PbS 量子ドット/ZnO 太陽電池特性に対する量子ドット層熱処理の影響

Dependence of PbS QD/ZnO solar cell performance on QD layer annealing temperature

埼玉大院工[1]，東大先端研[2]，積水インテグレーテッドリサーチ[3]，東大院総合文化[4]，
高橋晃宏[1], °王海濱[2]，福田武司[3]，鎌田憲彦[1]，久保貴哉[2]，瀬川浩司[2,4]
Saitama Univ[1], RCAST UTokyo[2], Sekisui Int. Res[3], Grad. School of Arts & Sciences UTokyo[4],
Akihiro Takahashi[1], °Wang Haibin[2], Takeshi Fukuda[3], Norihiko Kamata[1], Takaya Kubo[2],
Hiroshi Segawa[2, 4]
ukubo@mail.ecc.u-tokyo.ac.jp

はじめに

PbS コロイド量子ドット/ZnO ヘテロ接合型太陽電池の光電変換特性は，量子ドット固体膜中のキャリア輸送特性の影響を強く受けるため，コロイド量子ドット組成，塗布条件，リガンド交換方法など，固体膜作製手法の確立は，一つの重要な研究課題である．最近報告された液相リガンド交換法(量子ドットインク)は，量子ドット固体膜状態でリガンド交換を行うよりも，キャリア拡散長を延伸できるなど，光電変換の高効率化に有効である[1]．しかしながら，量子ドットインクを用いた成膜過程について，未検討な点が多い．我々は，量子ドットインクを用いて太陽電池を作製する時に，量子ドット固体膜の熱処理が光電変換特性に与える影響を検討したので，その結果を報告する．

実験

オレイン酸(OA)リガンド PbS 量子ドットのオクタン溶液に，PbI_2 と $PbBr_2$ の酢酸アンモニウムを含む DMF 溶液に混合し，液相状態で OA リガンドを I^-リガンドに交換し，ブチルアミンに再分散して，量子ドットインクを調製した[1]．太陽電池は, 以下の要領で作製した. ZnO(50 nm)を F-doped SnO_2 基板上に成膜し，さらに，スピンコート法で，I^-リガンド PbS 量子ドット層(0.3 μm)を形成した．この段階で，5 種類の温度(60, 80, 100, 120, 140℃)で 10 分間，大気雰囲気で熱処理を行った．さらに，EDT リガンド PbS 量子ドット層(60 nm)と Au 電極を順次積層し，太陽電池を作製した．PbS 量子ドット固体膜の赤外吸収は CaF_2 基板上に成膜して評価した．欠陥密度や，キャリア拡散長，移動度などキャリア物性は，既報により評価した[2].

結果と考察

熱処理温度の異なる PbS 量子ドット層で作製した太陽電池の電流電圧特性を評価したとこと，短絡電流密度(J_{sc})，開放電圧(V_{oc})，曲線因子(FF)はいずれも，熱処理温度が 80℃付近まで改善し，120℃以上では，減少した(Fig. 1)．結果として，疑似太陽光照射下のエネルギー変換効率(PCE)は, 80℃熱処理で, 10.8% (V_{oc} = 0.613 V, J_{sc} = 28.0 mAcm^{-2}，FF = 0.626)に達した．

太陽電池のキャリア拡散や移動度も 80℃付近で最大になることが分かった．この時，量子ドット層の欠陥密度は，未加熱セルの半分程度の 2.6×10^{17} cm^{-3}eV^{-1} に減少した．

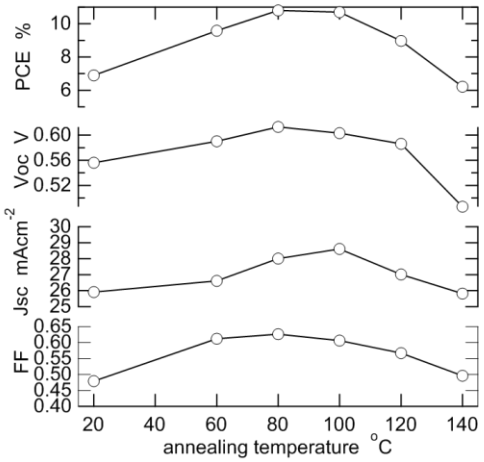

Fig. 1 Annealing temperature dependence of solar cell performance

赤外分光より明らかに，成膜直後には PbS 量子ドット固体膜中にブチルアミンが残留しており，熱処理温度の上昇と共に，残留量が減少することで，膜欠陥の低減に繋がったものと考えられる．一方，固体膜の表面 SEM 観察および AFM による表面プロファイル観察より, 熱処理温度が 80℃付近までは，緻密化し平坦性が高まるが，高温領域では，量子ドットが凝集し，微小粒界が形成されることが分かった．

以上より，熱処理による欠陥密度の減少と固体膜の緻密化がキャリア輸送を改善することと，粒界形成によるキャリア輸送の抑制が，バランスしたことで，80℃付近で光電変換特性が最大となったものと考えられる．この時，キャリア拡散長は 430 nm 程度となった．そこで，キャリア拡散長と同等の PbS 量子ドット層(430 nm)で太陽電池を作製し，11.3%の PCE を達成した．

液相リガンド交換を行ったコロイド量子ドットは, 光電変換特性の高性能化に有効であるが, 成膜条件を整えることで，さらなる高効率化が期待であることが明らかになった．

1. M. Liu *et al.*, *Nat. Mater*. **16**, 258(2017).
2. T. Fukuda *et al.*, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* **195**, 220, (2019).