi Hayase, Qing Shen: Electronic Structure and Photoinduced Electron Transfer Dynamics from CdSe Quantum Dots to Single Crystal Rutile TiO₂: A Basic Study of Quantum Dot-Sensitization System, Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology, (Sapporo,

- Japan, Oct. 10–13, 2016).
11. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Shyam S. Pandey, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Low Temperature Growth of CuInS_2 Thin Films from Metal Xanthate Precursors, 27th International Photovoltaic Science and Engineering Conference, シンガポール, 2016年10月25日
 12. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Sprayed SnO_2/FTO Buffer Layer for Perovskite based Solar Cell, 27th International Photovoltaic Science and Engineering Conference, シンガポール, 2016年10月25日
 13. Kenji Yoshino (宮崎大), Akiko Mochihara (宮崎大), Kenji Kainou (宮崎大), Minobu Kawano (九工大), Yuhei Ogomi (九工大), Qing Shen (電通大), Taro Toyoda (電通大), Shuzi Hayase (九工大), Low Temperature Growth of Porous ZnO Films for Inorganic–Organic Hybrid Solar Cell, The Fifth European Conference on Crystal Growth, ボローニャ(イタリア), 2015年9月11日
 14. J. Chang, Y. Kuga, I. Mora–Seró, T. Toyoda, Y. Ogomi, S. Hayase, J. Bisquert, and Q. Shen: High Reduction of Interfacial Charge Recombination in PbS Heterojunction Colloidal Quantum Dot Solar Cells by Metal Oxide Surface Passivation, The International Conference on Hybrid and Organic Photovoltaics (HOPV15) (Rome, Italy, May 10–14, 2015).
 15. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Kenji Katayama, Kenji Yoshino, Shuzi Hayase*: Optical Absorption, Charge Separation and Recombination in Sn/Pb Cocktail and Pb Halide Perovskite Solar Cells and their Relationships to Photovoltaic Performances, International Conference on Solution Processed Innovative Solar Cells (Santiago de Compostela, Spain, Sep. 9–11, 2015).
 16. Jin Chang, Yuki Kuga, Tora Toyoda, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Qing Shen*: Impact of Surface Ligand on the Photovoltaic Performance and Exciton Dynamics in Quantum Dot Solar Cells, International Conference on Solution Processed Innovative Solar Cells (Santiago de Compostela, Spain, Sep. 9–11, 2015).
 17. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase, and Qing Shen: Electronic structures and photoinduced transfer rates of CdSe quantum dots on TiO_2 - the impact of substrate crystal orientation, 10th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '15 (Japan, Matue, Oct. 30, 2015)
 18. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Low Temperature Growth of $\text{Cu}_2\text{ZnSnS}_4$ Thin Films by Metal Xanthate Precursors, The Fifth European Conference on Crystal Growth, ボローニャ(イタリア), 2015年9月12日
 19. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Kenji Kainou, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Low Temperature Growth of Porous ZnO Films for Inorganic–Organic Hybrid Solar Cell, The Fifth European Conference on Crystal Growth, ボローニャ(イタリア), 2015年9月11日
 20. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Low Temperature Growth of Porous ZnO Films for Inorganic–Organic Hybrid Solar Cells, The Conference on Material Research Society, ボストン, 2015年12月1日
 21. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Atsushi Morita, Shota Tsukamoto, Takahiro Saitho, Naotaka Fujikawa, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, and Shuzi Hayase: Charge separation and recombination dynamics in Sn halide perovskite sensitized solar cell, 6th International Conference on Hybrid and Organic Photovoltaics, Switzerland, May 11–14, 2014
 22. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase and Q. Shen, Effect of TiO_2 Crystal Orientation on the Adsorption of CdSe Quantum Dots Characterized by the Photoacoustic and Photoelectron Yield Methods, 20th International Conference on Photochemical Conversion and Storage of Solar Energy, Berlin, Germany, Jul. 27 - Aug. 1,

- 2014.
23. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Tsuyoshi Okuno, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Effect of Nanostructured TiO₂ Morphology on Electronic Structure studied by the Photoacoustic, Photoluminescence, and Photoelectron Yield Spectroscopy, International Conference on Fundamental Processes in Semiconductor, Nanocrystals, Oxford, United Kingdom, Sep. 8-10, 2014.
 24. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Shota Tsukamoto, Kosei Fujiwara, Witoon Yindeesuk, K Koki Sato, Kenji Katayama, Taro Toyoda, Kenji Yoshino, and Shuzi Hayase, Charge separation and recombination dynamics in Sn/Pb halide perovskite solar cell: uncovering the bottleneck of photovoltaic efficiency, The International Conference Solution processed Semiconductor Solar Cells, Oxford, United Kingdom, Sep. 10-12, 2014.
 25. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase and Qing Shen, TiO₂ Crystal Orientation Dependences of the Adsorption and Photoinduced Electron Transfer: CdSe Quantum Dot-Sensitization System, The 7th International Symposium on Surface Science, Matsue, Japan, Nov. 2-6, 2014. Nov. 2-6, 2014.
 26. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Syota Tsukamoto, Kenji Kukihara, Jin Chang, Takuya Oshim, Naoya Osada, Kenji Yoshino, Kenji Katayama, Taro Toyoda and Shuzi Hayase, Charge Transfer and Recombination at the Metal Oxide/Perovskite/Spiro-OMeTAD Interfaces: Uncovering the Mechanism behind High Efficiency Perovskite-based Solar Cells, The 6th World Conference on Photovoltaic Energy Conversion, Kyoto, Japan, Nov. 26-27, 2014.
 27. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Tsuyoshi Okuno, Masaya Akimoto, Shuzi Hayase and Qing Shen, Effect of Nanostructured TiO₂ Morphology on Electronic Structure, The 1st E-MRS/MRS-J Bilateral Symposia, Yokohama, Dec. 10-12, 2014
 28. Masaya Akimoto, Taro Toyoda, Tsuyoshi Okuno, Shuzi Hayase and Qing Shen, Photoluminescence Characterization of Defect States of TiO₂ Films with Different Morphologies, The 1st E-MRS/MRS-J Bilateral Symposia, Yokohama, Dec. 10-12, 2014.
 29. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Kenji Kainou, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Growth of Porous ZnO Films for Inorganic-Organic Hybrid Solar Cells, International Conference on Hybrid and Organic Photovoltaics (HOPV18), ローザンヌ (スイス), 2014年5月12日
 30. Akiko Mochihara, Kenji Yoshino, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Growth of Cu₂ZnSnS₄ Thin Films by Metal Xanthate Precursors, Meeting on Europe Material Research Society, リール(フランス), 2014年5月28日
 31. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Growth of ZnO Films by Atmospheric Spray Pyrolysis using Diethylzinc Solution, The Conference on Europe Material Research Society, リール(フランス), 2014年5月28日 11.
 32. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Sandeep K. Das, Shyam. S. Pandey, Kenji Yoshino, Taro Toyoda and Shuzi Hayase: Improvement of Charge Separation and Suppression of Charge Recombination in ZnO/P3HT Hybrid Solar Cells by Locating Dye at ZnO/P3HT Interfaces, Hong Kong, China, May 6-9, 2013.
 33. Qing Shen and Taro Toyoda: Ultrafast Transient Grating Characterization for PbS Based Quantum Dot Sensitized Solar Cells, the 3rd International Conference on Semiconductor Sensitized and Quantum Dot Solar Cells, Granada, Spain, June 9-11, 2013.

③ ポスター発表 (国内会議 22 件、国際会議 21 件)
 1. 発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

■ポスター発表詳細情報(国内)

1. 北島 有紀子, 丁 超, 梶 知史, 小林 宗右, 張 耀紅, 出石 拓也, 中澤 直樹, 豊田 太郎, 早瀬修二, 片山 建二, 沈 青、ヘテロ接合型 PbS 量子ドット太陽電池の光電変換特性-量子ドットの粒径依存性-, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 16 日
2. 大図 修平, 張 耀紅, 梶 知史, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈 青、PbSe 量子ドット/ZnO ナノロッドヘテロ接合太陽電池の光電変換特性-ZnO ナノロッド長さの依存性-, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 16 日
3. 上坂 太一, 出石 拓也, 張 耀紅, 中澤 直樹, 峯元 高志, チャンタナ ジャカバン, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈 青、CuInS₂ 量子ドットの光物性と光キャリアダイナミクスのサイズ依存性、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜、2017 年 3 月 16 日
4. 中澤 直樹, Jin Chang, 早瀬修二, 豊田 太郎, 沈 青、PbS 量子ドットにおける多重励起子の電荷分離速度定数の量子ドット間距離の依存性、第 78 回応用物理学会、福岡、2017 年 9 月 5-8 日
5. 大図 修平, 北島 有紀子, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈 青、PbS 量子ドット/ZnO ナノワイヤヘテロ接合太陽電池の光電変換特性-量子ドット層の膜厚依存性-, 第 78 回応用物理学会、福岡、2017 年 9 月 5-8 日
6. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二、ジェチル亜鉛を原料に用いたスピコート法による ZnMgO 膜の作製、応用物理学会、横浜、2017年3月15日
7. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二、スピコート法による窒素雰囲気下での ZnO 膜の低温作製、応用物理学会、福岡、2017年9月6日
8. 廣中 基記, 豊田 太郎, 佐藤 光希, 堀 奏江, 尾込 裕平, 早瀬 修二, 沈 青、CdSe 量子ドット増感逆オパール構造 TiO₂ 太陽電池の光電変換特性 -光強度依存性-, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
9. 出石 拓也, 張 耀紅, 佐藤 光希, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 片山 建二, 沈 青、CuInS₂ 量子ドットのホットキャリア緩和のダイナミクス-ZnS 表面パッシベーション効果-, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
10. 梶知史, 佐藤光希, 豊田太郎, 尾込裕平, 早瀬修二, 沈青、水熱合成 TiO₂ ナノロッド電極を用いた CdSe 量子ドット増感太陽電池の光電変換特性、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
11. 堀 奏江, 廣中 基記, 豊田 太郎, 早瀬 修二, 沈 青、逆オパール構造 TiO₂ 電極を用いた量子ドット増感太陽電池の界面修飾効果、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
12. 藤野 秀一朗, 山崎 康平, 佐藤 光希, 小野敬太, 豊田 太郎, 早瀬修二, 沈 青、化学溶液析出法で作製した Sb₂S₃ の光吸収特性と増感太陽電池への応用 -Sb₂S₃ の吸着時間依存性と熱処理効果-, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
13. 中澤 直樹, 出石 拓也, 小野 敬太, 小林 宗右, Yaohong Zhang, Chao Ding, 豊田 太郎, 早瀬修二、沈 青、PbS 量子ドットの CdCl₂ 表面修飾による蛍光効率向上と光励起キャリアダイナミクスの変化、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
14. Yaohong Zhang, Chao Ding, Shuzi Hayase, Yuhei Ogomi, Jin Chang, Taro Toyoda, Qing Shen, Performance of PbSe quantum dot based heterojunction solar cells: Dependence on ligand type, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
15. Chao Ding, Jin Chang, Yaohong Zhang, Naotaka Fujikawa, Shuzi Hayase, Kenji Yoshino, Taro Toyoda, Qing Shen, One-step deposition of PbS Quantum Dot harvesting layer with new-ligand for solid state heterojunction solar cells, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会、東京、2016 年 3 月 19 日
16. 富永姫香, 吉野賢二, 尾込裕平, 沈青, 豊田太郎, 早瀬修二、スピコート法による Mg 添加 ZnO 膜のアニール効果、日本学術振興会、第 13 回「次世代の太陽光発電システム」シン

ポジウム、長岡、2016年5月19日

17. Yaohong Zhang, Chao Ding, Jin Chang, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Taro Toyoda, Qing Shen, Performance of PbSe quantum dot based heterojunction solar cells: Dependence on ligand type, 2016年光化学討論会、東京、2016年9月7日
18. Chao Ding, Jin Chang, Yaohong Zhang, Naotaka Fujikawa, Shuzi Hayase, Kenji Yoshino, Taro Toyoda, Qing Shen, Bandgap Tunable ZnMgO Electron-Transporting Layers for Stable PbS Colloidal Quantum Dot Photovoltaics, 2016年光化学討論会、東京、2016年9月7日
19. 廣中 基記、常 進、秋元 正哉、豊田太郎、尾込 裕平、早瀬 修二、沈 青、CdSe 量子ドットを吸着した逆オパール構造 TiO₂ 電極の光電変換特性-周期依存性-、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015年3月13日
20. 梶 知史、常 進、秋元 正哉、豊田太郎、尾込 裕平、早瀬 修二、沈 青、増感型太陽電池への応用を目的とした水熱合成による単結晶 TiO₂ ナノロッド電極の作製と評価、第 62 回応用物理学会春季学術講演会、東海大学、2015年3月13日
21. 久家 佑輝、常 進、尾込 裕平、早瀬 修二、吉野 賢二、豊田 太郎、沈 青、PbS 量子ドット薄膜における電荷分離とキャリア輸送、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学、2014年9月17日
22. 山崎康平、佐藤光希、豊田太郎、片山建二、尾込裕平、早瀬修二、沈 青、固体型 Sb₂S₃ 増感太陽電池における電荷再結合界面の解明、第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学、2014年9月17日

■ポスター発表詳細情報(国際)

1. K. Hori, M. Hironaka, T. Toyoda, S. Hayase and Q. Shen, Suppression of Interfacial Recombination in Quantum Dot Sensitized Inverse Opal TiO₂ Solar Cells Using ZnS Passivation, The 15th International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM 2017) (Kyoto, Japan, Aug. 27-Sep. 1, 2017).
2. Shuichiro Fujino, Kohei Yamazaki, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Interfacial charge recombination and photovoltaic properties of Sb₂S₃ sensitized solid state solar cells, The 15th International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM 2017) (Kyoto, Japan, Aug. 27-Sep. 1, 2017).
3. Qing Shen, Jin Chang, Yuhei Ogomi, Chao Ding, Yaohong Zhang, Shuzi Hayase, and Taro Toyoda, PbS quantum dot heterojunction solar cells: ligand dependent exciton dissociation, recombination and photovoltaic property, The International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-26), The Sands Expo and Convention Centre in Singapore, Oct. 25, 2016.
4. Chao Ding, Yaohong Zhang, Shuzi Hayase, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, and Qing Shen, Bandgap engineering using quantum-size-effect-tuned heterojunctions, The Irago Conference 2016, Tokyo, Japan, Nov. 1, 2016.
5. Yaohong Zhang, Chao Ding, Guohua Wu, Yuhei Ogomi, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Qing Shen, Air stable PbSe quantum dot solar cell: from device fabrication, storage to measurements, The Irago Conference 2016, Tokyo, Japan, Nov. 1, 2016.
6. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Low Temperature Growth of Cu₂ZnSnS₄ Thin Films by Metal Xanthate Precursors, The Fifth European Conference on Crystal Growth, ボローニャ(イタリア), 2015年9月12日
7. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Low Temperature Growth of Porous ZnO Films for Inorganic-Organic Hybrid Solar Cells, The Conference on Material Research Society, ボストン, 2015年12月1日
8. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Shuzi Hayase, and

- Qing Shen, Effect of TiO₂ crystal orientation on the adsorption and photoinduced electron transfer: CdSe quantum dot-sensitization system, 57th Electronic Materials Conference, Columbus, Ohio, U.S.A., June 25, 2015.
9. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Tsuyoshi Okuno, Masaya Akimoto, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Electronic structures of two types of TiO₂ electrodes: Inverse opal and nanoparticulate cases, 57th Electronic Materials Conference, Columbus, Ohio, U.S.A., June 25, 2015.
 10. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Photoinduced Electron Transfer from Semiconductor Quantum Dots to TiO₂ Single Crystal Substrate - The Impact of Surface Crystal Orientation, International Conference & Exhibition on Advanced & Nano Materials, Ottawa, Canada, Aug. 10-12, 2015.
 11. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Kenji Katayama, Hisayoshi Kobayashi, Shuzi Hayase, and Qing Shen, The electronic structure and photoinduced electron transfer rate of CdSe quantum dots on single crystal rutile TiO₂: Dependence of the crystal orientation of the substrate, CEMS Topical Meeting on Oxide Interfaces, Saitama, Japan, Nov. 6, 2015.
 12. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Kenji Kainou, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Growth of Porous ZnO Films for Inorganic-Organic Hybrid Solar Cells, International Conference on Hybrid and Organic Photovoltaics (HOPV18), ローザンヌ(スイス), 2014年5月12日
 13. Akiko Mochihara, Kenji Yoshino, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Growth of Cu₂ZnSnS₄ Thin Films by Metal Xanthate Precursors, Meeting on Europe Material Research Society, リール(フランス), 2014年5月28日
 14. Kenji Yoshino, Akiko Mochihara, Minobu Kawano, Yuhei Ogomi, Qing Shen, Taro Toyoda, Shuzi Hayase, Growth of ZnO Films by Atmospheric Spray Pyrolysis using Diethylzinc Solution, The Conference on Europe Material Research Society, リール(フランス), 2014年5月28日
 15. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase and Qing Shen, Influence of TiO₂ Crystal Orientation on the Adsorption of CdSe Quantum Dots studied by the Photoacoustic and Photoelectron Yield Spectroscopy, The International Conference Solution processed Semiconductor Solar Cells, Oxford, United Kingdom, Sep. 10-12, 2014.
 16. Masaya Akimoto, Taro Toyoda, Tsuyoshi Okuno, Shuzi Hayase, and Qing Shen, Photoluminescence and photovoltaic properties of nanoparticle and nanotube TiO₂, The 7th International Symposium on Surface Science, Matsue, Japan, Nov. 2-6, 2014.
 17. Taro Toyoda, Witoon Yindeesuk, Tsuyoshi Okuno, Masaya Akimoto, Keita Kamiyama, Shuzi Hayase and Qing Shen, Effect of Nanostructured TiO₂ Morphology on Electronic Structure, The 7th International Symposium on Surface Science, Matsue, Japan, Nov. 2-6, 2014. Nov. 2-6, 2014.
 18. Y. Kuga, J. Chang, T. Toyoda, S. Hayase, Q. Shen, Charge Separation and Transfer in PbS Quantum Dot Solids, The 7th International Symposium on Surface Science, Matsue, Japan, Nov. 2-6, 2014.
 19. Qing Shen, Yuhei Ogomi, Syota Tsukamoto, K. Kukihara, Naoya Osada, Takuya Oshima, Kenji Yoshino, Kenji Katayama, Taro Toyoda and Shuzi Hayase, Charge separation and charge recombination dynamics in lead iodide perovskite hybrid solar cells, Global Photovoltaic Conference 2013 (GPVC 2013), Busan, Korea, Nov. 10, 2013.
 20. Takuya Oshima¹, Naoya Osada^{1,2}, Kenji Katayama², Shuzi Hayase^{3,4}, Taro Toyoda^{1,4} and Q. Shen, Photoexcited electron dynamics in CdS and CdSe quantum dots cosensitized TiO₂ electrodes, Global Photovoltaic Conference 2013 (GPVC 2013), Busan, Korea, Nov. 10, 2013.

21. Qing Shen, Shingo Miyamoto, Kenji Katayama, Yuhei Ogomi, Shuzi Hayase, Taro Toyoda, Ultrafast photoexcited electron injection dynamics of Sb₂S₃ adsorbed on TiO₂ film, Global Photovoltaic Conference 2014 (GPVC 2013), Busan, Korea, Nov. 10, 2013.

(4)知財出願

① 国内出願 (6 件)

1. 太陽電池用化合物半導体ナノ粒子の作製方法, 発明者:吉野賢二, 早瀬修二, パンデイシャムスデル, 豊田太郎, 沈青, 出願人:宮崎大学, 九州工業大学, 電気通信大学, 2013.9.6, 特願 2013-185403,
2. 化合物半導体ナノ粒子による光吸収層の作製方法, 発明者:吉野賢二, 早瀬修二, パンデイシャムスデル, 豊田太郎, 沈青, 出願人:宮崎大学, 九州工業大学, 電気通信大学, 2013.9.6, 特願 2013-185404,
3. 多孔質酸化亜鉛薄膜製造方法, この方法で成膜した多孔質酸化亜鉛薄膜およびそれを用いた多孔質酸化亜鉛機能薄膜, 発明者:吉野賢二, 井手亜貴子, 早瀬修二, 尾込裕平, 豊田浩司, 稲葉孝一郎, 富安 静夫, 羽賀健一, 出願人:宮崎大学, 九州工業大学, 東ソーファインケム株式会社, 2014.2.28, 特願 2014-039550
4. 酸化チタン(TiO₂)薄膜コーティング酸化亜鉛(ZnO)ロッド及びそれを用いた太陽電池, 発明者:常進, 久家 佑輝, 沈青, 豊田太郎, 出願人: 電気通信大学, 2014.8.29, 特願 2014-175843
5. 量子ドット、これを用いた光デバイス、及び量子ドットの作製方法, 発明者:劉鋒、沈青、張耀紅、豊田太郎, 出願人:国立大学法人電気通信大学, 2019.03.23, 特願2017-057431
6. 量子ドット、これを用いた光デバイス、及び量子ドットの作製方法, 発明者:劉鋒、沈青、張耀紅、丁超、豊田太郎, 出願人:国立大学法人電気通信大学, 2017.07.13, 特願2017-137392

(5)受賞・報道等

③その他 展示会 7件

PV JAPAN 2017
パシフィコ横浜
2017/07/5~2017/07/07

産学連携フェア 2017
西日本総合展示場
2017/10/11~2017/10/13

PV JAPAN 2016
パシフィコ横浜
2016/06/29~2016/07/01

JST フェア 2016
東京ビックサイト
2016/08/25~2016/08/26

産学連携フェア 2016
北九州学研都市

2016/10/20~2016/10/21

Printable Electronics 2015

東京ビックサイト

2015/01/28~2015/01/30

PV JAPAN 2015

東京ビックサイト

2015/07/29~2015/07/31

(6)成果展開事例

①実用化に向けての展開

IoT センサーネットワーク用円筒形色素増感太陽電池としてウシオ電機株式会社フジコー
CKD 株式会社—九州工業大学で実証試験中。光電変換部分を色素増感太陽電池からペロ
ブスカイト太陽電池に変更する産学連携を協議中。

②社会還元的な展開活動

スーパーサイエンススクールでの再生可能エネルギーに関する講演や市民講座を開催

§ 5 研究期間中の活動

5. 1 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2016/8/27	太陽電池の現状と将来 展望 恒久的なエネルギーの 確保	東筑高校	400 人	太陽光エネルギーに関する 講演
2016/10/16	”自然から電気を取り出 す太陽光発電の未来 像” —太陽光発電が作る未 来社会—	マリンメッセ 福岡	1,000 人	太陽光エネルギーに関する 講演

§6 最後に

太陽電池の効率、界面構造、および電荷再結合中心としてのトラップ密度の関係を他の報告とは異なった角度から解析できた。これらの成果を SnPb-PVK に応用し大きな性能向上が得られたのは、従来の欠点解明を含め、大きな成果と考えている。これらの成果をさらに完全 Pb-free 太陽電池に適用し、完全 Pb-free ペロブスカイト太陽電池として世界トップレベルの7%の効率を得ることができている。さらに、S イノベーションプログラムで検討してきた完全封止が可能な円筒形色素増感太陽電池の光電変換部分を色素増感太陽電池からペロブスカイト太陽電池に代替することにより、高い耐久性を持った円筒形ペロブスカイト太陽電池開発として産学連携研究につなげる。クレスト研究の成果は今後の研究に十分生かされて大きな成果が期待できる。また本プロジェクトメンバーは専門領域を相互に補完できるように形成されており、月に一度の研究推進会議を通してチームとしてベクトルが一つにそろった研究運営ができたと思う。以下に九州工業大学の太陽電池研究に関する設備を示す。

