

应变工程除缺陷，延长寿命好策略

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/14503.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！

应变工程除缺陷，延长寿命好策略。

2021年6月22日，北京师范大学龙闰教授和方维海院士课题组在J. Am. Chem.

Soc.上发表了一篇题为Elimination of Charge Recombination Centers in Metal Halide Perovskites by Strain的新研究，他们发现压缩和拉伸应变能分别钝化碘填隙（Ii）和甲胺替代碘（MAI）缺陷，从而抑制非辐射电子-空穴复合，提升钙钛矿光电性质。

太阳能的有效利用是解决能源危机和环境问题的重要途径之一。有机-无机杂化钙钛矿太阳能电池的光电转换效率高达26.2%，是太阳能电池领域的明日之星，对其研究如火如荼。然而，即使是传统的MAPbI₃（MA=CH₃NH₃⁺）中最基本的光物理过程也还未完全弄清楚，阻碍了钙钛矿太阳能电池性能的提升。

龙闰教授和方维海院士课题组曾系统地研究了晶界及钝化、氧气、碱金属、路易斯酸碱、掺杂等多种因素对钙钛矿激发态动力学的影响（J. Am. Chem. Soc. 2016, 138, 3884; ibid 2017, 139, 17327; ibid 2019, 141, 5798; ibid 141, 1557; ibid 142, 14664; Angew Chem. 2020, 59, 4684; ibid 59, 13347; ACS Energy Lett. 2018, 3, 2020, 2076; ibid 2020, 5, 3813），建立了这些现象的深层次物理机制，并提出了逆向设计策略，调控弹性和非弹性电声散射，达到延缓非辐射电荷和能量损失的目的。

相比上述众多化学修饰方法，物理手段调控钙钛矿激发态寿命的研究相对较少，实验现象也难于理解。例如，实验表明MAPbI₃在压缩和拉伸应变下，激发态寿命都有不同程度的增加，然而，其物理机制不甚清楚。

针对这一迷思和关键科学问题，龙闰教授和方维海院士课题组利用含时密度泛函理论结合非绝热分子动力学模拟，研究了压缩和拉伸应变与MAPbI₃中缺陷相互作用的电子结构和激发态动力学，发现压缩和拉伸应变能分别钝化碘填隙（Ii）和甲胺替代碘（MAI）缺陷，从而抑制非辐射电子-空穴复合，提升钙钛矿光电性质。

研究表明，压缩应变破坏了碘填隙（Ii）形成的碘二聚体，消除了Ii形成的空穴捕获态，并且使得构成MAPbI₃价带顶的Pb-s和I-p轨道耦合增强，价带顶能量升高，Ii缺陷态移动到价带内。拉伸应变使构成钙钛矿导带底的Pb-p轨道之间的耦合减弱，导带底能量降低，由甲胺替代碘缺陷（MAI）引入的靠近导带底的空穴捕获态融入导带内，图1。因此，非辐射电子-空穴复合发生在导带底和价带顶之间。

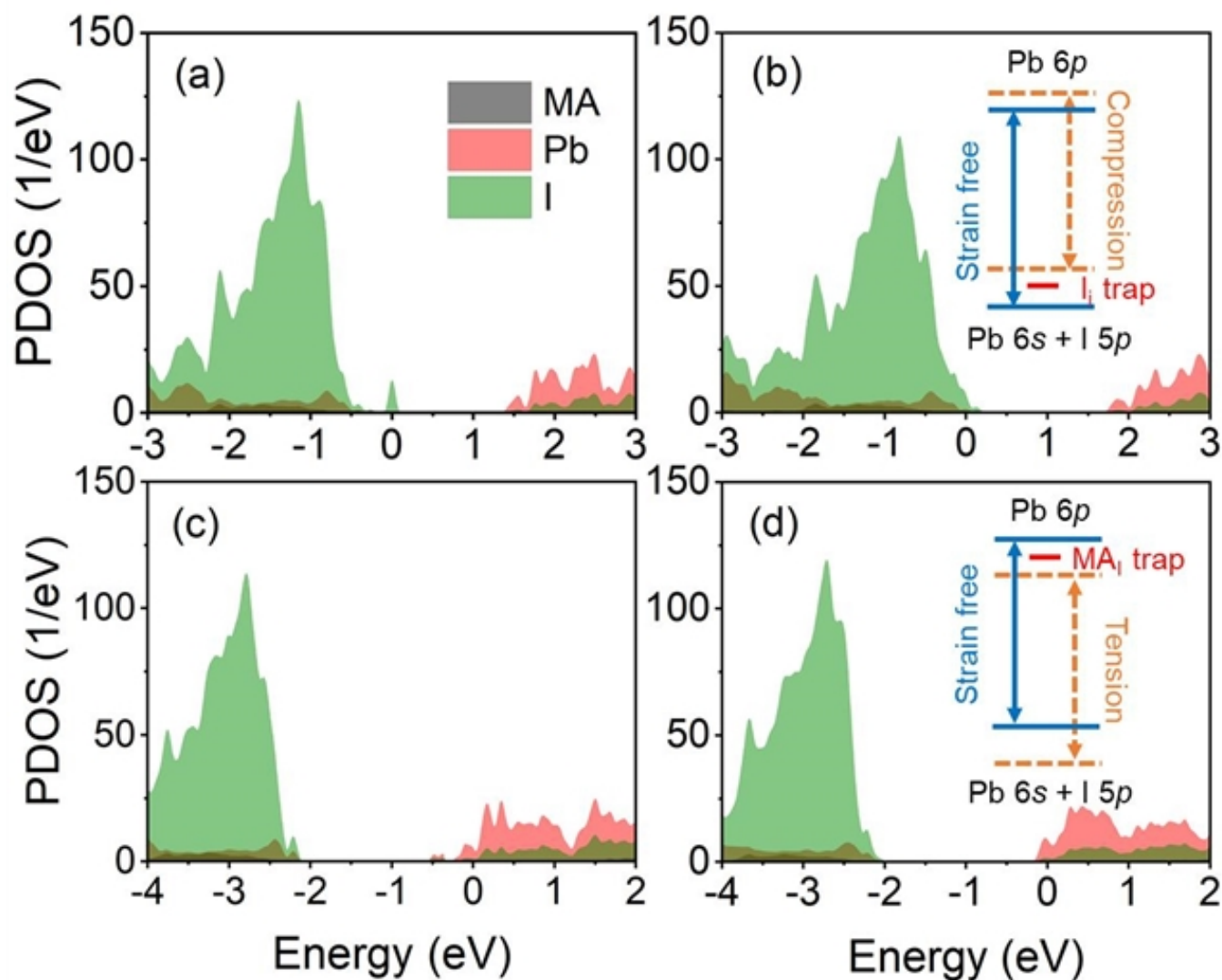


图1. MAPbI₃含(a) Ii及(c) MAI缺陷无应变和(b) 压缩及(d) 拉伸应变下的电子结构。

两种应变均引起MAPbI₃几何结构轻微畸变，降低了电子-空穴波函数重叠，减小了非绝热耦合，激活了更多的声子振动模式，加快了退相干过程，从而延长了载流子寿命。而无应变情形下，MAPbI₃电子空穴-复合经由空穴捕获态协助，非辐射电子-空穴复合加快，激发态寿命降低 (J. Am. Chem. Soc. 2021, <https://doi.org/10.1021/jacs.1c04442>)，图2。

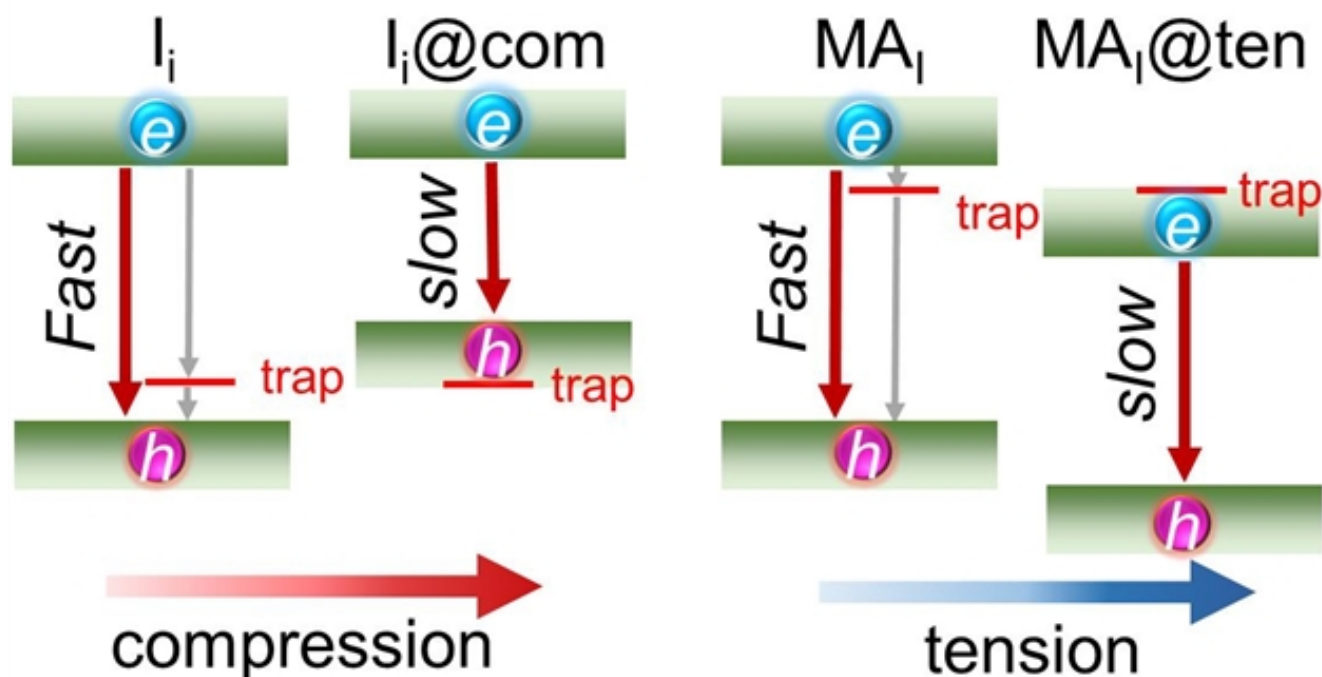


图2.压缩和拉伸应变钝化缺陷，抑制非辐射电子-空穴复合。

压一压，拉一拉，除缺陷，延寿命。该工作独辟蹊径，建立了压缩及拉伸应变延长钙钛矿光生载流子寿命的机理，加深了人们对钙钛矿光物理过程的理解。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/jacs.1c04442>

作者：龙闰等 来源：《美国化学会志》

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](https://www.iikx.com)转发