

PbS 量子ドット膜における多重励起子の電荷分離ダイナミクス -量子ドット間距離依存性-

Dissociation dynamics of multiple excitons in PbS QD film

-Dependence of inter-quantum dot spacing-

電通大基盤理工¹, 九工大², JST CREST³

○中澤 直樹¹, Yaohong Zhang¹, 堀 奏¹ 早瀬修二^{2,3}, 豊田 太郎^{1,3}, 沈 青^{1,3}

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

Naoki Nakazawa¹, Yaohong Zhang¹, Kanae Hori¹, Shuzi Hayase^{2,3}, Taro Toyoda^{1,3}, Qing Shen^{1,3}

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

【背景・目的】 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。

【試料作製】 スピンコート法により、配位子置換を行った PbS QD 膜を作製した。用いた配位子は、メルカプトアルカン酸(MAA)である mercaptopropionic acid (3-MPA), mercaptohexanic acid (6-MHA), mercaptohexanoic acid (12-MDA), mercaptohexadecanoic acid (16-MHDA)の 4 種類を用いた。これらの配位子を QD 表面に配位させることで、QD 間距離のみが異なる QD 膜を作製することができる。3-MPA、6-MHA、12-MDA、16-MHDA によって配位した QD 間距離はそれぞれ、 $0.3(\pm 0.2)\text{nm}$, $0.8(\pm 0.4)\text{nm}$, $1.4(\pm 0.4)\text{nm}$, $2.1(\pm 0.4)\text{nm}$ である。

【結果と考察】

励起光強度を増加させ、QD 内に存在する励起子数を変化させた時の TA 応答を観測した。QD 内の最低励起準位に存在する 2、3 励起子のキャリア寿命 τ_2 と τ_3 を、subtraction procedure 法[3]により求めた。その逆数である速度定数(k_2 , k_3)と QD 間距離の依存性を図 1 に示す。QD 距離が短くなるに従い、 k_2 と k_3 がそれぞれ増加した。さらに遅延時間 1 ns における TA 信号強度の励起光強度依存性より求めた多重励起子の電荷分離確率 K を表 1 に示す。QD 間距離が短くなるにつれ、電荷分離確率 K が増加したことがわかる。以上の結果より、QD 間距離を短くすることにより、オージェ再結合よりも早く、多重励起子を電荷分離し QD 間を輸送することができることがわかった。以上の結果より、QD の特徴である MEG などにより生成した多重励起子を太陽電池などの光デバイスに利用できる可能性が示唆された。

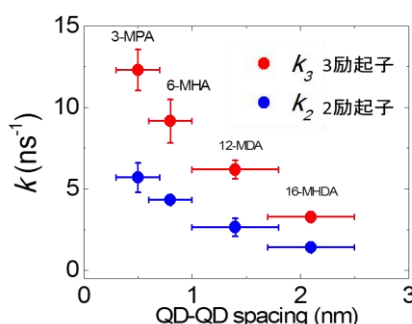


図1 QD間距離による2励起子と3励起子の緩和速度定数 k_2 と k_3 の変化

表1 MAA配位子による量子ドット間での電荷分離確率 K の変化

電荷分離確率 K	
3-MPA	$0.044(\pm 0.002)$
6-MHA	$0.023(\pm 0.003)$
12-MDA	$0.018(\pm 0.003)$
16-MHDA	-

[1] A. J. Nozik, et al., *J. C. Chem. Rev.*, **110**, 6873,(2010).

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

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