

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}, 小野敬太², 出石拓也², 兼原 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-Commun.², JST CREST³

○K. Sato^{1,2}, K. Ono², T. Izuishi², S. Kuwahara¹, K. Katayama¹, T. Toyoda^{2,3}, Q. Shen^{2,3}

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

【緒言】量子ドット増感型太陽電池(QDSSC)は、半導体量子ドット(QDs)を増感剤として用いた太陽電池であり、理論効率がよく、安価・簡便に作製可能であることから注目を集めている。しかしながら、QDs 表面には多くの欠陥準位が存在することから、その光電変換効率は未だ 9%程度である¹。そのため、量子ドット表面を処理することによる光電変換効率向上を目指す研究が多く行われている。その一つに PbS/CdS 複合化 QDSSC がある。多くの欠陥準位を有する PbS QDs に対し、CdS で表面処理した PbS/CdS 複合化 QDSSC において、PbS QDSSC に比べ、QDs 欠陥準位の減少や電流値の向上により、4%以上の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 QDSSC の作用電極界面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、光吸収率の時間変化を測定する過渡吸収(TA)法を適応させることで、ps または μ s-ms 領域における作用電極界面でのキャリアダイナミクスを観測し、複合化 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(6)/PbS(1)/TiO₂, ZnS(2)/CdS(5)/PbS(1)/TiO₂ ((n)は吸着回数である)。Nd:YAG レーザー (波長 470 nm, 4ns pulse)(μ s-TA 装置)、または、Ti:Sapphire(波長 470 nm, 150fs pulse)(ps-TA 装置)のパルス励起光を用いてサンプルを励起させ、波長 785 nm の連続光を検出光とし、TA 応答を測定した。

【結果と考察】図 1 は各試料の ps-TA 応答である。この早い時間領域での TA 応答において、信号強度は QDs 内で励起された電子密度に対応し、1-20 ps において、QDs 内での励起された電子の QDs 欠陥準位におけるトラップ過程が観測されることがこれまでの研究から明らかとなっている⁴。各 TA 応答を解析した結果、励起電子は TiO₂ への注入前に PbS/TiO₂ 系で 87%、CdS/PbS/TiO₂ 系で 58%の電子が欠陥でトラップされており、CdS 複合化により、TiO₂ への電子注入量が多くなることが示唆された。

図 2 は各試料の μ s-TA 応答である。この遅い時間領域での TA 応答において、信号強度は TiO₂ に注入された電子密度に対応している⁵。信号強度が PbS/ TiO₂ 系に比べ、CdS/PbS/ TiO₂ 系で 2 倍以上となっており、TiO₂ への電子注入量が大幅に増加していることが確認された。また、時定数を算出したところ PbS/TiO₂ 系で 500 μ s、CdS/PbS/TiO₂ 系で 2 ms であり、CdS 複合化により、TiO₂ に注入された電子の電子寿命が著しく長くなることが明らかとなった。以上のことから、PbS/CdS 複合化 QDSSC の電流値向上の要因としては、欠陥における電子のトラップの大幅な減少と電子注入量増大のためであると示唆される。

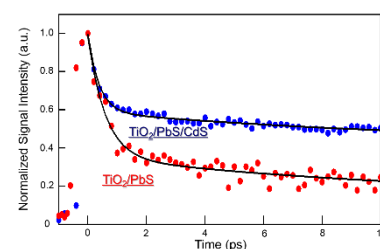


図 1 各試料における ps-TA 応答

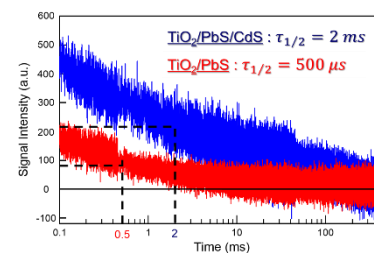


図 2 各試料における μ s-TA 応答

¹ J. Wan, Q. Shen, et al., *J. Mater. Chem. A*, 2016, Advanced article.

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 J. Chang, K. Sato, et al., *Sol. Energy*, 2015, **122**, 307.

⁵ N. Maeda, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 2013, **15**, 11006.