

PbS 量子ドット薄膜における電荷分離とキャリア輸送

The Charge Separation and Transfer in PbS Quantum Dot Films

○久家 佑輝¹, 常 進^{1,4}, 尾込 裕平^{2,4}, 早瀬 修二^{2,4}, 吉野 賢二^{3,4}, 豊田 太郎^{1,4}, 沈 青^{1,4}電通大先進理工¹, 九工大生命体工², 宮崎大工³, JST CREST⁴○Yuki Kuga,¹ Jin Chang,^{1,4} Yuhei Ogomi,^{2,4} Shuzi Hayase,^{2,4} Kenji Yoshino,^{3,4} Taro Toyoda,^{1,4} Qing Shen^{1,4}Univ. Electro-Commun.,¹ Kyushu Inst. Tech.,² Miyazaki Univ.,³ CREST JST⁴

E-mail: kuga@jupier.pc.uec.ac.jp

【はじめに】 半導体量子ドット (QD) を用いた太陽電池は, QD の特徴的な機能である多重励起子生成の利用により, 理論的な光電変換効率が非集光下で 44.4%と予測された¹. QD/ 金属酸化物ナノヘテロ接合太陽電池では最高で 8.6%の光電変換効率が報告されるまでに至ったが², 更なる光電変換効率の向上が望まれている。この太陽電池ではこれまで実験的に効率向上が図られて来たが, 今後は QD 膜における電荷分離やキャリアの輸送のメカニズム, 再結合過程を解明し, 理論に基づいた太陽電池の設計を行うことが必要不可欠であると考えている。我々はこれまでに硫化鉛 (PbS) QD/ 金属酸化物ナノヘテロ接合太陽電池の作製を試みてきた。³今回はその光電変換効率の向上に重要な要因である電荷分離とキャリアの移動過程について検討する。

【実験】 光励起キャリアの緩和過程を観測可能な過渡吸収 (TA) 法を適用し, PbS QD における光励起キャリアの緩和過程を観測した。試料は PbS QD 間の相互作用の無い系と相互作用のある系を用いた。前者は溶液分散させた PbS QD, 後者はガラス上にスピンコートした PbS QD 薄膜である。この薄膜では, QD の配位子をオレイン酸から実際の太陽電池に適用するセチルトリメチルアンモニウムブロミド (CTAB) に交換し導電性を持たせた。今回用いた PbS QD の光の吸収ピークは 800 nm である。TA 法にはパルス幅 150fs のチタンサファイアレーザーを用いた。励起光は 650 nm, プローブ光は 775 nm を適用した。

【結果と考察】 Fig. 1 は溶液分散させた PbS QD の光励起キャリア緩和過程である。負の TA 信号 (Bleaching 信号) は, PbS QD の HOMO と LUMO 間での光吸収量の低下を表し, 光励起された電子と正孔の存在を示す。孤立系の PbS QD では光励起電子と正孔の緩和時定数が 3ns (本測定の測定可能限界) よりはるかに長いことが判明した。挿入図は励起光強度依存性を示し, 励起光強度の減少に伴いオーグゼ再結合による速い緩和成分が見られなくなることが分かる。Fig. 2 はガラス上の PbS QD 薄膜の TA 信号である。黒線は作製 1 日後に測定したもので, 赤線は作製 7 日後に測定したものである。これらの PbS 薄膜の TA 信号より, 初期の Bleaching 信号から吸収信号に変化することを見出した。これらの結果は溶液中の PbS QD の光励起電子と正孔の緩和過程と著しく異なること分かる。また 7 日後の TA 信号では, 立ち上りと減衰はより速くなっていることが見られた。PbS 薄膜における TA 信号から電子と正孔の電荷分離が数 10 ps で行われ, 他の QD へ移動したことが示唆される。今後薄膜での PbS QD 間の距離を制御し, 電荷分離時間の量子ドット間の距離の依存性について検討する。

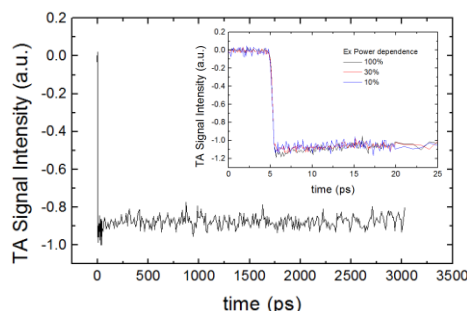


Fig. 1: Normalized TA signal decays for PbS QD in solution. Inset shows excitation power dependence.

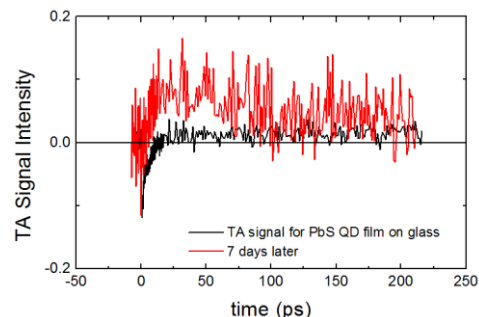


Fig. 2: TA signal decays for PbS QD films with CTAB ligands. Black line is 1day after making sample. Red one is 7days later.

1. Hanna, M. & Nozik, J. *Appl. Phys.* **100**, 074510 (2006).
2. Chuang, C.-H. M. et al. *Nature materials* (2014). doi:10.1038/nmat3984
3. 久家佑輝ら, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会(2013).