

请输入关键字

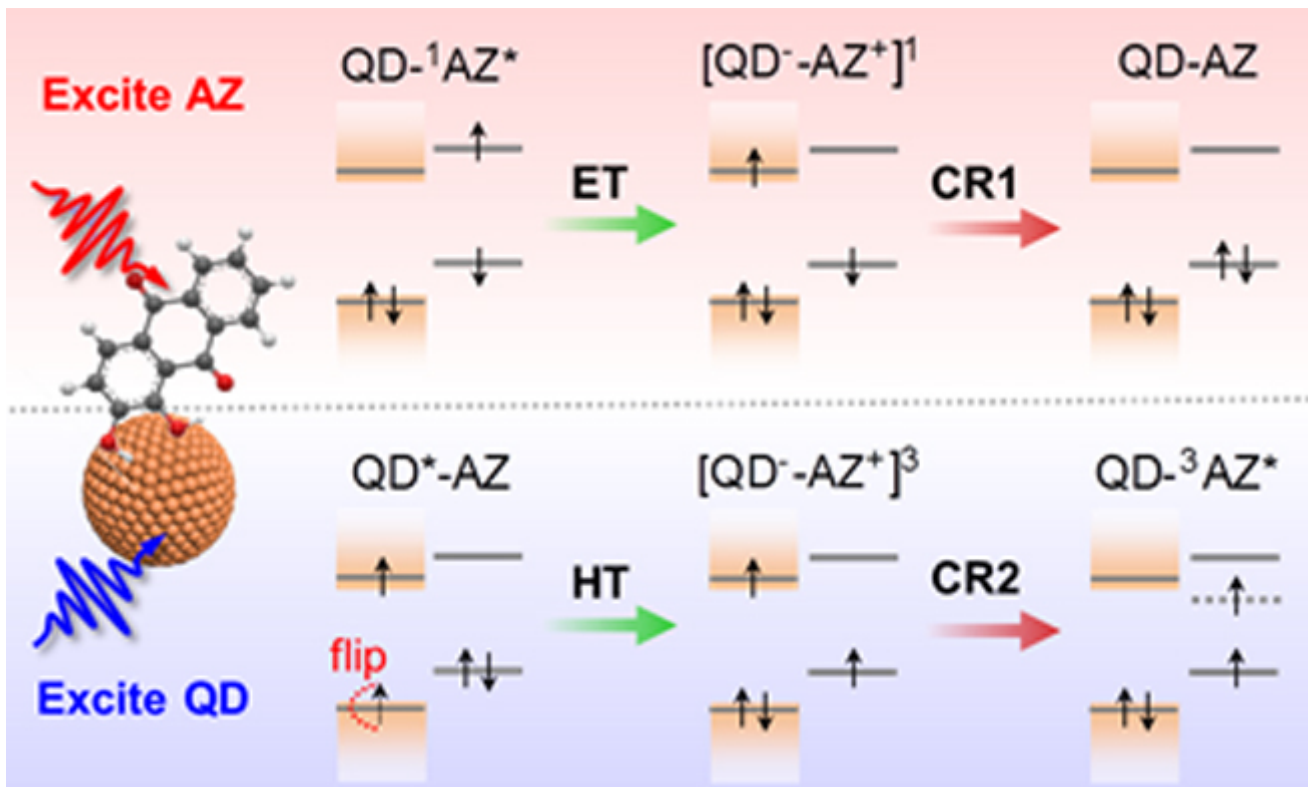
[首页 \(../..../\)](#) > [新闻动态 \(../..../\)](#) > [科研进展 \(../..../\)](#)

## 我所揭示自旋调控的电荷复合路径与动力学

发布时间: 2020-03-02 | 供稿部门: 11T6组

近日, 我所光电材料动力学特区研究组 (11T6组) 吴凯丰研究员团队采用飞秒瞬态光谱, 首次揭示了基于半导体量子点与有机受体分子构建的无机/有机杂化体系中存在着自旋调控的电荷复合路径和动力学。

无机半导体量子点 (QD) 与有机分子的杂化体系在光催化、发光器件及三线态敏化等领域具有重要应用前景。对这些应用极为关键的一个微观过程是QD/分子界面处的电荷转移与复合动力学。为此, 研究人员们对这些动力学过程进行了广泛的研究, 揭示了通过能量驱动力及电子耦合强度等因素调控电荷转移与复合动力学的基本原理。然而, 利用电子自旋作为一个全新的维度来调控电荷转移与复合动力学则鲜有报道。



为了探索自旋调控的可能性，研究团队设计了基于CdS QD和茜素分子（AZ）的QD-AZ杂化材料。该体系的光谱特征允许分别选择激发QD或者AZ，都可以触发电荷分离。具体而言，激发AZ导致电子注入到QD的导带，形成 $\text{QD}^- \text{-AZ}^+$ 电荷分离态。该电荷分离态最终复合回到基态，这与团队前期工作中的观测一致（*J. Am. Chem. Soc.* 2018 (<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.8b05942>))。选择激发QD亦可触发空穴转移到AZ形成 $\text{QD}^- \text{-AZ}^+$ 电荷分离态，然而该分离态的复合并未回到基态，而是产生了一种极长寿命的物种，似乎有悖常理。研究团队近期在QD-分子体系三线态能量转移领域积累了一定的工作基础（*Nat. Commun.* 2020 (<https://www.nature.com/articles/s41467-019-13951-3>); *J. Am. Chem. Soc.* 2019 (<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.8b13180>); *J. Am. Chem. Soc.* 2019 (<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.9b07033>))。受此启发，推测该物种为AZ分子的自旋三重态 ( $3\text{AZ}^*$ )，并通过三线态敏化实验进行了验证。

机理分析表明，这种选择激发导致的电荷复合路径差异本质上受到了自旋翻转动力学的调控。激发AZ产生的 $\text{QD}^- \text{-AZ}^+$ 电荷分离态为自旋单线态，且因II-VI族QD中电子自旋翻转较慢（弱自旋-轨道耦合），该电荷分离态可长时间保持单线态特征，直至复合回到基态。相反，在激发QD触发空穴转移的情况下，由于II-VI族QD中空穴自旋翻转极快（强自旋-轨道耦合），产生的 $\text{QD}^- \text{-AZ}^+$ 电荷分离态实际由自旋三线态主导。该电荷分离态的复合则优先产生AZ分子的自旋三线态。

上述物理图像对II-VI族QD-分子的杂化体系具有普适性，在QD-并四苯分子体系亦得到验证。利用电子自旋来实现电荷转移与复合路径的调控对这些杂化材料在光驱动能量转换方面的应用具有重要的指导意义。

相关研究成果发表于《美国化学会志》( *J. Am. Chem. Soc.* (<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/jacs.9b12724>)) 上。上述工作得到国家自然科学基金、国家重点研发计划、中科院洁净能源先导专项B"能源化学转化的本质与调控"、辽宁省兴辽英才计划等项目的资助。(文/图 王俊慧)

(<http://www.dicp.cas.cn/>)

地址: 辽宁省大连市沙河口区中山路457号 邮

编: 116023

电话: +86-411-84379198 传真: +86-411-84691570

邮件: [dicp@dicp.ac.cn](mailto:dicp@dicp.ac.cn)

(<mailto:dicp@dicp.ac.cn>)



官方微信



化学之美



([//bszs.conac.cn/](http://bszs.conac.cn/)  
method=show