

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-

Photoexcited Carrier Dynamics in PbS Quantum Dot Films -Dependence of Charge Separation on Quantum Dot Distance-

久家 佑輝¹, 常 進^{1,4}, 豊田 太郎^{1,4}, 尾込 裕平^{2,4}, 早瀬 修二^{2,4}, 吉野 賢二^{3,4}, 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} Taro Toyoda,^{1,4} Yuhei Ogomi,^{2,4} Shuzi Hayase,^{2,4} Kenji Yoshino,^{3,4} Qing Shen^{1,4}

Univ. Electro-Commun.,¹ Kyushu Inst. Tech.,² Miyazaki Univ.,³ CREST JST⁴

E-mail: shen@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。この系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, その知見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してきた³。今回は量子ドット間距離による電荷分離ダイナミクスの変化について報告する。

【実験】 PbS QD をガラス上にスピンコートした。量子ドット表面の配位子を, オレイン酸 (OA) からチオールとカルボン酸を両端に持ち, 長さの異なる配位子 4 種 (MHDA, MHA, MPA, TGA) 及び臭素 (CTAB) へ置換した。これらの試料に対し, FT-IR による配位子置換の評価, 透過型電子顕微鏡 (TEM) による量子ドット間距離の観測, 過渡吸収 (TA) 法による光励起キャリアの緩和過程の観測を行った。今回用いた PbS QD の光の吸収ピークは 760-790 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, プロブ光は 775 nm を適用した。

【結果と考察】 Fig. 1 は, FT-IR による CH₂ の赤外線吸収領域の透過スペクトルである。CH₂ の多い長鎖のオレイン酸から置換が成されていることが, CH₂ による光吸収量の減少から確認できた。凡例の C_n は置換後の分子中の炭素の数 n を示す。次に各 PbS 量子ドット薄膜におけるドット間の距離を, TEM 画像から計測した。TA 応答信号 (Fig. 2 の挿入図はその一例である。) からは, 2つの指数関数的な緩和過程が観察された。速い緩和過程は光励起電子のトラップで, 遅い緩和過程は正孔のドット間の移動に対応するものだと考えられる。Fig. 2 に示すように, 電子トラップと正孔の移動の速度定数 (緩和時間の逆数) は, PbS 量子ドット間の距離の減少と共に速くなることが分かった。詳細については, 当日発表する予定である。

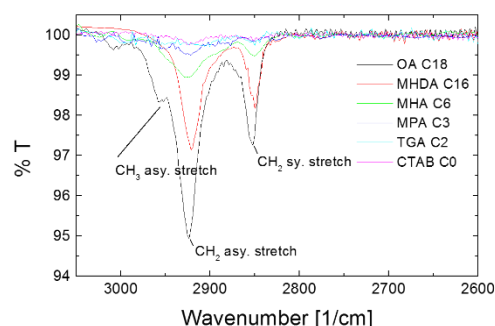


Fig. 1: FT-IR spectrum with different length ligands on PbS quantum dots.

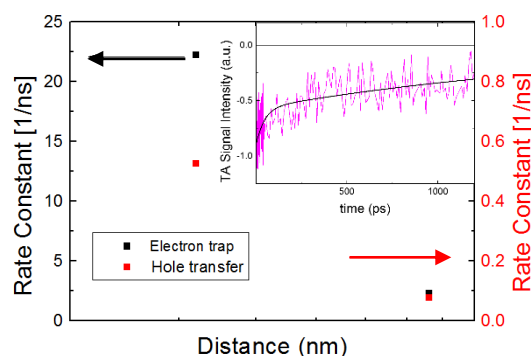


Fig. 2: Rate constant measured by TA decay signal vs. Distance between QDs. Inset shows a TA signal. It has two decay processes.

- Hanna, M. & Nozik, J. *Appl. Phys.* **100**, 074510 (2006).
- Chuang, C.-H. M. et al. *Nature materials* (2014). doi:10.1038/nmat3984
- 久家佑輝ら, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会(2014).