

钙钛矿电致发光器件激子复合探测及发光调控

于荣梅¹, 宋玉玲¹, 殷复荣¹, 许浩航¹, 薛旭兰^{2*}, 纪文字^{3*}

(1. 南阳师范学院 物理与电子工程学院, 河南 南阳 473061;

2. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所 特种发光科学与技术全国重点实验室, 吉林 长春 130033;

3. 吉林大学 物理学院, 吉林 长春 130012)

摘要: 由于出色的发光效率及色纯度, 基于金属卤化物的钙钛矿电致发光二极管 (PeLED) 在照明及显示领域引起了极大关注。随着材料的不断优化, PeLED 的器件性能进展迅速。然而, 由于钙钛矿材料对环境的高敏感特性, 限制了器件结构的设计, 从而使得针对器件工作机制的研究相对较少。在本工作中, 我们以 CdSe/ZnS 量子点 (Cd-QD) 甲苯溶液作为反溶剂, 利用一步法原位制备 FAPbBr₃ 钙钛矿薄膜, 使其自发形成钙钛矿/量子点复合发光层结构, 并系统研究了钙钛矿器件中激子动力学过程。在此基础上, 通过在发光层与电子传输层之间引入电子阻挡层调控载流子在钙钛矿及量子点上的分布, 从而实现了对器件发光颜色的有效调控。

关键词: 金属卤化物钙钛矿; 激子形成; 电子阻挡层

中图分类号: O482.31

文献标识码: A

DOI: 10.37188/CJL.20260158

CSTR: 32170.14.CJL.20260158

Exciton recombination probing and color control in perovskite light-emitting diodes

YU Rong-mei¹, SONG Yu-ling¹, YIN Fu-rong¹, XU Hao-hang¹, XUE Xu-lan^{2*}, JI Wen-yu^{3*}

(1. College of Physics and Electronic Engineering, Nanyang Normal University, Nanyang 473061, China;

2. State Key Laboratory of Luminescence Science and Technology, Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;

3. College of Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

* Corresponding Authors, E-mail: xuexulan@ciomp.ac.cn, jiwuy@jlu.edu.cn

Abstract: Due to their excellent luminous efficiency and color purity, metal halide perovskite-based light-emitting diodes (PeLEDs) have attracted significant attention in lighting and display applications. With continuous material optimization, the device performance of PeLEDs has progressed rapidly. However, the high environmental sensitivity of perovskite materials limits the design of device architectures, resulting in relatively few studies on the working mechanisms of PeLEDs. In this work, we use a CdSe/ZnS (Cd-QD) quantum dot solution in toluene as an anti-solvent to prepare FAPbBr₃ perovskite films in a one-step process, spontaneously forming a perovskite/quantum dot composite emitting layer. We systematically investigate the exciton dynamics in perovskite devices. Furthermore, by introducing an electron-blocking layer between the emitting layer and the electron transport layer, we modulate the distribution of charge carriers between the perovskite and the quantum dots, thereby achieving precise control over the device emission color.

Keywords: metal halide perovskites; exciton formation; electron blocking layer

收稿日期: XXXX-XX-XX; 修订日期: XXXX-XX-XX

基金项目: 国家自然科学基金 (12374375), 吉林省科技发展计划项目 (20250202040NC), 大学生创新创业训练计划项目 (202510481013);

Supported by National Natural Science Foundation of China (12374375); Project of Jilin Province Science and Technology Development Plan (20250202040NC); National College Students' Innovation and Entrepreneurship Training Program (202510481013).

1 引 言

金属卤化物钙钛矿发光二极管(PeLED)凭借其优异的色纯度、可调的发光带隙以及高的发光效率等优势,近年来在新型显示与照明领域引发广泛关注^[1-6]。随着材料体系与器件结构的不断优化,红、绿、蓝三色PeLEDs的外量子效率(EQE)均已突破20%,这些突破主要得益于对钙钛矿非辐射复合过程的有效抑制、电荷注入与传输平衡的调控,以及光提取效率的优化等^[7-11]。

尽管目前红、绿光PeLEDs的发光性能已可与有机LED和量子点LED媲美^[12-15],但其器件工作机制,尤其是激子复合动力学过程,仍有待深入研究。值得注意的是,激子复合位置在很大程度上决定了器件的发光效率,同时也是制约器件工作稳定性的关键因素。已有研究表明,在有机LED和量子点LED中,通过合理调控器件结构,可将激子复合界面远离电荷载流子积累区域,有效抑制由电荷积累引起的激子猝灭。同时,将激子复合区限制在发射层内部,有助于降低界面缺陷诱导的非辐射复合损失,实现器件发光效率与工作稳定性提升^[16-18]。因此,深入研究PeLEDs中激子复合动力学行为,对于优化器件结构与提升PeLEDs工作稳定性具有重要意义。

通常,激子复合区域的位置可通过调控空穴与电子注入层的厚度实现一定程度的调节。2019年,Li等人通过调控空穴传输层PEDOT:PSS层的厚度,将激子复合区域有效限制在钙钛矿发光层内部,成功制备出最大亮度达3780 cd/m²的高性能蓝光PeLED^[19]。该方法在一定程度上验证了激子复合区调控对器件性能提升的积极作用,但其对薄膜厚度控制的精度依赖较高,而实际器件中多层功能薄膜通常采用旋涂工艺制备,易受工艺波动影响,导致器件重复性与稳定性难以保证,限制了其进一步应用。与此同时,研究者也尝试通过构建多发光层结构来探究器件中的发光机制。Ren等人通过在CsPbBr₃量子点层上引入CdSe/ZnS量子点层,利用不同波长发光作为“探针”来表征激子复合区域的空间分布^[20]。尽管该方法为理解激子复合行为提供了直观手段,但多发光层结构不仅显著增加了器件结构的复杂性,还可能后续制备过程中破坏下层发光层,影响器件性能及实验结果的可靠性。

因此,在本文中我们提出一种简便且有效的策略:以胶体CdSe/ZnS量子点(Cd-QD)的甲苯溶液作为反溶剂,原位制备FAPbBr₃/Cd-QD双层薄膜。该方法无需引入额外工艺步骤,在不影响钙钛矿薄膜质量的前提下,可自发生成“钙钛矿在下,量子点在上”的复合发光层结构。基于该结构,我们系统研究了钙钛矿器件中的激子动力学过程。结合电学特性分析,我们发现器件中激子复合区域主要位于钙钛矿与量子点界面处,并随着驱动电压的升高逐渐向钙钛矿层内部迁移。在此基础上,通过在发光层与电子传输层之间引入电子阻挡层,实现了对载流子分布与复合行为的进一步调控,成功调控器件发光颜色,并实现不同驱动电压下的双色发光PeLEDs。

2 器件制备及表征

本实验所用聚3,4-乙烯二氧噻吩:聚苯乙烯磺酸盐(PEDOT:PSS)、4,6-双(3,5-二(3-吡啶)基苯基)-2-甲基嘧啶(B3PyMPM)、溴化铅(PbBr₂)、甲脒氢溴酸盐(FABr)购自西安浴日光能科技有限公司,4,4',4''-三(咔唑-9-基)三苯胺(TCTA)、4,4'-双(9H-咔唑-9-基)联苯(CBP)、4,4'-环己基二[N,N-二(4-甲基苯基)苯胺](TAPC)材料购自台湾机光科技股份有限公司,3,3-二苯丙胺溴化物(DPPA-Br)根据文献合成^[21],Cd-QD购自纳晶科技公司。氟化锂(LiF)购自阿拉丁化学试剂公司,N,N-二甲基甲酰胺(DMF)、甲苯购自百灵威公司。所有材料购买后均直接使用,未经进一步纯化。

钙钛矿前驱体溶液制备方法。将FABr、Pb-Br₂、DPPA-Br按照摩尔比1:1:0.4溶解于DMF溶剂中,配制成浓度为0.2 M溶液。随后,在60℃下持续搅拌2 h以上,以确保各固态溶质充分溶解。用0.22 μm的聚四氟乙烯(PTFE)滤膜过滤备用。上述所有操作均在手套箱内完成。

器件制备。首先,将图案化的ITO玻璃基片依次用去离子水、丙酮、无水乙醇、去离子水超声清洗各15 min,氮气吹干,并置于紫外臭氧清洗机中处理15 min,提高ITO基底亲水性。随后,将PEDOT:PSS水溶液以4000 r/min的转速旋涂在ITO玻璃基底上,并在150℃热台上退火15 min,形成PEDOT:PSS薄膜。待薄膜冷却后,对其进行15 min氧等离子体处理,并迅速转移至惰性气氛手套箱中备用。将钙钛矿前驱体溶液以4000 rpm旋涂60 s,旋涂至第4 s时,向薄膜表面滴加浓度

为 15 mg/mL 的 Cd-QD 甲苯溶液, 80 °C 下退火 15 min, 制备发光层。之后, 将样品转移至高真空蒸镀设备, 在压强低于 4.5×10^{-4} Pa 条件下, 依次蒸镀电子传输层 B3PyMPM (30 nm)、LiF (1 nm) 以及金属 Al 电极 (100 nm)。器件制备完成后, 用紫外固化胶和盖玻片进行简单封装, 然后在空气环境下进行测试。

性能表征。器件的电流密度-电压-亮度特性通过 Keithley 2400 型数字源表和光度计 LS-110 进行测试。针对器件中不同发光组分的表征, 分别通过引入截止波长为 590 nm 的长通滤光片以及 350 - 560 nm 范围的带通滤光片, 对红光与绿光发射组分进行测试。电致发光光谱 (EL) 与光致发光 (PL) 光谱由光纤光谱仪 (Maya 2000 Pro) 测试得到。紫外-可见吸收光谱通过紫外-可见分光光度计 (UV-1750) 测定。透射电子显微镜 (TEM) 图像由电子束设备 (Talos F200X) 得到。扫描电子显微镜 (SEM) 图像通过场发射扫描电子显微镜 (FE-SEM, Hitachi, S-4800) 测试得到。

3 结果与讨论

在前期工作中, 我们率先提出了一种基于量子点掺杂的“一步法”原位制备钙钛矿薄膜策略, 即在钙钛矿薄膜制备过程中, 将 Cd-QD 引入反溶

剂中, 实现高质量 FAPbBr₃ 钙钛矿薄膜的可控制备^[22]。众所周知, 钙钛矿前驱体通常溶解于 DMF 或二甲基亚砜 (DMSO) 等强极性溶剂中, 而反溶剂一般选用与前驱体溶剂互溶性较低或溶解度差异显著的有机溶剂, 如甲苯、氯苯、氯仿等。这类溶剂体系的差异有助于在旋涂过程中快速诱导钙钛矿晶体的成核与生长, 调控钙钛矿结晶过程。

考虑到 Cd-QD 易溶于甲苯, 当 Cd-QD 甲苯溶液与钙钛矿前驱体接触时, 由于两者溶解度差异显著, 混合溶液将优先诱导 Cd-QD 在界面处自组装成单分子层, 这个 Cd-QD 单层可作为模板, 在随后的“自下而上”钙钛矿晶体生长过程中优化薄膜结晶, 最终形成“量子点在上、钙钛矿在下”的独特分层结构。图 1(a) 为钙钛矿薄膜截面的 TEM 图像, 可以清晰观察到, 钙钛矿薄膜顶部均匀分布着一层球形纳米结构, 其粒径约为 10 nm, 与量子点尺寸大小保持一致。同时, 我们测试了钙钛矿薄膜中对应的 Cd、Pb 和 Br 元素分布, 如支持信息图 S1 所示, Cd 元素主要分布于 Pb、Br 元素上方。该结果表明, 以 Cd-QD 甲苯溶液作为反溶剂制备的钙钛矿薄膜表面成功构筑了一层致密的量子点单层结构。为进一步探究量子点引入后钙钛矿薄膜表面形貌与结构特性, 我们对其进行了 SEM 表征。图 1(b) 为钙钛矿表面的 SEM 图像, 可以观察

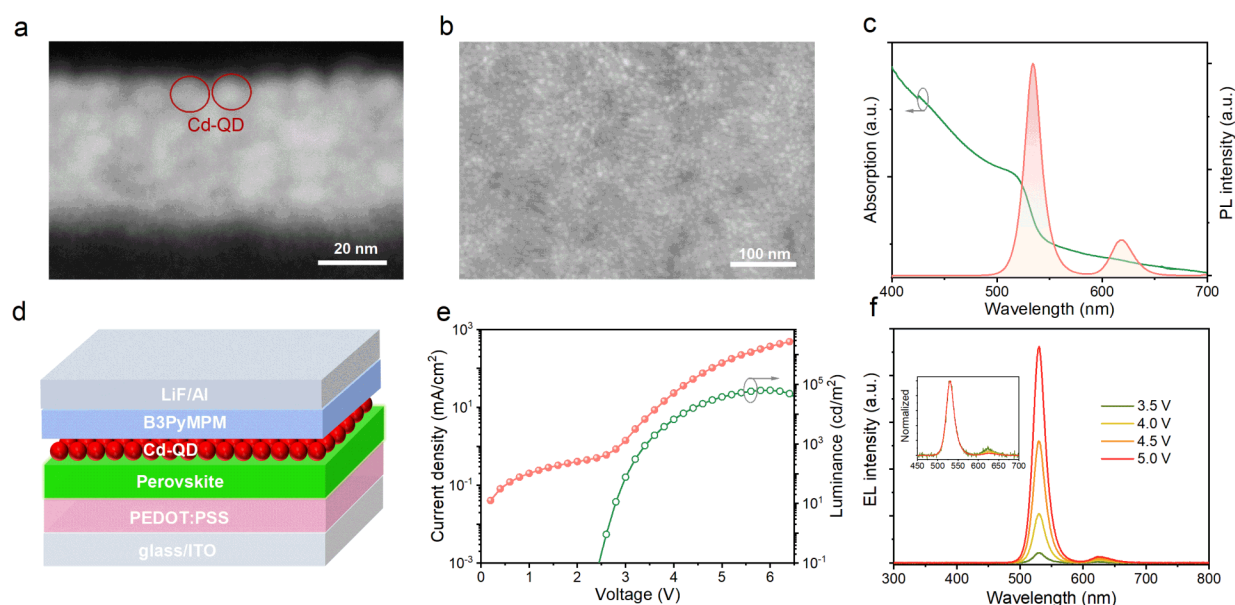


图 1 钙钛矿薄膜 (a) 截面 TEM 图、(b) 表面 SEM 图和 (c) 紫外-可见吸收与光致发光光谱; 钙钛矿器件 (d) 结构示意图、(e) 电流密度-电压-亮度 ($J-V-L$) 图和 (f) 在不同电压下的电致发光光谱, 插图不同电压下的归一化电致发光光谱

Fig. 1 (a) Cross-sectional TEM image, (b) SEM image and (c) UV - vis absorption and PL spectra of perovskite film. (d) Schematic structure, (e) Current density-voltage-luminance ($J-V-L$) characteristic and EL spectra at different voltages of the PeLED. The inset of Figure 1(f) shows the normalized EL spectra at different voltages.

到钙钛矿薄膜表面均匀覆盖着尺寸分布一致的量子点,呈现出良好的分散性与覆盖均匀性。

图 1(c)展示了所制备钙钛矿薄膜的紫外-可见吸收与 PL 光谱。在钙钛矿吸收光谱中 515 nm 处观察到明显的激子吸收峰,对应于钙钛矿的特征吸收。PL 光谱中出现两个荧光发射峰,分别位于 533 nm 和 623 nm,半峰宽为 20 nm 和 24 nm,对应于钙钛矿和 Cd-QD 的本征发光,且钙钛矿发光明显高于量子点发光。上述结果表明,该制备策略在不引入额外工艺复杂度的前提下,既保证了钙钛矿主发光特性,又实现了双光发射。此外,基于该方法制备的钙钛矿薄膜在量子产率与稳定性方面均得到显著提升,相关结果在我们前期工作中进行了系统报道^[22]。

在此基础上,我们制备了结构为 ITO/PEDOT:PSS/perovskite/Cd-QD/B3PyMPM/LiF/Al 的 PeLED,并对其电学特性进行了系统分析,器件结构示意图如图 1(d)所示。图 1(e)给出了器件的电流密度-电压-亮度($J-V-L$)特性曲线,器件在 2.4 V 开启(对应亮度为 0.1 cd/m²),最大亮度为 63300 cd/m²,表现出优异的电致发光性能,最大 EQE 为 7.4%,如支持信息图 S2 所示。与 PL 光谱结果一致,器件的 EL 光谱(图 1(f))呈现出两个发射峰,分别位于 533 nm 和 623 nm,对应于钙钛矿和量子点的发光。这说明电注入的情况下,载流子主要在钙钛矿与 B3PyMPM 电子传输层的界面上形成。然而,与 PL 光谱中双峰强度分布不同,器件中量子点的 EL 峰强明显较弱,且随着施加电压的增加,红光发射峰强持续减弱(图 1(f)插图),这说明电驱动过程中,更多的载流子被注入到钙钛矿发光层中复合发光。且随着施加电压增加,器件的激子复合中心逐渐由钙钛矿/量子点界面向钙钛矿发光层内部移动。在 5.0 V 驱动电压下,量子点红光发射占比仅约为 2%,器件整体表现出稳定的钙钛矿绿光发射。

为调控钙钛矿器件载流子分布特性及器件双发光特性,我们在发光层和电子传输层之间引入电子阻挡层,以实现电子注入的有效调控。我们首先选用有机小分子 TCTA 作为电子阻挡材料。TCTA 在有机 LED 和量子点 LED 中通常被用作空穴传输层,其极低的电子迁移率能够有效抑制电子注入,从而调节器件内部载流子传输和分布。器件各功能层能级图如图 2(a)所示,能级

参数均来源于相关文献^[22,23]。图 2(b)为引入不同厚度 TCTA 电子调控层器件的 $J-V-L$ 特性曲线,可以看出,随着 TCTA 层厚度的增加,相同驱动电压下,器件电流密度逐渐减小,对应的发光亮度也随之下降。插入 1 nm TCTA 层的器件最大亮度为 23910 cd/m²,相较于未引入电子阻挡层的器件(图 1(e)),亮度下降约 62%。当 TCTA 厚度进一步增加至 5 nm 时,器件最大亮度降至 5835 cd/m²,这主要归因于 TCTA 层的电子阻挡作用。TCTA 层一定程度上抑制了电子从 B3PyMPM 电子传输层向发光层的注入,且随着 TCTA 电子阻挡层厚度的增加,电子阻挡作用进一步增强,最终导致器件电流与亮度同步降低。

然而,通过 TCTA 的插入,我们实现了器件发光光谱的调控。图 2(c)-(e)展示了插入不同厚度 TCTA 层器件在不同驱动电压下的 EL 光谱。可以看出,随着插入 TCTA 层厚度增加,来自量子点的红光发射强度明显增加。当插入 5 nm TCTA 层时,在 5 V 驱动电压下,量子点红光发射强度已达到钙钛矿发射强度的 55%,远高于未插入电子调控层器件的 2%(图 1(f)),且器件的发光颜色也表现出明显的可调特性。随着 TCTA 层厚度增加,器件开启时发光颜色由钙钛矿主导的绿光逐步向量子点主导的红光转变,如图 2(c)-(e)插图所示。在 3.0 V 驱动电压下,插入 1 nm TCTA 层器件同时呈现绿光和红光发射,且两者强度相当;而当 TCTA 厚度增加至 5 nm 时,发光强度则以红光为主。这一变化表明,随着电子阻挡层的引入及其厚度的增加,器件中激子复合区域由钙钛矿/量子点界面逐渐向量子点层移动,从而改变了辐射复合的主导发光中心,实现了发光颜色的可控调节。

为进一步验证引入电子阻挡层后器件的发光特性,我们使用 590 nm 长通滤光片和带通(350-560 nm)滤光片,对插入 5 nm TCTA 层器件中的红光与绿光发射分别进行测试,结果如图 2(f)所示。可以清晰看出,量子点红光在约 2.4 V 开启,低于钙钛矿绿光的开启电压(约 2.5 V),这也与其 EL 光谱分析结果一致。即,由于 TCTA 的强电子阻挡能力,在低压驱动下(<3.5 V),注入到量子点中的电子优先与空穴复合,使得器件中量子点率先发光。随着驱动电压的持续升高,更多电子注入到钙钛矿层,钙钛矿发光逐渐增强(图 2(f))。

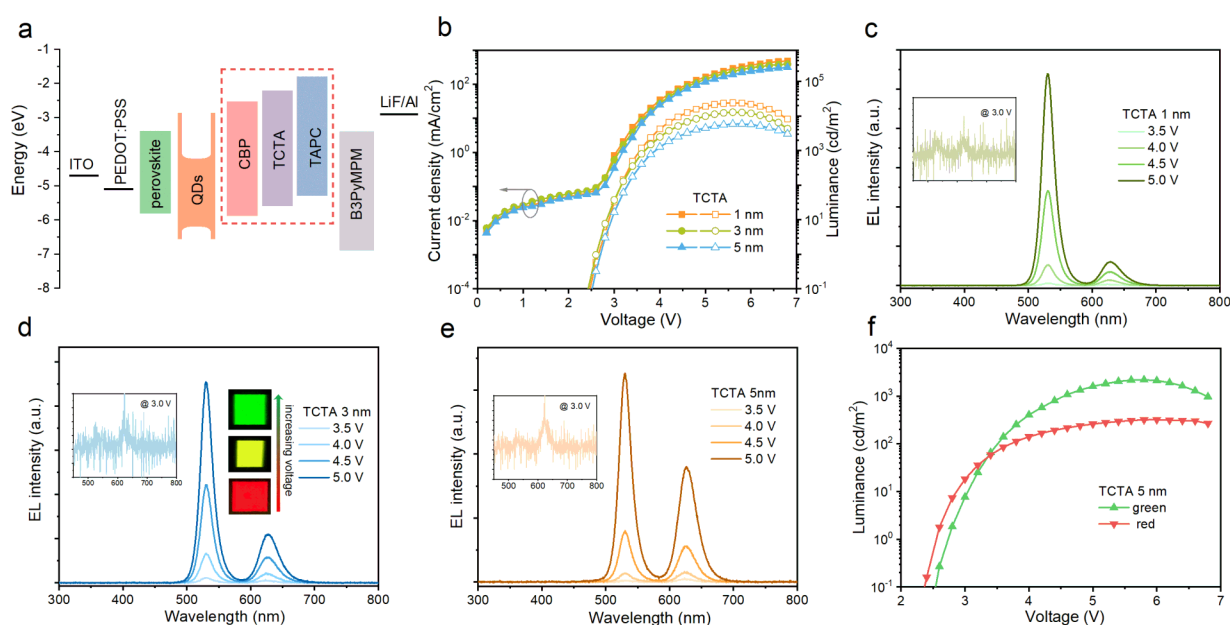


图2 (a) 器件能级结构图;插入不同厚度TCTA层(1、3、5 nm)器件的(b)电流密度-电压-亮度图;(c)-(e)插入不同厚度TCTA器件的电致发光光谱,插图为各器件在3.0 V电压下电致发光光谱,图(d)中图片为在不同电压下器件发光照片;(f)引入590 nm长通滤光片和带通(350-560 nm)滤光片后,插入5 nm TCTA层器件的红光和绿光亮度-电压图

Fig. 2 (a) Energy level diagram of PeLEDs. (b) Current density-voltage-luminance characteristics of devices with TCTA layers of different thicknesses (1, 3, and 5 nm). (c)-(e) EL spectra of devices with different TCTA thicknesses. Insets show the EL spectra of the corresponding devices at 3.0 V voltage. The images in Fig. 2(d) show the EL photographs of the device under different applied voltages. (f) Luminance - voltage characteristics of red and green emissions for the device with a 5 nm TCTA layer, measured using the long-pass (cut-on wavelength at 590 nm) and band-pass (350-560 nm) filters.

上述结果表明,TCTA层凭借其电子阻挡特性,有效调控了器件内部载流子的空间分布及激子复合区域。该策略不仅实现了对激子复合界面的探测,也为器件发光颜色调节提供了一种有效的途径。

在进一步调控器件内部载流子分布及发光颜色的过程中,基于材料的能级结构及其对电子传输的阻挡能力,我们选用有机小分子CBP和TAPC作为电子阻挡材料,其能级结构如图2(a)所示。需要说明的是,CBP为常用的双极性电荷传输材料,其对电子阻挡能力低于TCTA,而TAPC具有更高的LUMO(LUMO为最低未占据分子轨道)能级,其对电子的阻挡作用强于TCTA。在发光层和电子传输层中间插入3 nm CBP薄层后,器件电流密度-电压(J - V)和亮度-电压(L - V)特性如图3(a)和(b)所示。我们发现,引入CBP的器件的电学特性与常规器件基本一致,但其发光性能得到提升,最大亮度可达85230 cd/m^2 ,明显高于未引入电子阻挡层的常规器件(图3(b))。从图3(c)给出的CBP器件EL光谱可以看出,器

件的主发射峰位于534 nm,对应钙钛矿发光,其光强远高于量子点红光发射,与未加入电子阻挡层器件结果一致(图1f)。我们推测这是由于CBP作为一种双极性电荷传输材料,具有一定的电子传输能力,在发光层与电子传输层之间引入CBP薄层,在不显著影响电子注入的前提下,优化了发光层与电子传输层接触界面,从而提升了器件亮度。此外,我们也测试了插入1 nm和5 nm CBP薄层后器件的电学特性,如支持信息图S3(d)-(f)所示,结果与插入3 nm CBP层结果相似,器件发光仍以钙钛矿发射峰为主,其发光强度明显高于量子点的红光发射。

相比之下,引入5 nm TAPC的器件表现出显著不同的发光特性,这主要归因于TAPC对电子传输具有极强的阻挡作用,从而抑制了电子向发光层注入与复合过程,导致器件整体亮度明显下降(图3(e)),最大亮度仅为1801 cd/m^2 。与此同时,器件的发光颜色也得到有效调控,如图3(f)所示,尽管器件中同时存在量子点红光与钙钛矿绿光发射峰,但在不同驱动电压下,量子点红光始终

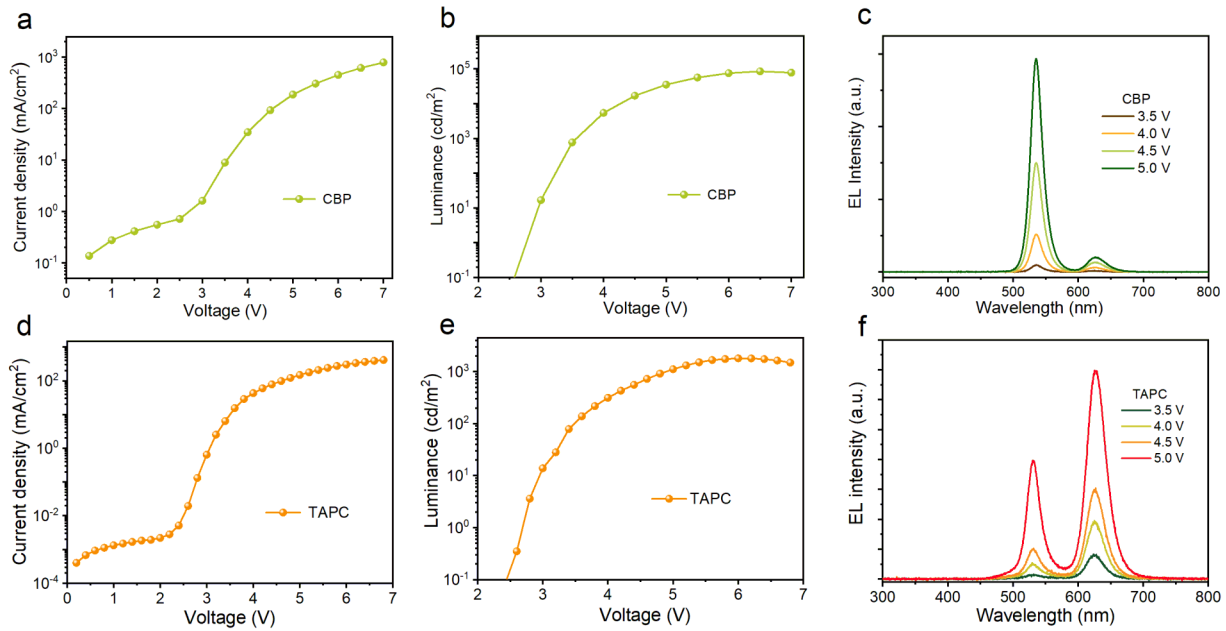


图3 引入CBP电子阻挡层器件(a)电流密度-电压、(b)亮度-电压曲线和(c)不同电压下电致发光光谱;引入TAPC电子阻挡层器件(d)电流密度-电压、(e)亮度-电压曲线和(f)不同电压下电致发光光谱

Fig. 3 (a) Current density - voltage, (b) Luminance - voltage characteristics and (c) EL spectra at different voltages of CBP device, (d) Current density - voltage, (e) Luminance - voltage characteristics and (f) EL spectra at different voltages of TAPC device.

占据主导地位,这表明 TAPC 的引入改变了器件内部载流子分布及激子复合区域,使得辐射复合更倾向于发生在量子点层,从而实现以红光发射为主的发光行为。插入 1 nm 和 3 nm TAPC 器件电学性能如支持信息图 S3(a)-(c)所示。此外,我们对插入不同电子阻挡层器件的工作稳定性进行了测试,如支持信息图 S4 所示,插入 CBP 电子阻挡层后,器件工作稳定性明显提高。

随后,我们对引入不同电子阻挡层前后器件的电荷动力学过程进行了分析,其示意图如图 4 所示。在未引入电子阻挡层的常规器件中,电驱动条件下中,由 B3PyMPM 电子传输层注入的电子主要进入到钙钛矿层(图 4(a)),并在电子与空穴的重叠区域形成激子,其发射以钙钛矿绿光为主。当在发光层与电子传输层之间引入电子阻挡层后,由于各材料对电子的阻挡能力不同,器件的发光行为发生显著变化。由于三种电子阻挡层的电子阻挡能力大小规律为:TAPC>TCTA>CBP,因此,在 CBP 器件中,由于其薄层对电子注入影响弱,大部分电子仍注入至钙钛矿层中与空穴复合发光(图 4(c)),激子复合区域主要位于钙钛矿发光层中,其发光特性与常规器件基本一致。相比之下,在 TCTA 和 TAPC 器件中,阻挡层对电子注

入产生一定抑制作用,使得从电子传输层注入的电子更倾向于优先与注入到量子点中的空穴复合,从而导致激子复合区域由钙钛矿层向量子点层移动(图 4(b)和(d))。尤其是在 TAPC 器件中,由于其更强的电子阻挡能力,该抑制效应更加显著,使量子点红光发射占据主导地位。

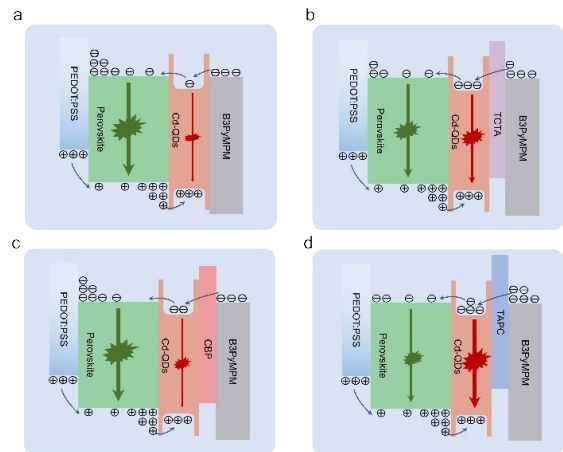


图4 引入不同界面调控层前后器件的发光机制的示意图,对应器件分别为:(a)常规器件;(b)TCTA 器件;(c)CBP 器件;(d)TAPC 器件

Fig. 4 Schematic illustration of the emission mechanisms of devices with and without different electron blocking layers, corresponding to (a) control device, (b) TCTA device, (c) CBP device and (d) TAPC device.

4 结 论

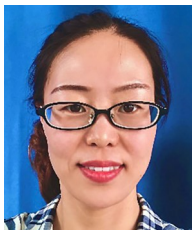
在本文中,我们以 CdSe/ZnS 量子点甲苯溶液作为反溶剂,利用一步法原位制备 FAPbBr₃ 钙钛矿薄膜,使其自发形成钙钛矿/量子点复合发光层结构。在此基础上,通过在发光层与电子传输层之间引入电子阻挡层,并结合器件电学特性与光谱分析,对钙钛矿器件的发光机制进行了系统研

究。研究结果表明,电子阻挡层对器件内部载流子分布及激子复合区域具有决定性影响。随着电子阻挡能力的增强,器件中的电子注入得到有效抑制,促使激子复合区域由钙钛矿层逐渐向量子点层移动,从而实现了对器件发光颜色的有效调控,并获得多波长发光的协同输出。本研究从机理层面加深了对 PeLED 发光行为的认识,并为器件结构的优化设计提供了新的思路与方法。

参 考 文 献:

- [1] KONG L M, SUN Y Q, ZHAO B, *et al.* Fabrication of red-emitting perovskite LEDs by stabilizing their octahedral structure [J]. *Nature*, 2024, 631 (8019): 73-79.
- [2] XIONG W T, TANG W D, ZHANG G, *et al.* Controllable p- and n-type behaviours in emissive perovskite semiconductors [J]. *Nature*, 2024, 633 (8029): 344-350.
- [3] LI M M, YANG Y G, KUANG Z Y, *et al.* Acceleration of radiative recombination for efficient perovskite LEDs [J]. *Nature*, 2024, 630 (8017): 631-635.
- [4] 马培金, 赵彪, 谭占鳌, 等. 高效铅基绿光钙钛矿发光二极管研究进展: 材料合成与器件性能优化 [J]. *发光学报*. 2025, 46 (6): 1014-1036.
MA P J, ZHAO, B, TAN Z A, *et al.* Research progress on high-efficiency lead-based perovskite green light-emitting diodes: material synthesis and device optimization [J]. *Chinese Journal of Luminescence*. , 2025, 46 (6): 1014-1036. (in Chinese)
- [5] 郑春波, 郑鑫, 冯晨, 等. 基于 LiF 修饰层的喷墨打印钙钛矿发光二极管 [J]. *发光学报*. 2021, 42 (5): 565-574.
ZENG C B, ZHENG X, FENG C, *et al.* Inkjet printed perovskite light-emitting diode based on LiF modification layer [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2021, 42 (5): 565-574. (in Chinese)
- [6] 秦向前, 黎明亮, 赵亚萍, 等. 新型钴基空穴传输层助力高效钙钛矿发光二极管 [J]. *发光学报*. 2023, 44 (3): 548-558.
QIN X Q, LI M L, ZHAO Y P, *et al.* High-efficiency perovskite light-emitting diodes via novel cobalt -based hole transporter layer [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2023, 44 (3), 548-558. (in Chinese)
- [7] SUN Y Q, GE L J, CHO C S, *et al.* Bright and stable perovskite light-emitting diodes in the near-infrared range [J]. *Nature*, 2023, 615 (7954): 830-835.
- [8] DING S, WANG Q Q, GU W C, *et al.* Phase dimensions resolving of efficient and stable perovskite light-emitting diodes at high brightness [J]. *Nat. Photonics*, 2024, 18 (4): 363-370.
- [9] ZENG J J, SUN X Y, LIU Y, *et al.* Switchable interfacial reaction enables bright and stable deep-red perovskite light-emitting diodes [J]. *Nature Photonics*, 2024, 18 (4): 325-333.
- [10] CHEN Y, WANG R S, KUSCH G, *et al.* All-site alloyed perovskite for efficient and bright blue light-emitting diodes [J]. *Nat. Commun.*, 2025, 16 (1): 3254.
- [11] WANG Y K, WANG H Y, TEALE S, *et al.* Long-range order enabled stability in quantum dot light-emitting diodes [J]. *Nature*, 2024, 629 (8012): 586-591.
- [12] Qin C J, MATSUHIMA T, POTSCAVAGE W J, *et al.* Triplet management for efficient perovskite light-emitting diodes [J]. *Nat. Photonics*, 2020, 14 (2): 70-75.
- [13] WEI K Y, ZHOU T, JIANG Y Z, *et al.* Perovskite heteroepitaxy for high-efficiency and stable pure-red LEDs [J]. *Nature*, 2025, 638 (8052), 949-956.
- [14] FENG S C, SHEN Y, HU X M, *et al.* Efficient and stable red perovskite light-emitting diodes via thermodynamic crystallization control [J]. *Adv. Mater.*, 2024, 36 (44): 2410255.
- [15] ZHANG Q, LI L, CHEN X, *et al.* Cation engineering enables sequentially ordered growth of 3D and 2D perovskites for high-efficiency perovskite light-emitting diodes [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2025, 35 (37): 2502488.

- [16] BANGSUND J S, HERSHEY K W, HOLMES R J. Isolating degradation mechanisms in mixed emissive layer organic light-emitting devices [J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2018, 10 (6):5693-5699.
- [17] RAHMATI M, DAYNEKO S, PAHLEVANI M, *et al.* Highly efficient quantum dot light-emitting diodes by inserting multiple Poly(methyl methacrylate) as electron-blocking layers [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2019, 29 (50):1906742.
- [18] ERICKSON N C, HOLMES R J. Investigating the role of emissive layer architecture on the exciton recombination zone in organic light-emitting devices [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2013, 23 (41):5190-5198.
- [19] LI Z C, CHEN Z M, YANG Y C, *et al.* Modulation of recombination zone position for quasi-two-dimensional blue perovskite light-emitting diodes with efficiency exceeding 5 [J]. *Nat. Commun.*, 2019, 10 (1):1027.
- [20] REN B T, YUEN G C, DENG S B, *et al.* Multifunctional optoelectronic device based on an asymmetric active layer structure [J]. *Adv. Funct. Mater.*, 2019, 29 (17):1807894.
- [21] HAN D B, IMRAN M, ZHANG M J, *et al.* Efficient light-emitting diodes based on in situ fabricated FAPbBr(3) nanocrystals: the enhancing role of the ligand-assisted reprecipitation process [J]. *ACS Nano*, 2018, 12 (8), 8808-8816.
- [22] XUE X L, LI M L, LIU Z J, *et al.* Quantum dots enhanced stability of in-situ fabricated perovskite nanocrystals based light-emitting diodes: Electrical field distribution effects [J]. *Fundam. Res.*, 2025, 5 (1):347-353.
- [23] WANG T, GUAN X, ZHANG H Z, *et al.* Exploring Electronic and Excitonic Processes toward Efficient Deep-Red CuInS₂/ZnS Quantum-Dot Light-Emitting Diodes [J]. *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 2019, 11 (40): 36925-36930.



于荣梅(1981-),女,山东省烟台市人,博士,副教授,2012年于哈尔滨工业大学获得博士学位,主要从事量子点发光器件的研究。
邮箱:yurongmei@aliyun.com



纪文宇(1982-),男,黑龙江省海伦市人,博士,教授,2010年于吉林大学获得博士学位,主要从事半导体纳米材料(量子点)薄膜物理、发光器件的研究。目前作为“英才计划”团队导师,指导霍斯铭(长春市文理高中在读,英才计划学员)从事发光器件方面研究。
邮箱:jiwy@jlu.edu.cn



薛旭兰(1995-),女,内蒙古乌兰察布人,博士,助理研究员,2023年于吉林大学获得博士学位,主要从事量子点、钙钛矿发光器件的研究。
邮箱:xuexulan@ciomp.ac.cn