

PbS 量子ドットにおける多重励起子の電荷分離速度定数の量子ドット間距離の依存性
Dependence of distance between quantum dots on charge separation rate constant of multiple excitons in PbS quantum dots

電通大基盤理工¹, 九工大², JST CREST³

○中澤 直樹¹, Jin Chang¹, 早瀬修二^{3,4}, 豊田 太郎^{1,3}, 沈 青^{1,3},

Univ. Electro-commun¹, Kyushu Inst. Tech², JST CREST³

Naoki Nakazawa¹, Jing Chan¹, Shuzi Hayase^{2,3}, Taro Toyoda^{1,3}, 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子生成(MEG)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%程度であり、実用化に向けてさらなる光電変換効率の向上が望まれている。そのために、QD 膜における多重励起子の緩和ダイナミクスに関する基礎研究は重要である。本研究では、QD 間距離の変化による多重励起子の電荷分離の速度定数の QD 間距離の依存性について検討した。

【実験】 PbS QD をホットインジェクション法[2]により作製した。ガラス基板上に PbS QD を滴下し、スピコート法により有機配位子である TGA, MPA, MHA を配位させ、量子ドット間距離を変化させた(それぞれ 0.8, 1.0, 1.5nm である)[3]。作製した試料を過渡吸収(TA)法により光励起キャリアの緩和過程の観測を行った。TA 測定では、励起光波長は 650 nm、プローブ光は QD の第一励起ピークの波長に対応する 1100 nm を用いた。

【結果と考察】

図 1 に、TGA を配位させた PbS QD 膜における TA 応答の励起光強度依存性を示す。TA 応答から、QD 内に存在するキャリア数は N である場合のキャリア寿命 τ_N を式(1): $\sum_{N=1} A_N \exp(-t/\tau_N)$ により算出した[4]。各配位子の試料における速度定数 τ_N^{-1} を表 1 に示す。量子ドット間距離が短くなるにつれ、速度定数が大きくなること分かった。特にキャリア数 $N \geq 2$ の際にも、量子ドット間が短くなるにつれ速度定数が大きくなることから、多重励起状態でも量子ドット間で電荷分離することが分かった。

次に $t = 1$ ns(量子ドット内のキャリア数 $N=1$)時の TA 信号と励起光強度の関係性を図 2 に示す。励起キャリア数の存在確率はボルツマン分布になると仮定した。このことから k :(電荷分離が起こる確率), σ :(吸収断面積), J :(光子あたりのエネルギー)とすると、TA 信号強度は、式(2): $\Delta T/T(t = 1 \text{ ns}) \propto (1 - k)(1 - \exp(-J\sigma))$ [5] によって求められる。式(2)より配位子ごとの k を求め、表 2 にまとめた。配位子が短くなるにつれ、電荷分離の確率 k が向上することが判明した。

これらの結果から、PbS QD 内で発生した多重励起子を、量子ドット間距離を変化させることで電荷分離することができることがわかった。このことから PbS QD 内で発生した多重励起子を取り出し、太陽電池などの光デバイスの特性を向上させることができると示唆される。

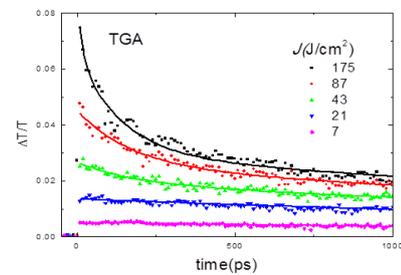


図 1 配位子 TGA を配位させた PbS QD 膜における TA 応答の励起光強度(J)依存性

表 1 配位子 TGA, MHA, MPA ごとの速度定数 τ_N^{-1}

	$\tau_1^{-1}(\text{ns}^{-1})$	$\tau_2^{-1}(\text{ns}^{-1})$	$\tau_3^{-1}(\text{ns}^{-1})$
MHA	0.07	2.2	24
MPA	0.14	2.9	26
TGA	0.30	5.1	88

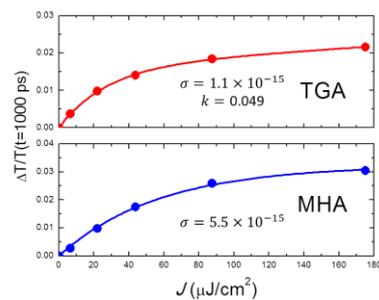


図 2 TA 信号 $\Delta T/T(t = 0)$ と励起光強度(J)依存性

表 2 配位子 TGA, MHA, MPA ごとの電荷分離確率 k

	TGA	MPA	MHA
k	0.0497	0.00491	0

[1] A. J. Nozik, *Inorg. Chem.* **44**, 6893 (2005).

[2] J. Tang, et al. *Nat. Mater.* **10**, 765(2011).

[3] V. I. Klimov, et al., *Science*, **287**, 1011 (2000).

[4] C. Jin, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**, 6358 (2017).

[5] T. Nishihara, et al., *J Phys. Chem. Lett.*, **6**, 1327 (2015).