

# 湖北大学实现异稀土配合物溶液高效上转换发光

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/15747.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！**

湖北大学实现异稀土配合物溶液高效上转换发光。定向设计上转换发光（UCL）稀土配合物将可能克服稀土纳米粒子表面淬灭效应并有助于在应用环节实现可控制备，是潜在的未来深度生物成像及诊疗的分子基材料。其中，如何获得溶解性良好并兼有高发光量子产率（ $\Phi_{UC}$ ）的离散型异稀土低核簇合物是该研究的前沿阵地。

日前，湖北大学化学与化工学院徐海兵教授和曾明华教授通过能级匹配的不同稀土光敏剂(S)和激活剂(A)砌块，利用桥联配体的多重配位模式拉近二者的距离、调节二者配比，进而通过氟离子降低非辐射跃迁并调控激发光子在上转换（UC）与下转换（DL）过程的竞争，在低功率密度（ $P = 2$  W/cm<sup>2</sup>）下，将离散型稀土配合物在室温非氘化溶液中的 $\Phi_{UC}$ 较文献纪录值提高了20倍。

相关研究成果以Discrete Heteropolynuclear Yb/Er Assemblies: Switching on Molecular Upconversion under Mild Conditions为题，于2021年8月12日发表在Angew. Chem. Int. Ed.上。湖北大学化学与化工学院硕士生王杰和蒋悦为本文并列第一作者。

由于直接与LnIII配位的有机配体以及与之接触的溶剂分子的高能XH（X = C, N, O）振动极易淬灭LnIII激发态能量，同时稀土的吸收截面（ $\sigma_{abs}$ ）低，导致溶液体系UCL稀土配合物研究进展缓慢。自2011年首次报道以来，即使在氘化溶剂、低温（低至4 K）、高P（甚至8.1 kW/cm<sup>2</sup>）等严苛条件下，已知的十几例稀土配合物 $\Phi_{UC}$ 仍不超过0.1%。

高效稀土UCL体系的实现取决于敏化剂(S)与激活剂(A)之间的能量传递效率（ $\eta$ ）。构筑UCL异稀土配合物不仅要匹配S和A的能级，拉近二者的距离、并调节二者配比，饱和稀土离子的配位数，还要精细调控激发光子跃迁途径以及激发光子在UC与DL之间的竞争。这是一个基于构效与能量传递精准关联的综合性的挑战。

在本研究中，利用三齿H<sub>2</sub>hmq配体的（ $\mu$ -2,3-phenoxo）多重配位模式组装能级匹配的异稀土砌块，控制二者距离在3.7 Å内，进而调节二者比例，提升S→A的 $\eta$ ，进而通过多个能级匹配的S增强A在近红外区的 $\sigma_{abs}$ 。甚至引入氟离子限制LnIII周围的低能非辐射能量消耗，首次在 $P = 0.288$  W/cm<sup>2</sup>低激发下，于室温有机溶剂中观察到1 ([Yb<sub>2</sub>Er]<sup>+</sup>) 在有机溶剂中的UCL信号。在 $P = 2$  W/cm<sup>2</sup>，氟离子协助下，其室温甲苯中的 $\Phi_{UC}$ 达到了最高创纪录的2.29% (Red-PM) / 2.78% (NIR-PMT)。

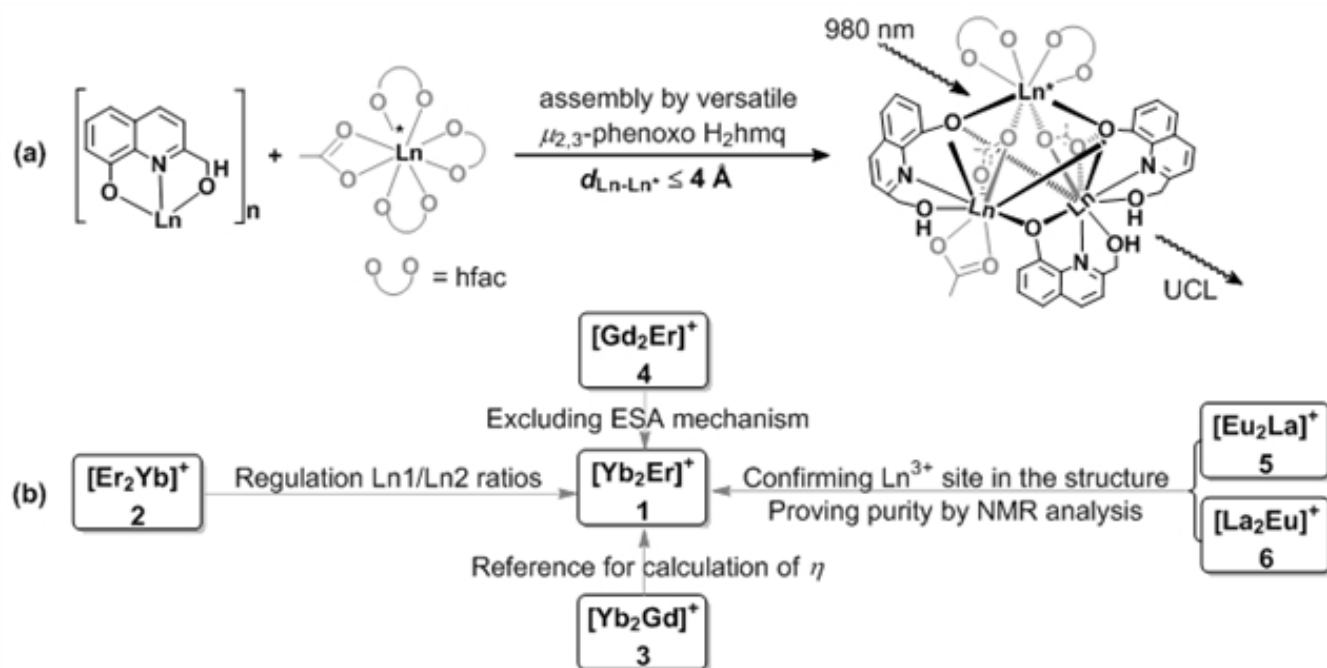


图1：异稀土配合物合成策略(a) 及其相关关系(b)。

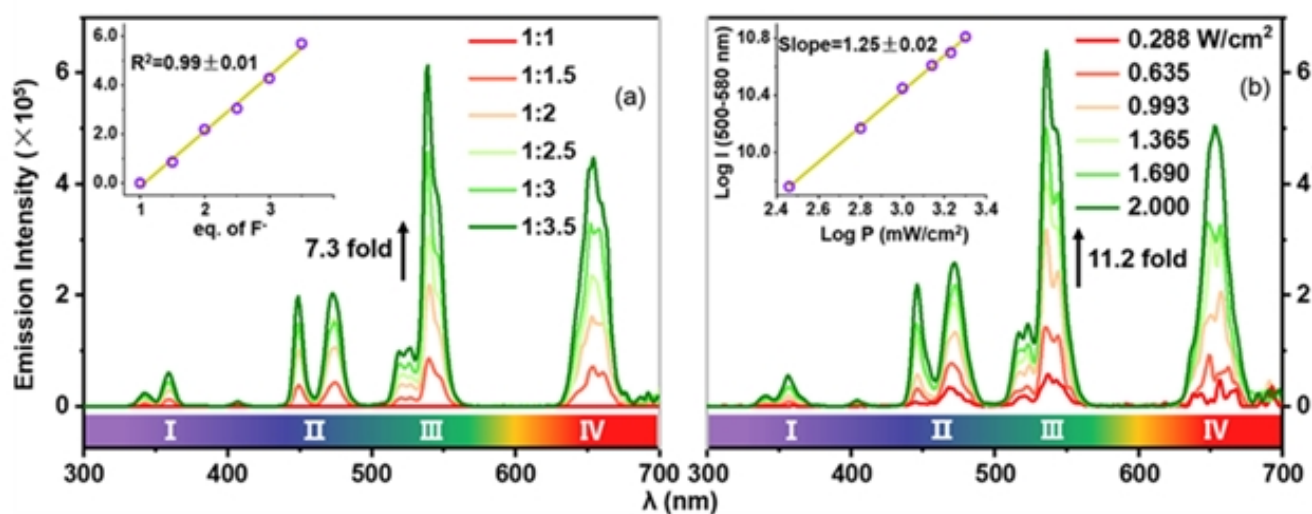


图2：在980 nm激发下，1在CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> (2 × 10<sup>-4</sup> M)中(a)依赖于[Bu<sub>4</sub>N]F的量的UCL(2 W/cm<sup>2</sup>；545 nm处)强度变化；以及(b)引入3.5当量的[Bu<sub>4</sub>N]F时的UCL强度对P的依赖关系。

综上所述，通过能级匹配的不同稀土砌块利用桥联配体的多重配位模式组装，可获得结构明确，S和A距离及摩尔比可调的异稀土配合物，综合优化条件调节线性衰减与上转换之间的竞争，为设计条件温和、常规溶液、低功率激发的高效ΦUC稀土配合物分子UCL材料提供了新思路。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1002/anie.202107637>

---

作者：曾明华等 来源：《德国应用化学》

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