

PbS/CdS 量子ドット薄膜の光励起キャリアダイナミクス

Photoexcited carrier dynamics of PbS/CdS quantum dots film

電通大基盤理工¹ ○ 小栗 直己¹, 丁 超¹, 早瀬 修二¹, 曾我部 東馬¹, 豊田 太郎¹, 沈 青¹The Univ. of Electro-Commun¹, ○ N. Oguri¹, C. Ding¹, S. Hayase¹, T. Sogabe¹, T. Toyoda¹, Q. Shen¹E-mail: oguri@jupiter.pc.uec.ac.jp

[序論] 近年、次世代型太陽電池の一つとして量子ドット太陽電池(QDSCs)が注目されている。これは、半導体量子ドット(QDs)を太陽電池の光吸収層に用いることで、多重励起子生成(MEG)が発生し、過剰エネルギーの利用が可能であるためである。これにより、QDSCs の理論光電変換効率(PCE)は 44.4%[1]と報告されており、これは Shockley-Queisser 限界[2]よりもはるかに上回っている。また、QDSCs は QDs のコロイド溶液を塗布することによって、簡便かつ安価に作製することができる。従って、QDs は非常に有用な光吸収材料として注目されている。QDSCs の研究分野の中でも、硫化鉛(PbS) QDs を用いた QDSCs は 14%[3]と高い PCE が報告されているが、先述した理論 PCE よりも低いのが現状である。この原因の一つは QDs の表面欠陥に起因する光励起キャリアの無輻射再結合である。そのため、QDs の表面欠陥を減らす表面パッシベーションが研究されているおり、PCE の向上が報告されている[4]。しかし、表面パッシベーションによる QDs の各種特性への影響は十分に解明されておらず、さらなる PCE 向上のためには光励起キャリアの挙動を解明することは不可欠である。本研究では、PbS QDs 表面に硫化カドミウム(CdS)によるパッシベーションを行い、それによる光物性や光励起キャリアダイナミクスの変化について検討した。

[実験] 陽イオン交換法によって、前駆体である PbS とオレイン酸カドミウム(CdOA₂)を反応させ、PbS/CdS コロイド量子ドット(CQDs)を作製した。QDs 薄膜はスピンコート法で作製し、配位子は 1-Ethyl-3-methylimidazolium Iodide (EMII)を用いてオレイン酸からヨウ素へと交換した。スピンコートの回数は 1、3 と 5 であり、膜厚は大体 30 nm から 150 nm まで増加させた。作製した QDs 薄膜に対して、光物性と光励起キャリアダイナミクスの評価を行った。

[結果と考察] CQDs 溶液の光吸収スペクトルから CdS をパッシベーションさせることによって、吸収ピーク位置が 251nm 短波長側に移動していることが判明した(図 1)。これにより、陽イオン交換によって PbS QDs の粒径が小さくなっていることが示唆された。また、CQDs 溶液及び異なるスピンコートの回数で作製した薄膜の光吸収スペクトルの結果から第一吸収ピークエネルギーを求めた(図 2)。この結果から CQDs 溶液から QDs 薄膜に形成した際に光吸収ピークのエネルギーが低エネルギー側にシフトしているが、膜厚に依存しないことが判明した。前者は、分子長が短い配位子へと置換したことによって QDs 間距離が減少し、量子共鳴によって QDs 薄膜における量子閉じ込め効果が減少したためだと考えられる。後者は QDs の膜厚は量子共鳴に影響しないことが判明した。本発表では、過渡吸収(TA)スペクトルと応答より QDs 間のキャリアの移動プロセスと CdS による影響について詳細に議論する。

Reference

- [1] Hanna, M. C., A. J. Nozik, *J. Appl. Phys.* **100**, 074510 (2006).
- [2] Richter, A., Hermle, M. & Glunz, S. W. *IEEE J. Photovolt.* **3**, 1184–1191 (2013).
- [3] H. I. Kim, S.-W. Baek, H. J. Cheon, S. U. Ryu, S. Lee, M.-J. Choi, K. Choi, M. Biondi, S. Hoogland, F. P. G. de Arquer, S.-K. Kwon, Y.-H. Kim, T. Park, E. H. Sargent, *Adv. Mater.* **32**, e2004985 (2020).
- [4] Lai, L., Protesescu, L., Kovalenko, M. V., Loi, M. A., *Phys. Chem. Chem. Phys.* **16**, 736–742, (2014).

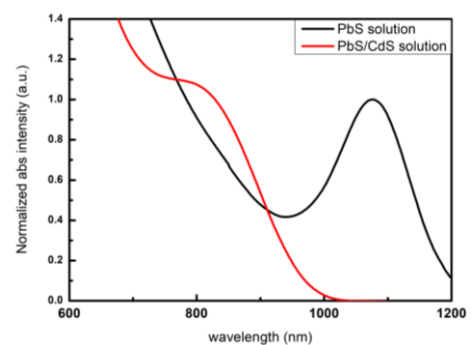


図 1. PbS 及び PbS/CdS CQDs 溶液の光吸収スペクトル

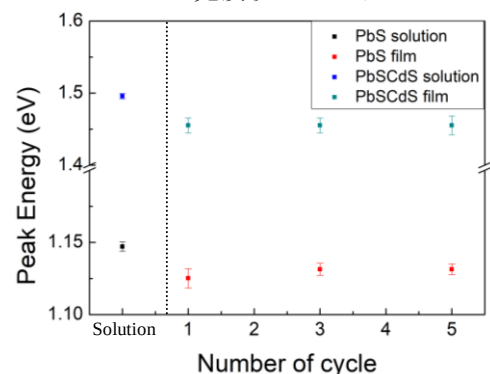


図 2. スピンコート回数に対する第一吸収ピークエネルギー