

“声子管理”调控锡铅钙钛矿载流子动力学

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/25012.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！

“声子管理”调控锡铅钙钛矿载流子动力学。来自英国剑桥大学卡文迪许实验室的团队提出了锡铅钙钛矿中的声子能级管理，从而实现了电声耦合和热声子瓶颈效应的调控。此外，该工作证明钝化缺陷不仅减缓热载流子驰豫，还会降低载流子热化过程中的能量损失速率。此成果为调控非平衡态动力学提供了新思路，并为实现钙钛矿热载流子电池提出了理论支持。

研究背景

热载流子通过电声耦合的能量耗散驰豫过程是制约太阳能电池效率的主要因素，完整提取驰豫过程对应的能量将使光伏器件的理论效率极限从33%（传统Shockley-Queisser极限）翻倍为66%。研究超快时间尺度的载流子和声子动力学是理解并克服半导体器件中热载流子能量损失的主要途径。

创新研究

亚皮秒的驰豫时间尺度使得在能量损耗过程前提取并利用热载流子能量极度困难，减慢热载流子驰豫过程是更大程度利用光生载流子能量的核心难点。为了解决上述难题，本文团队合成了全系列的锡铅合金钙钛矿组分，并通过调节锡铅比例实现了声子能级的调控。图1展示了所研究对象和物理过程的概念示意图，其中，过程①、②、③对应了载流子和声子的驰豫过程，阻隔其中任何一个过程均有可能实现热载流子在高能级寿命的延长。例如，若过程②被阻断，声学声子的非平衡态分布可能诱发声学声子的上转化（即逆向过程③），所形成非平衡态分布的光学声子进而可以将能量传递回载流子（即逆向过程①），从而实现光学声子对载流子的加热。

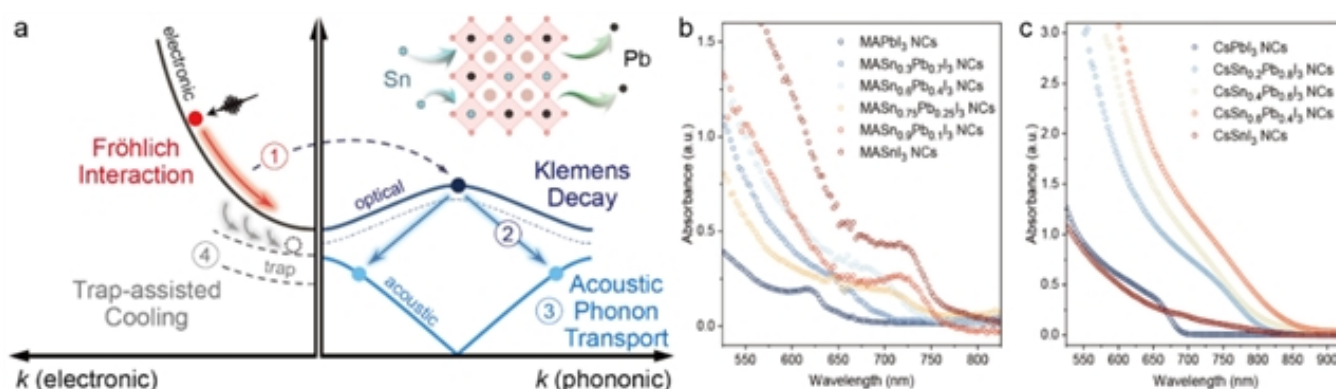


图1 (a) 动力学过程示意图 (b) 有机无机杂化锡铅钙钛矿 (c) 无机锡铅钙钛矿

瞬态吸收动力学角度，上述动态平衡过程表现为在高光强下出现的热声子瓶颈效应。处于非热平衡态的光生热载流子首先在约百飞秒的时间尺度通过载流子之间的碰撞完成热化过程，同时在电子和空穴之间分别形成热平衡状态。由于此时载流子温度大于晶格温度，热载流子会通过载流子-声子耦合将能量传递给光学声子，而后光学声子将与声学声子耦合传递能量。最终载流子将弛豫至带隙边缘，与晶格之间达到热平衡。图2表明，在低光强下，载流子温度在1皮秒的时间尺度与晶格达到热平衡，然而在高光强下，由于出现热声子瓶颈效应，载流子在10皮秒的时间尺度才完成与晶格的热平衡。同时，锡元素对铅元素的替代可以增高光学声子支的能量，进一步实现载流子能量损失速率的降低。

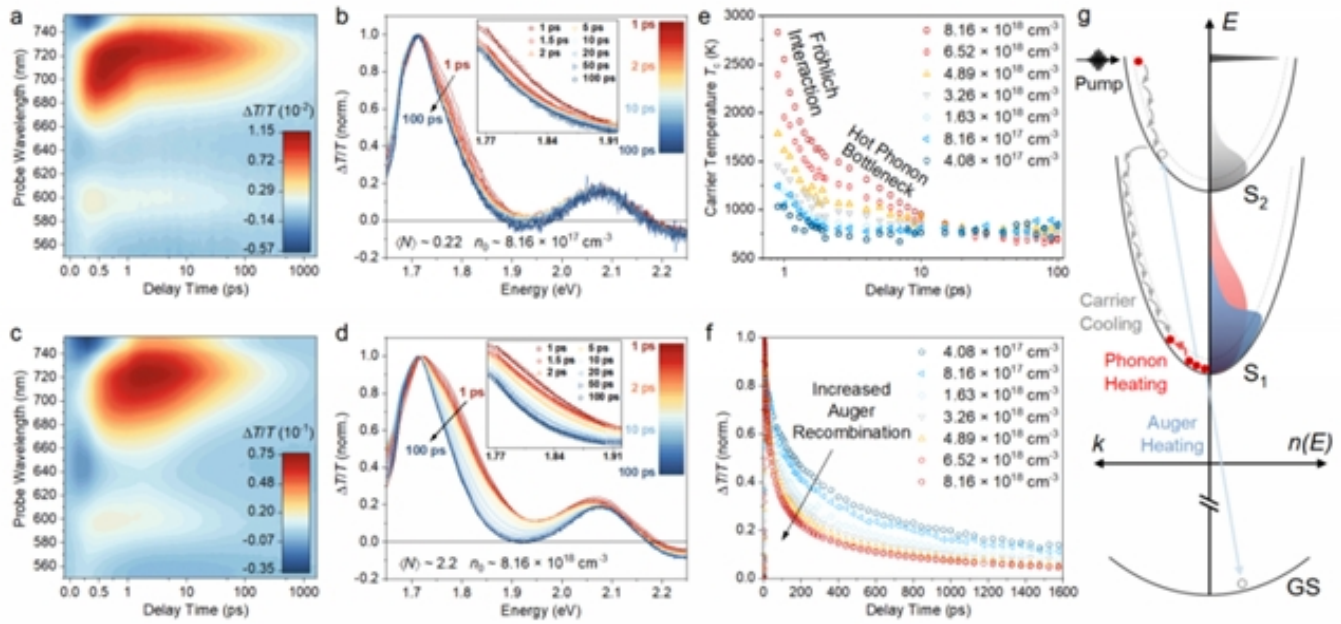
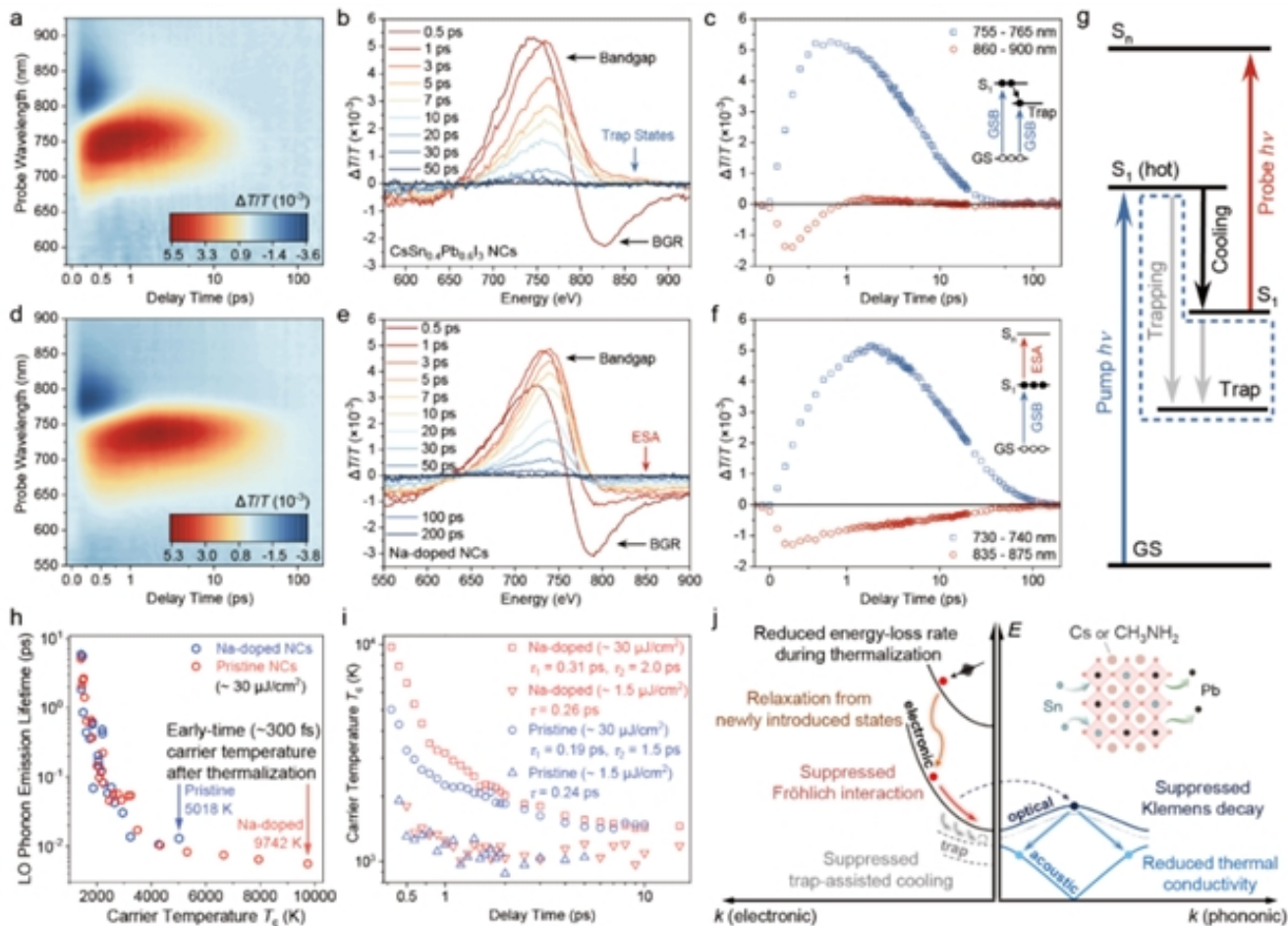


图2 MASnI₃纳米晶的热声子瓶颈。(a,b) 低光强下的瞬态光谱 (c,d)高光强下的瞬态光谱 (e)载流子温度 (f)瞬态动力学 (g)机理示意图



图片图3 纯无机锡铅钙钛矿纳米晶载流子动力学。(a,b,c) 对照样品的瞬态吸收动力学 (d,e,f) 缺陷钝化样品的瞬态吸收动力学 (g) 机理示意图 (h,i) 声子寿命和载流子温度 (j) 完整机理示意图

实验还通过钝化纯无机锡铅钙钛矿中的缺陷态，从而研究了缺陷态对载流子热化过程的影响。图3分别展示了对照组（多缺陷态）和实验组（缺陷钝化）的瞬态动力学，缺陷被钝化后，瞬态吸收光谱在缺陷态吸收的漂白峰变为了本征的激发态吸收的信号，并且在300飞秒时刻缺陷态少的样品呈现出更高的载流子温度，实验证明了热化过程中对缺陷态去耦合的实现。

展望

本文所展示的声子管理对钙钛矿热载流子寿命的调节具有普适性，并实验证明了钝化缺陷对减少热化和弛豫过程能量损失速率的实用性，有望为突破SQ极限的热载流子太阳能电池领域带来创新解决方案。

该文章发表在国际顶尖学术期刊《Light: Science Applications》，题为Thermalization and relaxation mediated by phonon management in tin-lead perovskites，Linjie Dai为本文的第一作者，Neil C. Greenham为本文的通讯作者。（来源：LightScienceApplications微信公众号）

相关论文信息：<https://www.nature.com/articles/s41377-023-01236-w> 特别声明：本文转载仅仅是出于传播信息的需要，并不意味着代表本网站观点或证实其内容的真实性；如其他媒体、网站或

个人从本网站转载使用，须保留本网站注明的“来源”，并自负版权等法律责任；作者如果不希望被转载或者联系转载稿费事宜，请与我们联系。

作者：Neil C. Greenham 来源：《光：科学与应用》

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