
大连化物所纳米晶热载流子弛豫动力学研究取得新进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/5046.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！

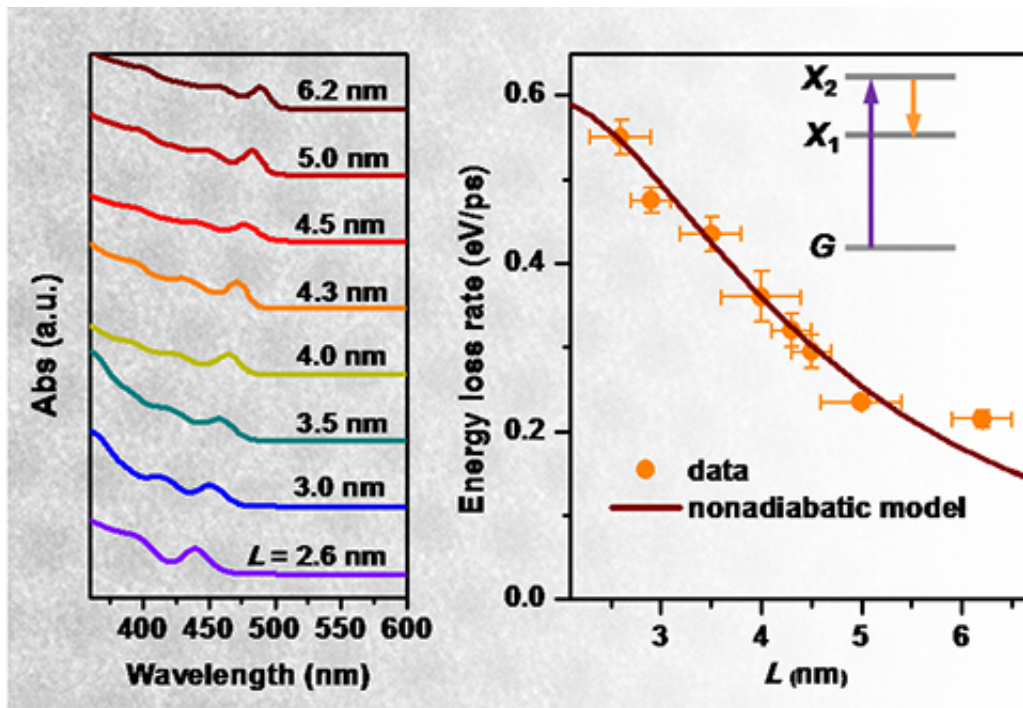
大连化物所纳米晶热载流子弛豫动力学研究取得新进展。近日，中国科学院大连化学物理研究所光电材料动力学特区研究组研究员吴凯丰团队采用飞秒瞬态光谱技术系统地研究了量子限域的钙钛矿纳米晶的热载流子弛豫动力学，发现该体系呈现出亚皮秒级别的热载流子寿命与之前理论预测的“声子瓶颈”机制不符，进一步研究发现热载流子能量耗散通道由表面配体分子诱导的非绝热弛豫机制所主导。相关成果发表于《化学科学》(Chemical Science)上。

半导体中的光生载流子在与晶格(声子)碰撞弛豫之前，具有显著高于带边的能量，通常被称为热载流子。热载流子的应用可使光伏器件的效率突破Shockley-Queisser极限，理论上可达到66%。然而，由于常见半导体中光生载流子与声子间的散射发生于亚皮秒级别，热电子的提取极为困难。有鉴于此，科学家们对可能产生长寿命热载流子的各种机制进行了长期的探索。其中，半导体纳米晶(或称量子点)被预测具有长寿命的热载流子，原因在于量子限域效应使得纳米晶出现类原子的分立能级，这些能级间的能量差异高达几百meV，使得热载流子很难通过发射声子的形式进行弛豫，被称为“声子瓶颈”现象。此外，近期也有报道称钙钛矿光伏材料具有长寿命的热载流子，因为这类材料“动态”的晶格结构可导致极化子的形成，从而屏蔽热载流子与声子间的散射。然而这一现象的存在与否尚存较大争议。

在该工作中，研究团队合成了一系列量子限域的CsPbBr₃钙钛矿纳米晶，其中最小尺寸为2.6nm，是目前文献报道限域效应最强的钙钛矿纳米晶。科研人员采用态-态选择激发的飞秒瞬态光谱，测定了不同尺寸纳米晶中从第二到第一激发态的热载流子弛豫时间，发现均处于亚皮秒量级，并未出现理论预测的“声子瓶颈”现象；采用变温和表面配体交换的实验，也排除了多声子发射和能量转移等机制作为主要能量耗散通道的可能。研究团队提出该体系的热载流子弛豫可能由表面配体诱导的非绝热跃迁机制所主导，并通过纳米晶表面波函数计算进行了印证。具体而言，量子限域效应使得纳米晶的电子波函数强烈地离域至纳米晶表面，与表面配体分子的核运动发生非绝热作用，从而诱导热载流子在不同能级间的弛豫。纳米晶尺寸越小，电子波函数在表面的幅度越大，与配体分子的非绝热作用越强，从而导致越快的热载流子能量耗散速率，这与实验所测数据十分吻合。

该工作首次研究了量子限域效应对钙钛矿纳米晶热载流子弛豫动力学的影响，揭示了非绝热弛豫机制在其中的主导作用。同时，该工作也表明钙钛矿材料虽然表现出优异的光伏性能，但在热载流子应用领域相比常见半导体材料并无明显优势，这对钙钛矿光伏器件具有指导意义。

该工作得到中科院战略性先导项目、国家重点研发计划、国家自然科学基金等的资助。



大连化物所纳米晶热载流子弛豫动力学研究取得新进展

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