

PbS量子ドット膜の光励起キャリアダイナミクスの粒径依存性

Quantum dot size dependence of the photoexcited carrier dynamics in PbS quantum dot film

○小栗 直己, 朝倉 良太, 丁 超, 早瀬修二, 豊田 太郎, 沈青

電気通信大学基盤理工

○N. Oguri, R. Asakura, C. Ding, S. Hayase, T. Toyoda, Q. Shen

Univ. Electro-commun.

E-mail: oguri@jupiter.pc.uec.ac.jp

[序論] 近年、化石燃料の枯渇や、過度な消費による環境汚染への懸念が高まっている。このエネルギー資源の枯渇という重要な問題に対する解決策の一つとして注目されているのが再生可能エネルギーの利用である。再生可能エネルギーの中でも、特に太陽光発電はエネルギー枯渇の心配がなく、設置場所を選びやすいことから注目されている。現在、主流であるシリコン型太陽電池の理論変換効率は29.4%[1]であるが、より理論変換効率が高い(44.4%)[2]太陽電池として量子ドット(QD)太陽電池の研究が行われている。その中でPbS QDを用いた太陽電池は高い変換効率(約14%[3])が報告されているが、理論変換効率と比べると低いのが現状である。この原因として、QD膜における電荷分離、電荷輸送のプロセスがまだ詳しく解明されていないことが挙げられる。本研究ではPbS QD間距離を同一の配位子(ヨウ素)を用いる事で統一し、粒径のみを変化させ、PbS QD膜における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] ホットインジェクション法[4]を用いて、粒径の異なる4種類のPbS QD溶液を作製した。これらの溶液を用いてスピコート法を行うことによって、5層のPbS QD膜を4種類作製した。なお製膜の際にEMII(1-エチル-3-メチルイミダゾリウム=ヨージド)を滴下することによって、配位子をオレイン酸からヨウ素へと交換している。以上のように作製した試料に対して、透過電子顕微鏡(TEM)による粒径の測定と過渡吸収(TA)応答の評価を行った。

[結果と考察] PbS QDをTEM像(図1)によって観察し、それぞれのPbS QDの平均粒径はそれぞれ $d = 3.7$ nm, 3.9 nm, 4.2 nm, 4.9 nmと求められた。またPbS QD溶液の場合にオージェ再結合が発生しなかった弱い励起光強度(12.7 mJ/cm²)を用いて、PbS QD膜のTA応答を測定し、図2のように式(1)でfittingすることで光励起キャリアダイナミクスの解析を行った。解析結果をまとめた表1を参照すると、粒径の増加に伴い、量子ドット間での電荷移動過程に対応する早い緩和成分の緩和時間 τ_1 が短くなり、緩和速度定数 k_1 が増加するという系統性が見られた。以上の結果から、粒径の増加によって光励起キャリアの電荷移動速度が速くなることが判明した。この現象のメカニズムについては現在検討中である。

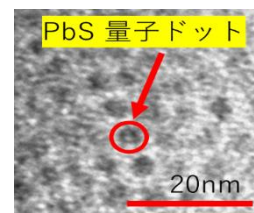


Fig. 1 TEM image of PbS QD

$$y = A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \quad (1)$$

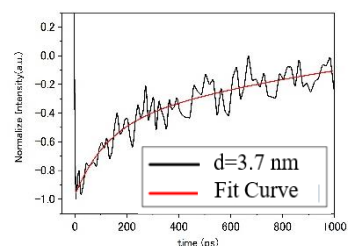


Fig. 2 TA response of PbS QD film
($d = 3.7$ nm, pump light $\lambda = 470$ nm)

Table 1 Summary of the fitting results of the TA responses with eq. (1)

QD size d (nm)	Probe light λ (nm)	A_1	τ_1 (ps)	k_1 (1/ns)	A_2	τ_2 (ps)	k_2 (1/ns)
3.7	920	0.67	234.8	4.26	0.25	1544	0.64
3.9	970	0.72	185.9	5.38	0.21	1263	0.79
4.2	1050	0.61	132.7	7.54	0.25	1546	0.64
4.9	1175	0.55	98.7	10.13	0.26	1816	0.55

- [1] Richter, A., Hermle, M. & Glunz, S. *W. IEEE J. Photovolt.* **3**, 1184–1191 (2013)
- [2] Hanna, M. C., A. J. Nozik, *J. Appl. Phys.* **100**, 074510 (2006)
- [3] E. M. Sanehira, *et al.*, *Sci. Adv.* **3**, eaao4204 (2017).
- [4] D. Vanmaekelbergh *et al.*, *NanoCrystal.*, **12**, 1152 (2005).