

過渡吸収法を用いた PbS/CdS 複合化量子ドット増感太陽電池の 光励起キャリア移動過程の解明

Photoexcited carrier dynamics of double-layered PbS/CdS quantum dot sensitized
solar cells characterized by transient absorption methods

中大理工¹, 電通大², JST CREST³

○佐藤光希^{1,2}, 桑原 彰太¹, 片山 建二¹, 豊田 太郎^{2,3}, 沈 青^{2,3}

Chuo Univ.¹, The Univ. of Electro-Com.², JST CREST³

°K. Sato^{1,2}, S. Kuwahara¹, K. Katayama¹, T. Toyoda^{2,3}, Q. Shen^{2,3}

E-mail: shen@pc.uec.ac.jp

【緒言】半導体量子ドット(QDs)を用いた増感型太陽電池(QDSSC)は、理論効率が高く、安価・簡便に作成可能であることから注目を集めている。また、増感剤に PbS QDs を用いることで、赤外光まで幅広い波長の光を吸収することが可能であることから、大電流が期待できるが、現状の光電変換効率は1~2%程度である¹。近年の研究では PbS QDs を CdS で表面処理した QDSSC において、4%を超える光電変換効率が報告されている²。しかし、複合化 QDs を用いた増感型太陽電池は極めて複雑系であるため、光電変換効率上昇のメカニズムを解明した報告例は少なく、再結合過程や QDs 表面の欠陥準位におけるトラップなどの電荷移動の解明が重要な課題となっている。

今回、我々は、光吸収率変化を測定する過渡吸収(TA)法を適応させることで、複合化量子 QDSSC の光電変換効率上昇のメカニズムの解明を行った。

【実験】作用電極は、酸化チタンナノ構造薄膜に SILAR 法で PbS QDs と CdS を化学吸着し、ZnS 表面処理を行ったものを用いた。^{2,3} 本研究で用いたサンプルは以下の通りである：ZnS(7)/PbS(1)/TiO₂, ZnS(2)/CdS(5)/PbS(1)/TiO₂((n)は吸着回数である)。電解質溶液は、ポリサルファイド水溶液を用い、対極には Cu₂S 電極を用いた。Nd:YAG レーザー (波長 570 nm、パルス幅 5 ns) のパルス励起光を用いて PbS のみを光励起させ、半導体レーザー(波長 658nm)の検出光で TA 応答を測定した。また、IPCE スペクトルと光電変換特性を評価した。

【結果と考察】光電変換特性と IPCE スペクトルの結果から、PbS/TiO₂ 系と比べ CdS/PbS/TiO₂ 系の光電変換効率が約 1.8%から 2.6%に増加し、励起波長 570 nm での IPCE 値は 30%増加した。

図 1 は、各試料の TA 応答である。適用した検出波長での TA 応答は、TiO₂ 内にトラップされた電子の緩和過程を反映すると報告されている。⁴ まず、PbS/TiO₂ 系と比べ、CdS/PbS/TiO₂ 系では信号強度の増加が見られたことにより TiO₂ への電子注入量の増加が確認された。次に、各 TA 応答を解析した結果、速い緩和と遅い緩和過程があることが判明した。PbS/TiO₂ 系における速い緩和成分の緩和時間 7.6 μs に対し、CdS/PbS/TiO₂ 系では 70 μs であった。これは、CdS/PbS/TiO₂ 系では PbS/TiO₂ 系と比べ、TiO₂ 中の電子と PbS QDs 中のホールとの再結合が減少したことに起因すると思われる。また、遅い緩和の緩和時間に関しては PbS/TiO₂ 系で 440 μs、CdS/PbS/TiO₂ 系で 4.6 ms であり、CdS/PbS/TiO₂ 系では、PbS/TiO₂ 系と比べ PbS QDs 表面欠陥準位が大幅に減少するため⁵、TiO₂ に注入された電子がそこにトラップされにくくなることが予想される。以上のことから PbS/CdS 複合化 QDSSC の光電変換効率向上の要因としては、電子注入の増加と界面における電荷再結合の減少のためであると示唆される。

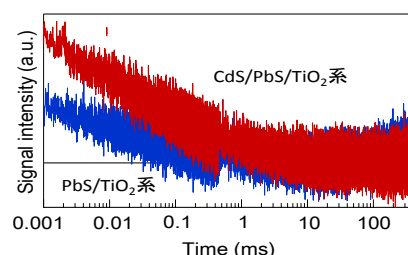


図 1 各試料における TA 応答

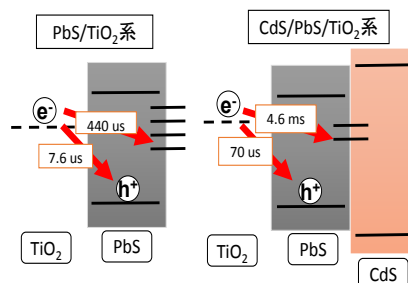


図 2 再結合メカニズムの模式図

¹ T. Toyoda, et al., *J. Appl. Phys.*, 2012, **111**, 104315.

² V. Gonzalez-Pedro, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2013, **15**, 13835.

³ S. Hachiya et al., *J. Appl. Phys.*, 2012 **111** 104315.

⁴ N. Maeda, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2013, **15**, 11006.

⁵ N. Maeda, et al., *J. Phys. Chem.*, 2011, **2**, 454.