

福建物构所等调控局域电子结构实现稀土掺杂双钙钛矿高效近红外发光

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/20481.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！

福建物构所等调控局域电子结构实现稀土掺杂双钙钛矿高效近红外发光

。近年来，无铅金属卤化物双钙钛矿 $\text{Cs}_2\text{Na}(\text{Ag})\text{InCl}_6$ 材料因组份易调控、合成简便及毒性低等特性，而备受关注，在照明显示、光电探测及光伏等领域表现出广阔的应用潜力。目前，该材料的研究主要局限在可见光波段，近红外（NIR）波段存在发光效率低的瓶颈，制约进一步的应用开发。

$\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6$ 中引入稀土离子 Yb^{3+} 和 Er^{3+} 作为近红外发光中心，实现高效近红外发光（图1）。

$\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 的最佳量子产率为39.4%，相比 $\text{Cs}_2\text{AgInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 材料提升了1

42.2倍。科研团队通过第

一性原理计算和Bader电荷分析，对比研究了 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 和 $\text{Cs}_2\text{AgInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$

两种材料的局域电子结构（图2）。Bader电荷分析是一种通过将材料的总电荷分解到原子电荷，得到原子周围电子数，进而计算出原子化合价的方法。该方法应用于材料的电荷特性分析，判断材料内电荷传输过程。研究表明， $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 中 Na^+

离子的强离子性使其几乎完全电离，导致

相邻的 $[\text{YbCl}_6]$ 八面体电荷显著局域化，促进了 $\text{Cl}^- - \text{Yb}^{3+}$ 的荷移跃迁。而 $\text{Cs}_2\text{AgInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 中的 Ag^+ 由于强共价性形成 $\text{Ag}-$

Cl 共价键，使相邻的 $[\text{YbCl}_6]$ 八面体中 Cl^- 的电子波函数向 Ag^+ 离域，导致 Cl^- 与 Yb^{3+} 波函数交叠减小，从而抑制了 $\text{Cl}^- - \text{Yb}^{3+}$ 荷移跃迁过程。

该研究利用温度依赖的稳态和瞬态

荧光光谱等手段，观察到 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 中 Yb^{3+} 的激发峰相对于基

质自限激子的激发峰存在明显偏移（

图3）。在低温下， $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 通过紫外激发，在近紫外-可见光区观察到两个发射峰，波数差约为9766

cm^{-1} ，对应于荷移跃迁带（CTB） $\rightarrow {}^2\text{F}_{7/2}$ 和 ${}^2\text{F}_{5/2}$

跃迁。以上证据证实了在 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 中的高效近红外发射来源于其独特的 $\text{Cl}^--\text{Yb}^{3+}$ 荷移跃迁敏化过程。

科研团队通过共掺其他近红外发光离子如 Er^{3+} ，实现了 $\text{Cl}^--\text{Yb}^{3+}$ 荷移跃迁敏化的 Er^{3+} 离子1540 nm处的近红外发射（图4）。相比于 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}/\text{Er}^{3+}$ 中常规的自限激子敏化，其发射强度增强了1510.2倍，最佳量子产率为7.9%。

该研究为实现高效的稀土掺杂近红外发光无铅金属卤化物双钙钛矿开辟了新途径，有望应用于近红外光通讯、发光二极管和夜视成像等领域。相关研究成果发表在《先进科学》（Advanced Science）上。研究工作得到中科院创新团队国际合作伙伴计划和国家自然科学基金等的支持。

[论文链接](#)

图1. $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Ln}^{3+}$ ($\text{Ln} = \text{Yb}$ 和 Er)双钙钛矿高效近红外发光及发光机理示意图。

图2. (a) $\text{Cs}_2\text{AgInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$

的Bader电荷分析, (b) 电子局域密度和 (c) 结构示意图; (d) $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 的Bader电荷分析, (e) 电子局域密度和 (f) 结构示意图。

图3. 温度依赖的 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6$

基质的 (a) 激发光谱和 (b) 发射光谱;

温度依赖的 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 的 (c) 激发光谱和 (d) 发射光谱; (e) 10 K下, $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}$ 的发射光谱; (f) 在 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6$ 材料中, Yb^{3+} 离子的电子跃迁示意图。

图4. 不同浓度 Yb^{3+} 和 Er^{3+} 掺杂的 $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6$

的 (a) 激发谱和 (b) 发射谱; $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:6.9\%\text{Yb}^{3+}/\text{Er}^{3+}$ 在不同 Er^{3+} 掺杂浓度下, (c) Yb^{3+} 和 Er^{3+} 的积分发射强度, 以及 (d) 994 nm 和 (e) 1540 nm 发射处的荧光寿命; (f) $\text{Cs}_2\text{NaInCl}_6:\text{Yb}^{3+}/\text{Er}^{3+}$ 中的能量传递示意图。

研究团队单位: 福建物质结构研究所

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](https://www.iikx.com)转发