

PbS 量子ドットの CdCl₂ 表面修飾による蛍光効率向上と光励起 キャリアダイナミクスの変化

Enhancement of Photoluminescence Efficiency and Change in Photoexcited Carrier Dynamics in PbS QDs using CdCl₂ Surface Passivation

電通大先進理工¹、九工大²、JST CREST³

○中澤 直樹¹ 出石 拓也¹、小野 敬太¹、小林 宗右¹、Yaohong Zhang¹、Chao Ding¹、

豊田 太郎^{1,3}、早瀬修二^{2,3}、沈 青^{1,3}

Univ. Electro-commun.¹、Kyushu Inst. Tech.²、JST CREST³

Naoki Nakazawa¹、Takuya Izuishi¹、Keita Ono¹、Syuusuke Kobayashi¹、Yaohong Zhang¹、

Chao Ding¹、Taro Toyoda^{1,3}、Shuzi Hayase^{2,3}、Qing Shen^{1,3}

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

【はじめに】 量子ドット(QDs)太陽電池は、QD の特徴である多重励起生成の利用により、理論的な光電変換効率が非集光下で 44.4%と予想されている[1]。しかし現在の変換効率は約 10%程度と実用化に向けてはさらなる光電変換効率の向上が望まれている。光電変換効率を向上させるために、QDs 間でのキャリア輸送また QDs 内部の電荷分離のメカニズムおよび欠陥による影響の解明が必要不可欠である。QDs は比表面積が大きいため、表面欠陥が特に各種特性に強く影響することが考えられる。PbS QDs は太陽電池や発光デバイスに有効な材料として注目されている。PbS QDs の表面欠陥を減らすために、CdCl₂による表面パッシベーションが報告されたが[2]、それによる各種特性への影響について詳しい検討が行われなかった。今回は、CdCl₂を用いた表面欠陥パッシベーションによる PbS QDs の光吸収と発光(PL)特性、光励起キャリアの緩和ダイナミクス及び表面欠陥の変化を検討した。

【実験】 PbS QDs をホットインジェクション法[2]により作製した。PbS QDs に CdCl₂を用いて表面欠陥パッシベーションを行った[2]。パッシベーションを行った PbS QDs とパッシベーションを行っていないものに対し、絶対 PL 量子収率測定による欠陥評価、X 線回折による結晶構造の同定、光電子分光(XPS)による表面原子の定量分析、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。TA 法にはパルス幅 150 fs のチタンサファイアレーザー、励起光には 470 nm、プローブ光 775 nm を用いた。

【結果と考察】 XRD と XPS の結果から、CdCl₂パッシベーションにより、PbS QDs の結晶構造が変化しないが、PbS QDs の表面に PbCl₂ と CdS が形成されたことが分かった。Fig.1 に光吸収と PL のスペクトルを示す。CdCl₂パッシベーションにより PbS QDs の光吸収ピークの半値幅の著しい減少と共に、絶対 PL 量子収率が 24%から 59%への向上が観察された。このことから CdCl₂パッシベーションにより PbS QDs の粒径の均一化と PbCl₂ と CdS の形成による表面欠陥の減少が実現されたと考えられる。Fig.2 に溶液中に分散させた PbS QDs の TA 応答信号を示す。Cd パッシベーションしていない PbS QDs の TA 応答には、時定数が約 13 ps である速い緩和が見られた。これは光励起キャリアの表面欠陥によるトラップに対応するものだと考えられる。パッシベーションした PbS QDs の場合には光励起キャリアの早い緩和成分がなくなったため、CdCl₂パッシベーションによる表面欠陥の著しい減少が示唆される。

[1] Hanna, M. & Nozik, *J. Appl. Phys.* 100, 074510 (2006).

[2] Jiang, T. et al. *Nature materials* (2011). Doi:10.1038/nmat3118.

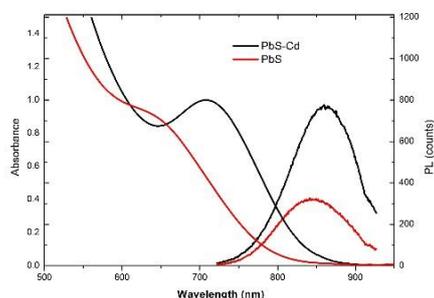


Fig.1 Absorption and PL characterization of Cd passivation PbS QDs in solution.

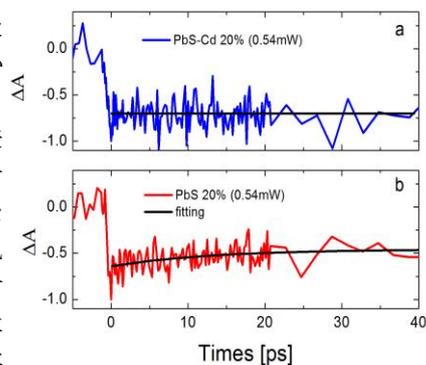


Fig.2 TA signal of (a) PbS-Cd at 775 nm and (b) PbS at 655 nm by excitation at 470 nm (0.54 mW)