
研究揭示吸热电荷分离态介导三线态能量转移机制

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/13021.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！

研究揭示吸热电荷分离态介导三线态能量转移机制。近日，中科院大连化物所研究员吴凯丰团队在无机/有机界面三线态能量转移动力学研究方面取得新进展，首次提出并在实验上论证了吸热电荷分离态介导的三线态能量转移新机制。相关研究发表在《自然—通讯》上。

无机纳米晶到有机分子的三线态能量转移（TET）是一个新兴的动力学研究领域，对基础研究和光化学应用都具有重要意义。在经典的Dexter图像中，TET通过两个电子在给受体之间的反向协同转移发生；随后发展的super—exchange模型进一步考虑了电荷转移虚态对TET电子耦合的增强作用，但其本质仍是协同的双电子TET。

吴凯丰团队在前期电荷转移介导TET的工作基础上，提出一个新机制——吸热电荷转移介导的TET。但是，由于吸热电荷分离态会通过第二步电荷转移迅速形成分子三线态，其衰退远快于形成，无法形成有效布居，光谱观测结果与双电子TET几乎一致，因此，该机制难以验证。

为此，吴凯丰团队提出采用波函数判据来区分双电子TET与吸热电荷转移介导TET。前者速率正比于纳米晶与分子的电子和空穴波函数耦合项的乘积，而后者速率主要取决于第一步吸热电荷转移涉及的电子或空穴波函数耦合项。

该团队设计合成了一系列不同壳层厚度的硒化镉/硫化锌核壳纳米晶，通过硫化锌层的厚度定量调控隧穿到纳米晶表面的电子和空穴波函数，同时保持电荷与能量转移驱动力不变。光谱研究表明，在纳米晶到表面受体TET过程中，光谱上并未观测到电荷分离态的信号，似乎为双电子TET，但测得的TET速率却正比于纳米晶表面的空穴概率密度而不是电子与空穴概率密度乘积，符合吸热空穴转移介导的TET机制。温度依赖的速率测量和模型计算进一步验证了吸热空穴转移介导的物理机制。

此外，由于其独特的电子耦合机制，吸热电荷转移介导的TET对给受体距离的依赖性远弱于协同的双电子TET，因而有望实现超长距离的三线态敏化。该工作首次通过巧妙的波函数判据，揭示了不可见的吸热电荷分离态介导的TET，拓展了对TET机制的认知，对长距离三线态敏化及其应用具有重要指导意义。（来源：中国科学报卜叶 赖润晨）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41467-021-21561-1>

版权声明：凡本网注明来源：中国科学报、科学网、科学新闻杂志的所有作品，网站转载，请在

正文上方注明来源和作者，且不得对内容作实质性改动；微信公众号、头条号等新媒体平台，转载请联系授权。邮箱：shouquan@stimes.cn。
作者：吴凯丰等 来源：《自然—通讯》

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](http://www.iikx.com)转发