

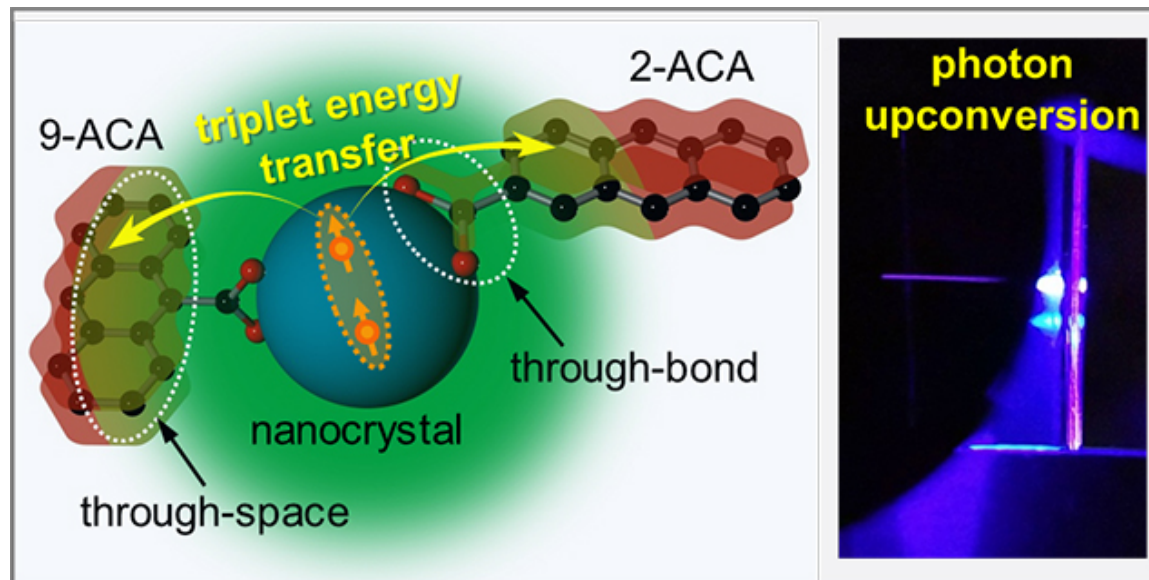


[首页](#) | [概况简介](#) | [科技布局](#) | [人才队伍](#) | [科技动态](#) | [成果发布](#) | [规章制度](#) | [人才招聘](#) | [新闻动态](#) | [联系我们](#)

研究人员揭示无机/有机界面三线态能量转移的分子层面机制

时间：2020年08月17日 08:36 栏目：科技动态 浏览次数：87

近日，我所光电材料动力学特区研究组（11T6组）吴凯丰研究员团队通过同时调控无机半导体纳米晶的波函数分布和表面受体分子的构型，采用时间分辨光谱观测到了无机/有机界面三线态能量转移中的“Through-space”与“Through-bond”机制，并基于此实现了高效的分子三线态敏化和三线态湮灭的光子上转换。



近年来，无机纳米晶到有机分子的三线态能量转移被发展为一种新型、高效的分子三线态敏化方法，在光子上转换、光催化合成以及光动力疗法等领域具有重要的潜在应用价值。吴凯丰团队近期深入研究了无机/有机界面三线态能量转移的动力学机制，率先揭示了纳米晶量子限域效应驱动三线态能量转移 ([J. Am. Chem. Soc.](#), 2019)，界面电荷分离态介导的三线态能量转移 ([Nat. Commun.](#), 2020; [J. Am. Chem. Soc.](#), 2020; [J. Am. Chem. Soc.](#), 2020)，以及纳米晶表面缺陷态激子参与的三线态能量转移 ([J. Am. Chem. Soc.](#), 2019)。

在本研究工作中，该团队进一步揭示分子层面的无机/有机界面三线态能量转移机理。该工作受到一个奇异的实验现象的启发：对同一个纳米晶，以不同羧基修饰位点的蒽甲酸（2-蒽甲酸和9-蒽甲酸）作为三线态受体时，能量转移效率差别可达一个数量级以上。考虑到2-蒽甲酸和9-蒽甲酸的氧化还原电势和带隙都十分相似，转移效率的巨大差异只能来源于纳米晶与2-蒽甲酸和9-蒽甲酸之间不同的电子耦合强度。研究团队通过调控无机纳米晶的尺寸和核/壳结构来改变纳米晶表面的波函数幅度，从而调控纳米晶与分子间的电子耦合强度，并结合超快光谱观测这种调控对三线态能量转移动力学的影响。

研究表明，由于2-蒽甲酸中羧基锚定基团与蒽分子成平面结构，两者间存在着化学共振效应，纳米晶与2-蒽甲酸的波函数交叠被羧基锚定基团有效增强，这类类似于电荷和能量转移体系中经常观测到的“Through-bond”（通过化学键）机制。相反，9-蒽甲酸中羧基锚定基团与蒽分子成垂直结构，不存在化学共振效应，纳米晶与蒽分子的耦合只能以“Through-space”（通过空间）方式进行。因此，对于弱限域（或者壳层包覆）的纳米晶，波函数“溢出”到表面的程度低，“Through-bond”机制的作用导致纳米晶与2-蒽甲酸的电子耦合强度远大于9-蒽甲酸；而对于强限域（波函数“溢出”程度高）的纳米晶，“Through-space”起到主导作用，此时，由于纳米晶与9-蒽甲酸中蒽分子的距离较2-蒽甲酸更近，前者反而具有更大的电子耦合强度。基于这些认识，研究团队通过同时调控纳米晶的波函数分布和蒽甲酸分子的构型，将基于该体系的三线态湮灭的光子上转换效率提升了一个数量级以上。

本工作首次从分子层面揭示了无机纳米晶到有机分子的三线态能量转移也存在“Through-space”与“Through-bond”两种方式，为进一步提升三线态能量转移效率和三线态湮灭光子上转换效率提供了重要指导意义。

上述研究成果发表于《德国应用化学》([Angew. Chem. Int. Ed.](#))上。相关工作得到国家自然科学基金、中科院战略性先导科技专项A类“变革性洁净能源关键技术与示范”、辽宁省兴辽英才计划等项目的资助。(文/图 何山)



依托单位:



共建单位:

