
大连化物所揭示钙钛矿量子点激子复合与自旋弛豫的定标规律

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/9907.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！

近日，中国科学院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室光电材料动力学创新特区研究组研究员吴凯丰团队采用飞秒瞬态光谱技术，系统地研究了钙钛矿量子点体系的激子复合与自旋动力学，揭示了量子点尺寸与组分对俄歇复合和自旋弛豫寿命的影响，并基于光学斯塔克效应实现了对自旋态能量的操纵，对理解钙钛矿量子点的基本光物理及其在光电和量子器件方面的应用具有重要意义。

铅卤素钙钛矿材料在光电器件领域展现了极大的应用前景，基于钙钛矿的纳米晶材料也在近期被广泛研究。文献中经常笼统地将钙钛矿纳米晶称为量子点（QD），而这些纳米晶的尺寸通常在10 nm左右，大于材料的波尔激子直径。严格意义上，小于波尔激子直径的强限域纳米晶才能称为量子点。在强限域区间，QD表现出很多新奇的光物理性质，比如尺寸可调的吸收和发射谱、显著增强的多激子俄歇复合及其逆过程（多激子产生）、丰富的带边精细能级以及强烈离域到表面的载流子波函数等。吴凯丰团队在国际上较早开展强限域钙钛矿QD的光物理和光化学动力学研究，揭示了波函数离域增强的界面三线态能量转移（[Nat. Commun.](#)，2020；[J. Am. Chem. Soc.](#)，2019）及热激子非绝热弛豫（[Chem. Sci.](#)，2019）等现象。

在近期工作中，该团队基于尺寸及组分可调的一系列铅卤素钙钛矿QD样品，系统研究了钙钛矿QD的双激子俄歇复合动力学。作为一种超快的非辐射复合方式，俄歇复合对于QD在激光器、发光二极管及光伏器件中的应用具有重要影响。因此，有必要测量和理解钙钛矿QD的俄歇复合动力学。该团队研究发现，钙钛矿QD的俄歇寿命呈现出对QD体积的线性依赖关系，且俄歇寿命与A位阳离子组分基本无关，但对阴离子组分敏感依赖。此外，所有钙钛矿QD的俄歇寿命都显著短于传统的CdSe和PbSe等QD材料。该团队基于带间跃迁几率和能带结构等物理参数对观测到的寿命规律给出了半定量解释。这些俄歇寿命的定标规律（scaling law）为钙钛矿QD的器件应用提供了重要的参考价值。

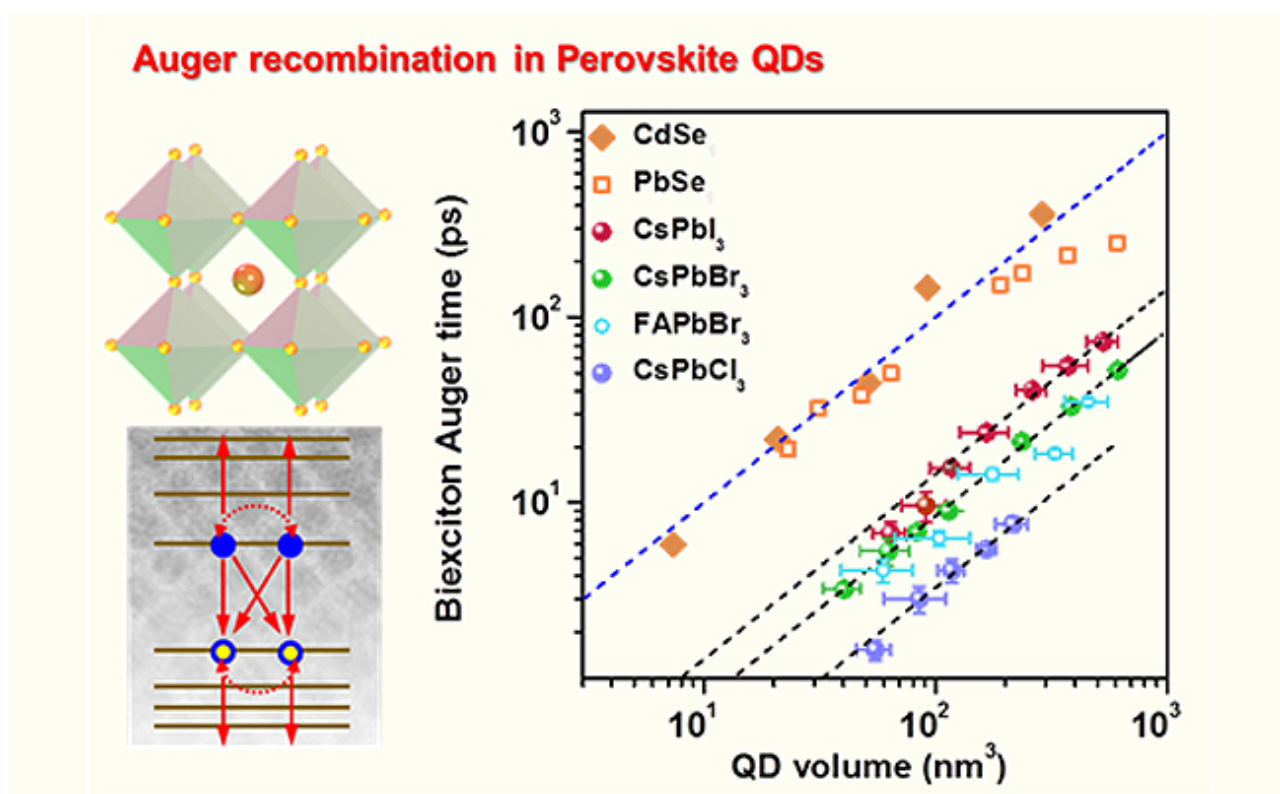
铅卤素钙钛矿除了应用于光电器件以外，在自旋电子学和量子信息学领域也有重要的基础研究价值。这是因为铅元素导致强烈的自旋-轨道耦合，特别适合通过光学手段注入自旋并进行自旋相关性质的操纵。然而，自旋-轨道耦合在另一方面也导致快速的自旋翻转，限制了光生载流子的自旋寿命。该团队提出，强限域的钙钛矿QD具有离散的带边能级，有可能通过抑制声子散射的方式延长自旋寿命。该团队采用圆偏振飞秒泵浦光共振激发自旋（或准自旋）量子态，并利用具有相同或相反圆偏振的飞秒光探测量子态信号的衰退或增长，以此获得自旋翻转动力学。研究结果表明，虽然量子限域可在一定程度抑制声子散射机制，但QD中存在着纳米尺寸诱导的超快自旋弛豫机制。这些机制包括电子-空穴交换作用，表面散射以及自旋与表面悬键自旋相互作用导

致的自旋翻转等，且在不同材料中存在普适性的尺寸依赖规律。这些物理规律为钙钛矿QD在自旋相关领域的应用提供了重要的研究基础。

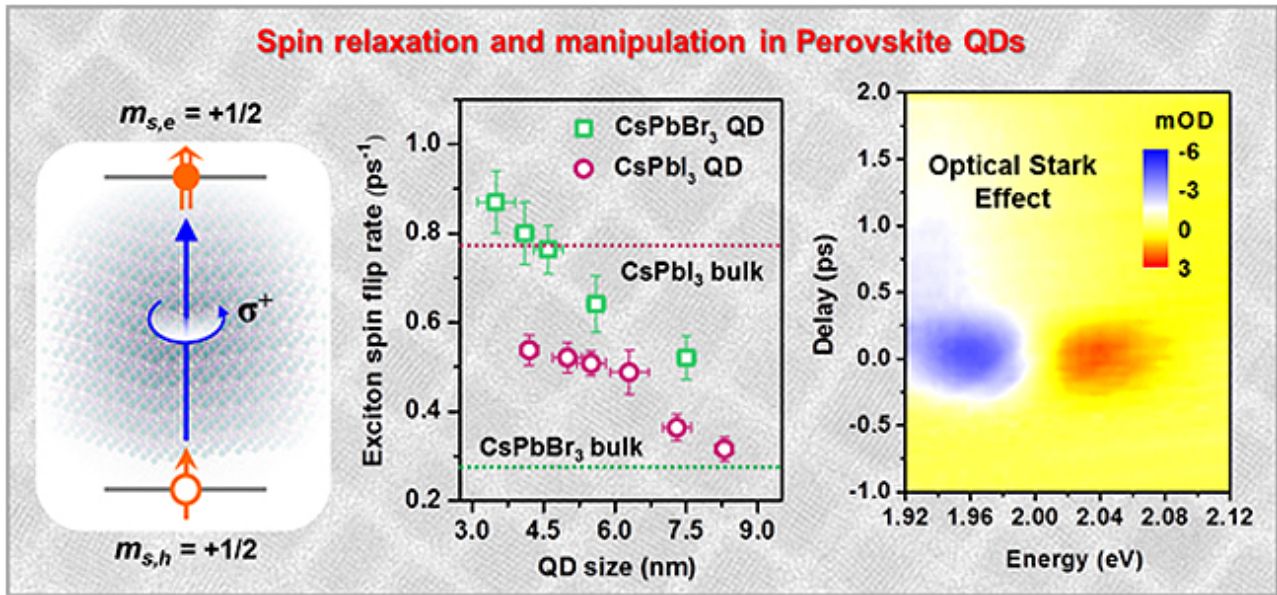
除了测量自旋寿命以外，该团队还基于圆偏振飞秒泵浦探测技术在室温下实现了对钙钛矿QD自旋态的纯光学手段操纵，即光学斯塔克效应（OSE）。量子限域使得钙钛矿QD的带边激子跃迁具有很大的振子强度，特别适合用于观测OSE。该团队采用非共振的圆偏振飞秒光泵浦样品，在采用相同偏振的飞秒光探测样品时观测到巨大的斯塔克位移，使得原本简并的自旋态能量劈裂达到近10 meV。根据斯塔克位移得到的QD带边跃迁偶极矩与文献中各类材料报道的最高值相当。该结果表明，钙钛矿QD在基于光学自旋操纵的量子信息学领域确有重要应用前景。

上述研究成果分别发表于《[德国应用化学](#)》（Angew. Chem. Int. Ed.）、《[美国化学会能源快报](#)》（ACS Energy Lett.）及《[物理化学快报](#)》（J. Phys. Chem. Lett

。相关工作得到国家自然科学基金项目、国家重点研发计划项目、中科院先导专项B“能源化学转化的本质与调控”、辽宁省兴辽英才计划项目等的资助。



铅卤素钙钛矿量子点双激子俄歇复合寿命的体积定标规律



铅卤素钙钛矿量子点中的自旋弛豫动力学及自旋态光学操纵

研究团队单位：大连化学物理研究所

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