大连化物所观测到无机有机界面电子转移介导的三线态能量转移

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/10028.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

近日，中国科学院大连化学物理研究所光电材料动力学特区研究组研究员吴凯丰团队通过合理调控无机纳米晶表面缺陷态和无机/有机界面能级排布，结合超快时间分辨光谱技术，首次观测到无机/有机界面电子转移介导的三线态能量转移现象。

近年来，大量的研究工作表明，充分耦合无机半导体纳米晶高效的光吸收与有机分子长寿命三线态特性，构建杂化材料体系，有望在光催化合成、光动力疗法和太阳能高效转化等领域获得重要应用。实现上述耦合的物理过程是无机/有机界面三线态能量转移。然而，近期的光谱研究发现，该物理过程远比传统假设的Dexter传能机制复杂。为获得一个统一的物理图像并推动该领域发展，吴凯丰团队近期深入研究了无机/有机界面三线态能量转移动力学。在这些工作中，取决于无机纳米晶与有机分子间的能级排布，三线态能量转移或由纳米晶到分子的空穴转移介导（Nat. Commun., 2020；J. Am. Chem. Soc., 2020），或为直接的三线态激子转移（J. Am. Chem. Soc., 2019；J. Am. Chem. Soc., 2019）。

该团队意识到，在上述模型框架中尚且缺失的一个重要机制是：电子转移介导的三线态能量转移，即先发生纳米晶到分子的电子转移生成电荷分离态，再发生纳米晶到分子的空穴转移在分子中生成一个自旋平行的三线态激发态。该机制可认为是空穴转移介导机制的镜像，在原理上完全可行，但从未见诸报道。在文献中，纳米晶到分子的电子转移比空穴转移被研究得更广泛，为何不能同样地介导三线态转移?该团队推测，传统的以II-VI族为代表的纳米晶通常存在超快的空穴陷阱，该过程有可能打乱了完整的三线态激子转移。

受此启发，该团队采用具有空穴缺陷容忍性的铅卤素钙钛矿纳米晶作为三线态施主，罗丹明分子作为三线态受主，同时利用传统硫化镉纳米晶作为对照组，构建无机/有机界面模型体系。光谱动力学清晰地揭示了钙钛矿纳米晶-罗丹明体系中电子转移介导的三线态能量转移机制；而在硫化镉纳米晶中，空穴陷阱大大降低了空穴的能量，抑制了电子转移后续需要的空穴转移，从而无法完成三线态激子转移。

此外，该团队从原理上指出，电荷转移介导的三线态转移机制与传统的Dexter机制相比，对界面电子耦合强度的要求更低，因此不需要纳米晶具有很强的量子限域效应。这对于拓宽纳米晶敏化剂的适用范围具有重要实用价值，对此该团队也在单线态氧生成及光子上转换等应用中进行了展示。

上述研究成果发表于《美国化学会志》（*J. Am. Chem.*

Soc
.）。相关工作得到国家自然科学基金项目、中科院战略性先导科技专项“变革性洁净能源关键技术与示范”、辽宁省兴辽英才计划等的资助。

无机纳米晶/有机分子界面电子转移介导的三线态能量传递及其应用

研究团队单位：大连化学物理研究所

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发