

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 -

Hot Carrier Dynamics in CuInS₂ Quantum Dots

-Effect of ZnS Surface Passivation-

○出石 拓也¹, 張 耀紅¹, 佐藤 光希^{1,3}, 豊田 太郎^{1,4}, 早瀬 修二^{2,4}, 片山 建二³, 沈 青^{1,4}
(1.電通大先進理工, 2.九工大生命体工, 3.中大理工, 4.JST CREST)

○Takuya Izuishi¹, Yao Hong Zhang¹, Koki Sato^{1,3}, Taro Toyoda^{1,4}, Shuzi Hayase^{2,4},
Kenji Katayama³, Qing Shen^{1,4}
(1.Univ. Electro-Commun., 2.Kyushu Inst. Tech., 3.Chuo Univ., 4.JST CREST)
E-mail: shen@pc.uec.ac.jp

【概要】量子ドット(QD)は、粒径の変化により光吸収と発光(PL)領域を変化させることが可能であること、バルク状態よりも光吸収係数と発光量子効率が高いことから、光デバイスへの応用に高い関心を持たれている。その応用の一つにQD太陽電池が挙げられ、高い変換効率を得ることが期待されている¹。現在では、QD太陽電池に用いられている毒性のないCuInS₂量子ドット(CIS-QD)の研究が進められている。CIS-QD太陽電池には、効率向上を図るために表面パッシベーションされたQDが使われており、それによる光励起キャリア緩和の変化に関する研究が重要視されている。これまで我々は、ZnS表面パッシベーションを行ったCIS-QDを作製し、パッシベーションの有無によるLUMO-HOMO間での光励起キャリアの再結合速度の変化について検討してきた²。今回はパッシベーションによる発光量子効率とホットキャリアの緩和過程の変化から、表面欠陥による光励起キャリアの緩和、特にホットキャリアの緩和への影響について検討した。

【実験】ヨウ化銅、三酢酸インジウム、1-ドデカンチオール、1-オクタデセンを混合させて200℃に加熱し、CIS-QDを作製した³。作製したCIS-QD溶液を220℃に加熱し、ビスステアリン酸亜鉛と1-ドデカンチオールを混合した溶液と混合させ、異なる反応時間(10分~60分)で形成したZnS表面層によるパッシベーションを行ったCIS-QD(CIS/ZnS-QD)を作製した⁴。ZnS表面パッシベーションがある試料とない試料に対しPLスペクトルの測定による光学的特性の評価、過渡吸収(TA)法によるホットキャリアの緩和過程の観測を行った。PL測定には470 nmの励起光を用いた。TA法にはパルス幅150 fsのチタンサファイアレーザーを用い、波長470 nmの励起光を適用した。

【結果と考察】作製した試料のPLの量子収率とホットキャリアの緩和速度のZnSパッシベーション依存性を図1に示す。ZnS表面パッシベーションにより、PLの量子収率が4%から19%まで向上したことが判明し、キャリアの再結合時に無輻射緩和する電子の割合が減少したことが分かる。また、各試料のホットキャリアの緩和速度を表1に示す。ホットキャリアの緩和速度はパッシベーション化により遅くなり、ZnS反応時間が10分のものが一番小さい値を示す。PLの量子収率との関係からPL量子収率が一番高いZnS反応時間でホットキャリアの緩和速度が一番遅くなったことを見出した。この結果からホットキャリアの緩和は表面欠陥に強く影響された可能性が示唆される。今後より詳細な検討を行う。

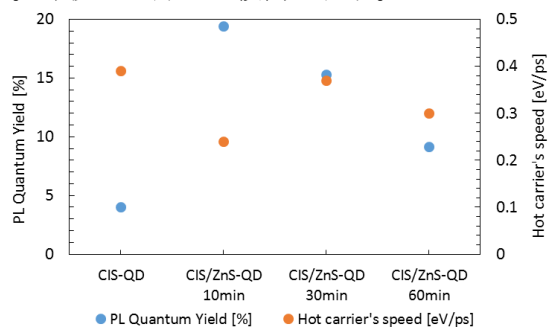


図1 PL量子収率とホットキャリアの緩和速度のZnSパッシベーション依存性

表1 TA信号ピークとホットキャリアの緩和速度

	TA signal's peak [eV]	Hot carrier's speed [eV/ps]
CIS-QD	2.10	0.39
CIS/ZnS-QD 10min	2.23	0.24
CIS/ZnS-QD 30min	2.27	0.37
CIS/ZnS-QD 60min	2.28	0.30

¹ Z. Pan, J. Bisquert, et al., *J. Am. Chem. Soc.* **136**, 9203-9210 (2014)

² 出石拓也ら, 第76回応用物理学会秋季学術講演会 (2015)

³ L. Li, P. Reiss, et al., *Chem. Mater.* **21**, 2422-2429 (2009)

⁴ L. Li, V. I. Klimov, et al., *J. Am. Chem. Soc.* **133**, 1176-1179 (2011)