

# 基于混合DJ-RP配体策略的红光准二维钙钛矿发光二极管性能研究

李伯洋, 邱浪文, 邓智友

五邑大学应用物理与材料学院, 广东 江门

收稿日期: 2026年3月25日; 录用日期: 2026年4月29日; 发布日期: 2026年5月12日

## 摘要

准二维钙钛矿发光二极管(PeLED)因其带隙可调、色纯度高和可溶液加工等优势, 在发光领域展现出巨大潜力。其中, 红光器件是全彩显示和固态照明的关键组成部分, 其性能提升对推动PeLEDs实际应用具有重要意义, 但目前红光准二维PeLED仍面临相分布控制难和缺陷态密度高的双重挑战。本文提出一种脂肪型Dion-Jacobson (DJ)-Ruddlesden-Popper (RP)混合配体策略, 利用1,5-戊二胺氢碘酸盐(PDAI<sub>2</sub>)与丙胺氢碘酸盐(PAI)在无机层间等效长度上的结构兼容性, 对钙钛矿薄膜的相分布与缺陷态进行协同调控。其中, 单个PDAI<sub>2</sub>有机间隔层配体在无机层间占据的间隔长度, 与两个PAI配体形成的等效间隔长度相近, 为二者在结晶过程中形成构型匹配的混合间隔层、避免因长度失配导致的结构扭曲或相分离, 从而实现协同钝化提供了结构基础。实验结果证明, 混合配体薄膜的PLQY由30.8%提升至71%。基于该策略的准二维PeLED实现了691 nm处的稳定红光发射, 最大外量子效率为13.49%, 器件T<sub>50</sub>寿命提升13倍。该工作为红光准二维钙钛矿光电器件的进一步发展提供了有效策略。

## 关键词

准二维钙钛矿, 混合配体, 相分布调控, 缺陷钝化

## Study on the Performance of Red Quasi-2D Perovskite Light-Emitting Diode Based on a Mixed DJ-RP Ligand Strategy

Boyang Li, Langwen Qiu, Zhiyou Deng

School of Applied Physics and Materials, Wuyi University, Jiangmen Guangdong

Received: March 25, 2026; accepted: April 29, 2026; published: May 12, 2026

## Abstract

Quasi-two-dimensional perovskite light-emitting diodes (PeLEDs) have attracted extensive attention in the field of light emission owing to their tunable bandgap, high color purity, and solution processability. Among them, red emitters are a crucial component for full-color displays and solid-state lighting, and their performance improvement is of great significance for promoting the practical application of PeLEDs. However, red quasi-2D PeLEDs currently face the dual challenges of difficult phase distribution control and high defect density. Herein, we propose a mixed aliphatic DJ-RP ligand strategy, leveraging the structural compatibility in equivalent length between inorganic layers between 1,5-pentanediamine hydroiodide (PDAI<sub>2</sub>) and propylamine hydroiodide (PAI) to jointly regulate the phase distribution and defect density of the perovskite film. Specifically, the spacer length occupied by a single PDAI<sub>2</sub> molecule between inorganic layers closely matches the effective spacer length formed by two PAI molecules arranged in a head-to-head manner, providing a structural basis for the formation of a configurationally matched mixed interlayer during crystallization, thereby avoiding structural distortion or phase separation caused by length mismatch and achieving synergistic passivation. Experimentally, the mixed-ligand film exhibits a substantially enhanced photoluminescence quantum yield (PLQY) from 30.8% to 71.%. The red quasi-2D PeLEDs based on this strategy achieve stable emission at 691 nm with a maximum external quantum efficiency (EQE) of 13.49%, and an extended operational lifetime (T<sub>50</sub>) by 13 times. This work provides an effective strategy for the further development of red quasi-two-dimensional perovskite optoelectronic devices.

## Keywords

Quasi-2D Perovskite, Mixed Ligand, Phase Distribution Regulation, Defect Passivation

Copyright © 2026 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

准二维钙钛矿因其迁移率高、带隙可调、半峰宽窄和可柔性制备等优势，在显示与照明领域展现出广阔的应用前景。近年来，红光准二维钙钛矿发光二极管(PeLEDs)在效率方面不断取得突破[1][2]，引起了研究者的广泛关注。根据有机间隔阳离子的不同，可将其分为两类：具有  $L_2A_{n-1}Pb_nX_{3n+1}$  结构通式的 Ruddlesden-Popper (RP)型和  $NA_{n-1}Pb_nX_{3n+1}$  结构通式的 Dion-Jacobson (DJ)型(其中，L 和 N 分别为单胺和双胺有机间隔层阳离子，A 为一价阳离子，X 为卤素离子，n 为无机八面体层数) [3]-[8]。准二维钙钛矿中无机八面体骨架与有机间隔层配体交替排列，形成含有不同 n 相的准二维钙钛矿结构[9][10]，不同 n 相之间通过能量漏斗效应，可以实现载流子从小 n 相(宽带隙)到大 n 相(窄带隙)之间的能量传递，有效抑制非辐射复合[11]，具有实现高性能红光准二维 PeLEDs 的潜力。近年来，准二维红光 PeLEDs 的性能参数汇总见附录表 A2。

有机间隔层配体对准二维钙钛矿的结构与性能至关重要，其分子结构决定了相分布与缺陷钝化能力。RP 型配体通过胺基与两端八面体骨架形成氢键连接，两个 RP 型配体之间通过弱范德华力连接，其分子构型柔性较大，有利于实现缺陷钝化，但易导致 n 相分布宽泛无序[12]；DJ 型配体直接通过双胺基与两端八面体骨架形成稳定氢键连接，避免了范德华力的低稳定性，但其配体自由度低，导致 DJ 配体难以像 RP 配体一样实现对缺陷位点有效钝化[13]。为了克服单一配体策略的局限性，研究者们提出了混合配体

策略[14][15]。Qing 等人报道了苯丁基碘化胺碘盐(PBAI)与  $\alpha$ -甲基苄碘化胺(MBZAI)组合的 PBAI-MBZAI 混合配体[16], 通过引入 MBZAI 有效钝化了不饱和配位  $Pb^{2+}$  缺陷。然而, RP-RP 混合配体的吸收光谱和 PL 光谱显示薄膜中同时存在  $n = 1$ 、 $n = 2$ 、 $n = 3$  及  $n \geq 4$  等多相共存, PL 强度偏低。通过进一步引入含  $K^+$  的添加剂优化后, 低维相( $n = 1$ )和高阶相( $n \geq 4$ )的生长受到抑制, 相分布收窄至以  $n = 2$ 、 $n = 3$  等目标发光相为主, 实现了 620 nm~650 nm 可调的纯红光发射。目前缺乏关于红光准二维钙钛矿中 DJ-DJ 混合配体策略的研究报道, 我们用一篇绿光领域文献举例。Qin 等人采用 1,6-己二胺氢溴酸盐(HDABr<sub>2</sub>)与 1,10-癸二胺氢溴酸盐(DDABr<sub>2</sub>)两种脂肪族二胺配体构建了 DJ-DJ 混合配体策略[17], 在绿光准二维钙钛矿中实现了相分布调控。测试结果表明, 单一 DJ 配体(如纯 HDABr<sub>2</sub> 或纯 DDABr<sub>2</sub>)本身已具备相对较窄的相分布, 主要呈现以  $n = 1$ 、 $n = 2$ 、 $n = 3$  为主的低维相分布。在此基础上, 通过调控 HDA 与 DDA 的混合比例(优化比例为 DDABr<sub>2</sub>:HDABr<sub>2</sub> = 0.75:0.25), 相分布继续收窄至以  $n = 2$ 、 $n = 3$  相为主, 薄膜 PLQY 从 10%提升至 50%, 器件 EQE 从 4%提升至 9.41%。然而, DJ-DJ 混合配体器件的态密度高达  $10^{16}$ ~ $10^{17}$  cm<sup>-3</sup> 量级, 最终需要额外引入三苯基氧化膦(TPPO)添加剂才能将 EQE 进一步提升至 12.85%。这些工作表明, 单纯依靠 RP-RP 混合配体虽能通过互补钝化功能增强缺陷钝化效果, 但对  $n$  相分布的调控能力仍有限。Qin 等人采用了混合两种脂肪族 DJ 配体的策略来调节前驱体的  $n$  值相, 但对缺陷钝化的提升有限。当前研究以同类型配体混合为主, 虽各有侧重, 但均难以同时解决相分布与缺陷态两大关键问题, 都需要额外添加剂辅助才能实现理想的相分布和缺陷钝化效果。

由于在红光领域 DJ-RP 混合配体策略鲜有研究, 我们同样用其他光色的例子探讨 DJ-RP 混合配体的策略是否适用于红光体系。Alahbakhshi 等人报道了乙二胺氢溴酸盐(EDBr<sub>2</sub>, DJ 型双胺)与甲基苯基氯化胺(MeCl, 芳香族 RP 型单胺)组合的 DJ-RP 混合配体策略, 根据 SEM 和 AFM 表征显示, 混合配体的薄膜针孔减少, 最终实现了 488 nm 的蓝光发射, EQE 从 3%提升至 9.22% [18]。Hu 等人采用 1,6-己二胺氢溴酸盐(HDABr<sub>2</sub>, 脂肪族 DJ 型双胺)与丙胺氢溴酸盐(PABr, 脂肪族 RP 型单胺)混合策略[19], 原文通过吸收光谱和 PL 光谱分析显示, 对照样品(仅 PABr)中存在多个激子吸收峰(对应  $n = 1$ 、 $n = 2$ 、 $n = 3$  多相共存); 引入 HDABr<sub>2</sub> 后, 吸收峰位更加集中, 低维相( $n = 1$ )特征峰极大减弱, 相分布显著收窄, SCLC 测试显示陷阱密度显著低于单配体样品, 薄膜 PLQY 从对照组的 46.5%提升至 78%。基于该策略的器件最大 EQE 从 5.2%提升至 12.2%。对比两个例子我们发现在 Alahbakhshi 等人的工作中未提供具体的  $n$  值相分布比例和陷阱密度数值, 且 EDBr<sub>2</sub> 碳链过短、MeCl 为芳香族刚性配体, 两类配体结构差异显著, 其协同机制尚不明确。相比之下, Hu 等人采用的 HDABr<sub>2</sub> 与 PABr 组合, 两类配体同属脂肪族骨架, 结构差异较小, 更有可能在结晶过程中形成良好的协同作用, 因此实现了相分布的收窄与缺陷密度的有效降低。然而, 将这一策略拓展至红光碘系准二维钙钛矿面临独特挑战。相较于蓝光卤素溴体系, I<sup>-</sup>半径更大, 导致[PbI<sub>6</sub>]<sup>4-</sup>八面体的扭曲倾向更强, 结晶动力学调控难度显著增加。同时引入 DJ 与 RP 两类配体时, 两者在成膜过程中容易发生相互竞争, 在碘环境下可能诱发相分离或晶体结构无序堆积, 对器件性能产生不利影响。以上因素导致基于 DJ-RP 混合配体的红光准二维钙钛矿研究鲜有涉及。

基于上述考虑, 本文提出一种脂肪族的 DJ-RP 混合配体策略, 旨在解决单一配体体系面临的相分布难以调控与缺陷态密度高的双重难题。我们选择 1,5-戊二胺氢碘酸盐(PDAI<sub>2</sub>)作为 DJ 型配体, 丙胺氢碘酸盐(PAI)作为 RP 型配体。在准二维钙钛矿结构中, 两个 PAI 分子排列形成的等效间隔长度与单个 PDAI<sub>2</sub> 分子的间隔长度相近。这种空间排列的结构兼容性, 为二者在结晶过程中形成构型匹配的混合间隔层、避免因长度失配导致的结构扭曲或相分离提供了基础(示意图见附录图 A1)。实验结果表明, DJ-RP 混合配体策略有效抑制了大  $n$  相的生长, 促进了  $n = 2$ 、 $n = 3$  相的形成, 显著收窄了相分布并实现了缺陷的有效钝化。基于此策略的准二维 PeLEDs 器件实现了 691 nm 的稳定深红光发射, 最大外量子效率(EQE)从 4.07%提升至 13.49%; 器件 T<sub>50</sub> 寿命从 0.06 h 延长至 0.82 h, 提升了 13 倍, 显著改善了器件的效率。

## 2. PeLED 的制备与表征

### 2.1. 实验材料

本研究所用材料：甲脒氢碘酸盐(FAI, >99.5%)、碘化铯(CsI, 99.9%)、碘化铅(PbI<sub>2</sub>, 99.99%)、溴化铅(PbBr<sub>2</sub>, 99.99%)、1,5-戊二胺氢碘酸盐(PDAI<sub>2</sub>, >99.0%)、丙胺氢碘酸盐(PAI, >99.0%)、氧化锌铝(Al-ZnO, 2.5 wt%乙醇溶液)购自西安宝莱特光电科技有限公司。无水二甲基亚砜(DMSO, 99.8%)、聚乙烯亚胺(PEI, 平均分子量~800)购自广州锂阁科技有限公司。三(4-咔唑-9-基苯基)胺(TCTA, >99.5%)、三氧化钼(MoO<sub>3</sub>, 99.99%)购自长春机光科技有限公司。铝颗粒(Al, 99.999%)购自蒂姆新材料技术有限公司。所有材料未经进一步纯化直接使用。

### 2.2. 钙钛矿前驱体溶液制备

钙钛矿前驱体溶液配制过程如下：将 FAI、CsI、PbI<sub>2</sub>、PbBr<sub>2</sub>、PDAI<sub>2</sub> 和 PAI 按照摩尔比 FA<sup>+</sup>:Cs<sup>+</sup>:Pb<sup>2+</sup> = 0.4:0.6:1.18 (其中 PbI<sub>2</sub>:PbBr<sub>2</sub> = 1:0.18) 溶解于无水 DMSO 中。其中, (PDAI<sub>2</sub> + PAI) 与 Pb<sup>2+</sup> 的摩尔比为 0.7:1。通过改变 PDAI<sub>2</sub> 与 PAI 的摩尔比来优化薄膜性能, 本文重点对比的体系为纯 PDAI<sub>2</sub> (即 PDAI<sub>2</sub>:PAI = 0.4:0) 和优化后的混合配体体系(PDAI<sub>2</sub>:PAI = 0.4:0.3)。将上述混合物在 60°C 加热搅拌 6 h, 随后在 40°C 下持续搅拌过夜, 得到澄清透明的前驱体溶液, 使用前经 0.22 μm 聚四氟乙烯(PTFE)滤头过滤。

### 2.3. 钙钛矿发光二极管制备

首先将干净的 ITO 进行 plasma 处理 15 min, 随后将 Al-ZnO 电子传输层旋涂在 ITO 上, 旋涂参数为 3000 rpm, 旋涂 30 s, 最后进行退火, 退火温度为 140°C, 时间 20 min, 形成电子传输层薄膜。其次在电子传输层上以 3000 rpm 以及 30 s 的旋涂参数继续旋涂 PEI 界面修饰层。接着将纯 DJ 配体和 DJ-RP 混合的钙钛矿前驱体溶液以 3000 rpm 旋涂到 PEI 界面修饰层上, 旋涂时间 71 s, 样品在 100°C 退火 10 min。自然冷却至室温, 得到准二维钙钛矿发光层薄膜; 最后在准二维钙钛矿薄膜表面, 利用真空蒸镀技术, 依次沉积空穴传输层 TCTA、界面修饰层 MoO<sub>3</sub> 和电极层 Al, 厚度分别为 30 nm、7 nm 和 150 nm。

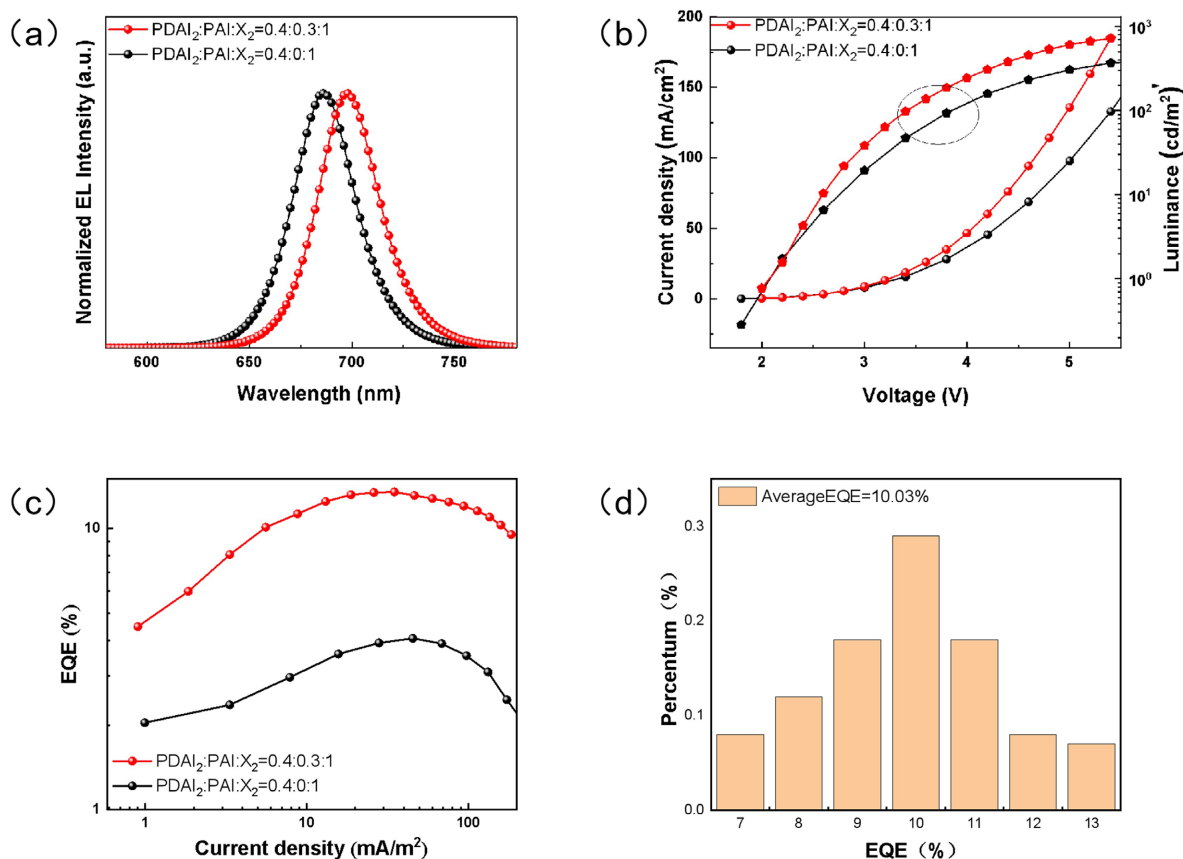
## 3. 结果与讨论

为了验证 DJ-RP 混合配体策略的有效性, 我们分别制备了基于单 DJ 配体、单 RP 配体和 DJ-RP 混合配体的准二维 PeLEDs 器件。其中, 基于单 RP 配体的器件未能测得有效性能数据, 可能源于其薄膜针孔多、薄膜覆盖率低(见附录图 A2), 导致空穴和电子直接穿过发光层淬灭。因此, 后续研究聚焦于单 DJ 与 DJ-RP 混合配体器件的对比分析。

由图 1(a)可知, 单 DJ 配体器件与 DJ-RP 混合配体器件的电致发光(EL)峰分别位于 686 nm 和 691 nm, 均实现了深红光发射。DJ-器件与混合器件的半峰宽(FWHM)均为 37 nm, 展现出优异的色纯度, 在高清显示领域具有良好的应用潜力。由图 1(b)电流密度 - 电压 - 亮度(*J-V-L*)曲线显示, DJ-器件的最大亮度为 369 cd/m<sup>2</sup>, 启亮电压(*V<sub>on</sub>*)为 2.4 V; 而混合器件的最大亮度为 723 cd/m<sup>2</sup>, *V<sub>on</sub>* 为 2.4 V, 表明混合配体策略有效改善了载流子注入效率[20]。由 EQE-*J* 曲线(图 1(c)中)可知, 混合器件的 EQE 从 4.07% 大幅提升至 13.49%, 我们将此归因于相分布与缺陷钝化的协同调控。图 1(d)为 32 个混合配体器件的 EQE 分布图, 平均 EQE 为 10.03%, 显示出良好的器件重复性。

器件稳定性对红光 PeLEDs 的实际应用至关重要。由附录图 A3(a)可知, PDAI<sub>2</sub>-PAI 混合器件在不同工作电压下均展现出优异的 EL 光谱稳定性, 说明混合配体策略没有影响器件的光谱稳定性。在恒流模式下, 我们以初始亮度 100 cd·m<sup>-2</sup> 对器件的 T<sub>50</sub> 寿命进行测试。如附录图 A3(b)所示, PDAI<sub>2</sub> 器件和 PDAI<sub>2</sub>-PAI 混合器件的 T<sub>50</sub> 值寿命分别为 0.06 h 和 0.82 h, 器件寿命提升约 13 倍。混合配体器件效率和寿命的

显著提高来源于缺陷钝化与相分布的协同调控效应[21], 将在后续部分进行详细讨论。



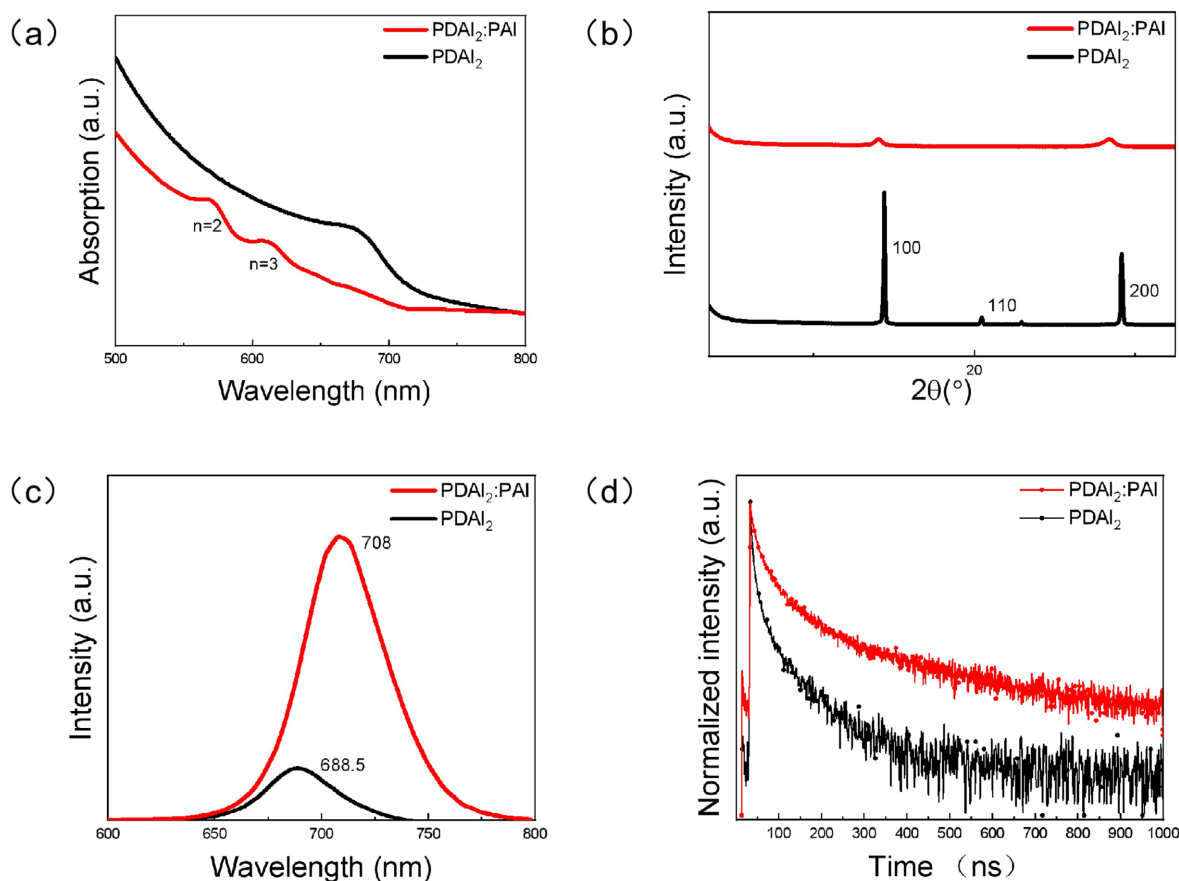
**Figure 1.** (a) EL spectrum of the single DJ and DJ-RP mixed ligand device; (b) J-V-L curve of the single DJ and DJ-RP mixed ligand device; (c) EQE-J curve of the single DJ and DJ-RP mixed ligand device; (d) Histogram of EQE measured from 32 DJ-RP mixed ligand devices

**图 1.** (a) 单 DJ 与 DJ-RP 混合配体器件的 EL 光谱; (b) 单 DJ 与 DJ-RP 混合配体器件的 J-V-L 曲线; (c) 单 DJ 与 DJ-RP 混合配体器件的 EQE-J 曲线; (d) 32 个 DJ-RP 混合配体器件得到的 EQE 直方图

为探究混合配体策略对钙钛矿薄膜相分布的调控作用, 我们进行了紫外-可见吸收(UV-Vis)光谱测试(图 2(a))。PDAl<sub>2</sub> 薄膜的光谱仅显示位于 670 nm 附近的吸收带, 归属于  $n \geq 4$  相, 未观察到低  $n$  相( $n \leq 3$ )的吸收峰, 不利于不同  $n$  相之间的能量转移。混合 PDAl<sub>2</sub>-PAI 薄膜在 596 nm 和 609 nm 处出现了两个明显的吸收峰, 分别归属于  $n = 2$  和  $n = 3$  相; 同时其位于 670 nm 附近的  $n \geq 4$  相吸收强度明显减弱。这一结果表明, 混合配体能够有效调控结晶过程, 促进特定小  $n$  相的形成[22]。X 射线衍射(XRD)分析进一步证实了混合配体对相分布的有效调控作用。如图 2(b)所示, PDAl<sub>2</sub> 薄膜和混合 PDAl<sub>2</sub>-PAI 薄膜在 14.4° 和 29.2° 处的衍射峰分别归属于大  $n$  相( $n \geq 4$ )的(100)和(200)晶面。与 PDAl<sub>2</sub> 薄膜相比, 混合薄膜的衍射峰强度显著减弱, 说明混合配体协同作用抑制了大  $n$  相的生长, 与紫外-可见吸收光谱结果一致。上述结果表明, 混合配体有助于优化相分布, 促进不同  $n$  相间的有效能量转移, 抑制非辐射复合[23]。

我们使用光致发光(PL)光谱与时间分辨光致发光(TRPL)测试评估混合配体策略的缺陷钝化效果。如图 2(c)所示, PDAl<sub>2</sub> 和 PDAl<sub>2</sub>-PAI 混合薄膜的 PL 峰分别位于 686 nm 和 705 nm, 这一红移与 UV-Vis 吸收光谱中带边吸收向长波方向的延伸(图 2(a))相对应[24]。同时, 混合配体薄膜的 PL 强度显著增强, 光致发光量子效率(PLQY)从 30.8%提升至 71.0%。为了研究混合配体光学性能提高的原因, 我们使用 TRPL

测试对其载流子复合行为进行表征。如图 2(d)和附录表 A1 所示,混合配体的平均激子寿命( $\tau_{avg}$ )由 8.06 ns 延长至 16.55 ns,说明缺陷被有效钝化。同时,根据附录公式(1)和(2)对辐射跃迁速率( $k_r$ )和非辐射跃迁速率( $k_{nr}$ )进行计算,其  $k_r:k_{nr}$  的比值从 0.45 显著提升至 2.45 (表 1)。上述结果表明,混合配体策略有效钝化了钙钛矿薄膜中的缺陷,抑制了非辐射复合,是器件性能提升的关键因素。



**Figure 2.** (a) Comparison of absorption spectra of single DJ ligand and mixed ligand perovskite films; (b) Comparison of XRD patterns of single DJ ligand and mixed ligand perovskite films; (c) PL spectra of single DJ ligand and mixed ligand films; (d) TRPL of the single DJ ligand and the mixed ligand film of DJ-RP

**图 2.** (a) 单 DJ 配体与混合配体钙钛矿薄膜吸收光谱对比; (b) 单 DJ 配体与混合配体钙钛矿薄膜 XRD 对比; (c) 单 DJ 配体与混合配体薄膜的 PL 光谱; (d) 单 DJ 配体与 DJ-RP 混合配体薄膜的 TRPL

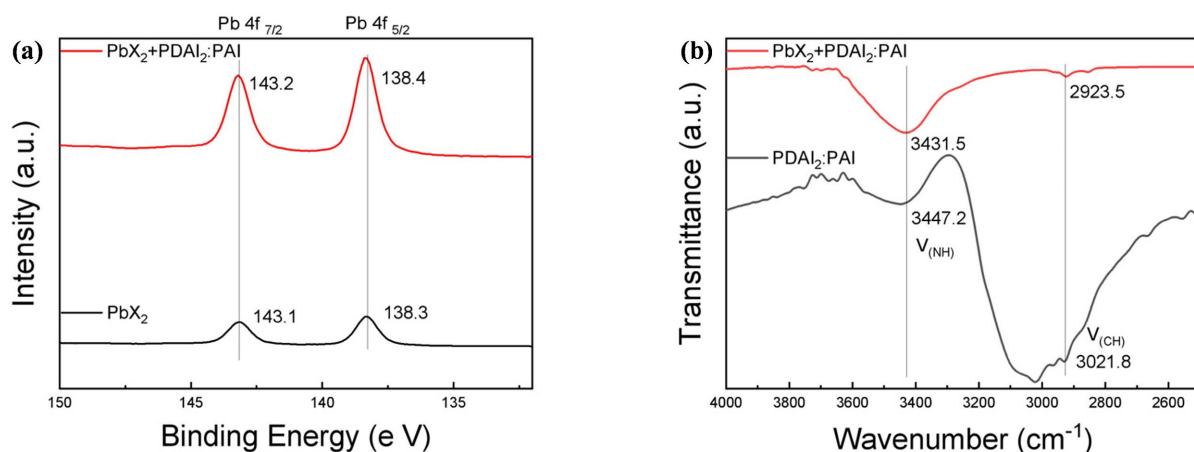
**Table 1.** Average PL lifetime ( $\tau_{avg}$ ), PL quantum yield (PLQY), radiative recombination rate ( $k_r$ ), and non-radiative recombination rate ( $k_{nr}$ ) of single DJ, RP and DJ-RP mixed quasi-two-dimensional perovskite materials

**表 1.** 单 DJ、RP 及 DJ-RP 混合准二维钙钛矿的 PL 平均寿命( $\tau_{avg}$ )、PLQY、辐射复合率( $k_r$ )和非辐射复合率( $k_{nr}$ )

Sample	$\tau_{avg}$ (ns)	PLQY (%)	$k_r$ ( $10^6 \text{ s}^{-1}$ )	$k_{nr}$ ( $10^6 \text{ s}^{-1}$ )	$k_r:k_{nr}$
PDAI <sub>2</sub>	8.06	30.8	38.21	85.86	0.45
PAI	5.79	20	34.54	138.17	0.25
PDAI <sub>2</sub> :PAI = 0.4:0.3	16.55	71	42.9	17.52	2.45

为揭示 PDAI<sub>2</sub>-PAI 混合配体策略的缺陷钝化机理,我们进行了 X 射线光电子能谱(XPS)和傅里叶变

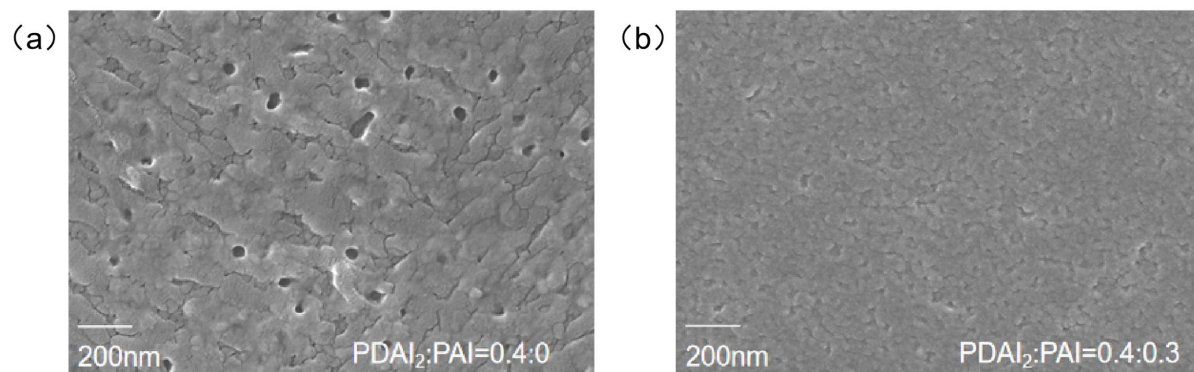
换红外光谱(FTIR)分析。XPS 测试(图 3(a))显示, 纯  $\text{PbX}_2$  样品的  $\text{Pb } 4f_{7/2}$  和  $4f_{5/2}$  特征峰分别位于 143.1 eV 和 138.3 eV;  $\text{PDAI}_2$ -PAI 混合配体与  $\text{PbX}_2$  共混后,  $\text{Pb } 4f_{7/2}$  和  $4f_{5/2}$  的结合能分别位移至 143.2 eV 和 138.4 eV, 证实  $\text{PDAI}_2$ -PAI 混合配体有效钝化了不饱和配位  $\text{Pb}^{2+}$  缺陷。FTIR 光谱(图 3(b))显示, DJ-RP 混合配体中 N-H 官能团的伸缩振动峰位于  $3447.2 \text{ cm}^{-1}$ , 与  $\text{PbX}_2$  共混后该振动峰红移至  $3431.5 \text{ cm}^{-1}$ , 这一现象归因于配体的 N-H 键与不饱和和  $\text{Pb}^{2+}$  缺陷的配位作用以及与卤素离子的氢键协同作用。上述结果共同证实了  $\text{PDAI}_2$ -PAI 混合配体对钙钛矿发光层缺陷的有效钝化[25] [26]。



**Figure 3.** (a) XPS of  $\text{PbX}_2$  compared with that of the mixed ligand  $\text{PbX}_2$ ; (b) FTIR spectra of the mixed ligand and the mixed ligand +  $\text{PbX}_2$

**图 3.** (a)  $\text{PbX}_2$  与混合配体  $\text{PbX}_2$  对比的 XPS; (b) 混合配体与混合配体 +  $\text{PbX}_2$  的 FTIR 光谱

我们进一步通过扫描电子显微镜(SEM)对薄膜的表面形貌进行表征。如图 4(a)所示,  $\text{PDAI}_2$  薄膜表面存在大量针孔。相比之下,  $\text{PDAI}_2$ -PAI 混合薄膜表面致密、光滑, 无明显针孔, 晶粒尺寸分布更均匀(图 4(b))。这一结果说明混合配体策略有效改善了薄膜质量, 有助于减少漏电流通道, 是混合器件性能提升的另一关键因素。综上所述,  $\text{PDAI}_2$ -PAI 混合配体策略性能提升源于相分布有效调控、缺陷有效钝化以及薄膜质量明显改善的协同效应, 表明基于无机层间等效长度上的结构兼容性选择合适的混合配体, 对钙钛矿薄膜的相分布与缺陷态进行协同调控, 是实现有效准二维红光 PeLEDs 的有效策略[27] [28]。



**Figure 4.** (a) SEM image of single DJ ligand perovskite film; (b) SEM image of DJ-RP mixed ligand perovskite film

**图 4.** (a) 单 DJ 配体的钙钛矿薄膜的 SEM 图; (b) DJ-RP 混合配体的钙钛矿薄膜的 SEM 图

## 4. 结语

本研究提出一种脂肪族 DJ-RP 混合配体策略, 通过选择间隔长度匹配的 PDAL<sub>2</sub> (DJ 型) 和 PAI (RP 型) 配体, 实现了对红光准二维钙钛矿薄膜相分布与缺陷态的协同调控。实验结果表明, 混合配体策略有效钝化了钙钛矿发光层缺陷, 非辐射复合被有效抑制。同时, 该策略有效促进了小 n 相 (n = 2、n = 3) 的形成, 抑制了大 n 相生长, 优化了相分布。PDAL<sub>2</sub>-PAI 混合薄膜的 PLQY 从 30.8% 提升至 71%。相应准二维 PeLEDs 器件实现了 691 nm 的稳定深红光发射, 最大外量子效率由 4.07% 提升至 13.49%, 较单 DJ 体系提升 3 倍; 器件 T<sub>50</sub> 寿命由 0.06 h 延长至 0.82 h, 提升约 13 倍。我们的研究表明, 间隔长度匹配的脂肪族 DJ-RP 混合配体策略, 能够协同解决单一配体体系面临的相分布与缺陷钝化难以协同优化的难题, 为实现高性能红光准二维 PeLEDs 提供了一条有效途径。

## 基金项目

广东省研究生教育创新计划项目(2025KCJS\_098)。

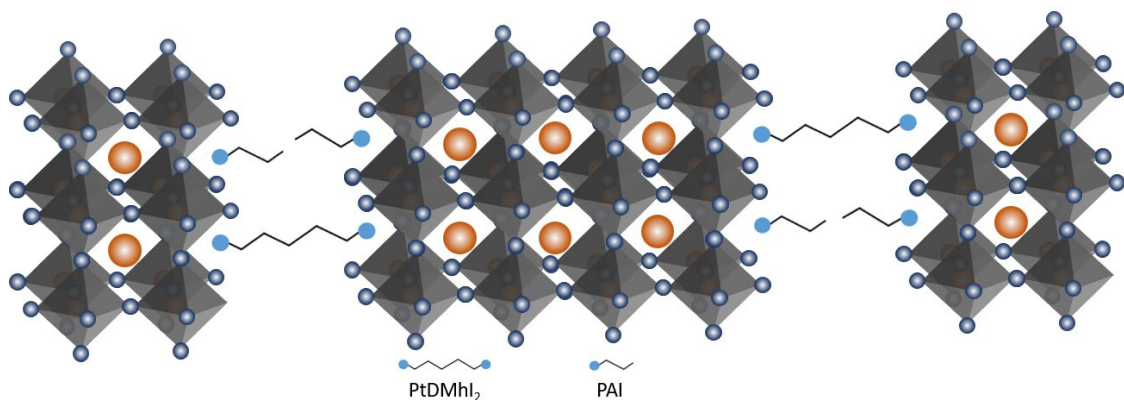
## 参考文献

- [1] Saki, Z., Byranvand, M.M., Taghavinia, N., Kedia, M. and Saliba, M. (2021) Solution-Processed Perovskite Thin-Films: The Journey from Lab- to Large-Scale Solar Cells. *Energy & Environmental Science*, **14**, 5690-5722. <https://doi.org/10.1039/d1ee02018h>
- [2] Xiao, K., Wen, J., Han, Q., Lin, R., Gao, Y., Gu, S., *et al.* (2020) Solution-Processed Monolithic All-Perovskite Triple-Junction Solar Cells with Efficiency Exceeding 20%. *ACS Energy Letters*, **5**, 2819-2826. <https://doi.org/10.1021/acseenergylett.0c01184>
- [3] Lai, Z., Meng, Y., Zhu, Q., Wang, F., Bu, X., Li, F., *et al.* (2021) High-Performance Flexible Self-Powered Photodetectors Utilizing Spontaneous Electron and Hole Separation in Quasi-2D Halide Perovskites. *Small*, **17**, e21100442. <https://doi.org/10.1002/sml.202100442>
- [4] Lai, Z., Dong, R., Zhu, Q., Meng, Y., Wang, F., Li, F., *et al.* (2020) Bication-Mediated Quasi-2D Halide Perovskites for High-Performance Flexible Photodetectors: From Ruddlesden-Popper Type to Dion-Jacobson Type. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **12**, 39567-39577. <https://doi.org/10.1021/acsaami.0c09651>
- [5] Zhao, C., Wu, W., Zhan, H., Yuan, W., Li, H., Zhang, D., *et al.* (2022) Phosphonate/Phosphine Oxide Dyad Additive for Efficient Perovskite Light-Emitting Diodes. *Angewandte Chemie International Edition*, **61**, e202117374. <https://doi.org/10.1002/anie.202117374>
- [6] Liu, N., You, F., Ji, C., Gong, H., Song, Q., Li, J., *et al.* (2021) Bright All-Solution-Processed CsPbBr<sub>3</sub> Perovskite Light Emitting Diodes Optimized by Quaternary Ammonium Salt. *Current Applied Physics*, **31**, 60-67. <https://doi.org/10.1016/j.cap.2021.07.013>
- [7] Kim, J.S., Heo, J., Park, G., Woo, S., Cho, C., Yun, H.J., *et al.* (2022) Ultra-Bright, Efficient and Stable Perovskite Light-Emitting Diodes. *Nature*, **611**, 688-694. <https://doi.org/10.1038/s41586-022-05304-w>
- [8] Jiang, Y., Sun, C., Xu, J., Li, S., Cui, M., Fu, X., *et al.* (2022) Synthesis-on-Substrate of Quantum Dot Solids. *Nature*, **612**, 679-684. <https://doi.org/10.1038/s41586-022-05486-3>
- [9] Yang, X., Chu, Z., Meng, J., Yin, Z., Zhang, X., Deng, J., *et al.* (2019) Effects of Organic Cations on the Structure and Performance of Quasi-Two-Dimensional Perovskite-Based Light-Emitting Diodes. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, **10**, 2892-2897. <https://doi.org/10.1021/acs.jpcclett.9b00910>
- [10] Nah, Y., Solanki, D., Dong, Y., Röhr, J.A., Taylor, A.D., Hu, S., *et al.* (2022) Narrowing the Phase Distribution of Quasi-2D Perovskites for Stable Deep-Blue Electroluminescence. *Advanced Science*, **9**, e2201807. <https://doi.org/10.1002/advs.202201807>
- [11] Chen, C., Li, Z., Xue, Q., Su, Y., Lee, C., Yip, H., *et al.* (2019) Engineering of Perovskite Light-Emitting Diodes Based on Quasi-2D Perovskites Formed by Diamine Cations. *Organic Electronics*, **75**, Article ID: 105400. <https://doi.org/10.1016/j.orgel.2019.105400>
- [12] Gong, J., Hao, M., Zhang, Y., Liu, M. and Zhou, Y. (2022) Layered 2D Halide Perovskites Beyond the Ruddlesden-Popper Phase: Tailored Interlayer Chemistries for High-Performance Solar Cells. *Angewandte Chemie International Edition*, **61**, e202112022. <https://doi.org/10.1002/anie.202112022>
- [13] Guo, W., Yang, Z., Dang, J. and Wang, M. (2021) Progress and Perspective in Dion-Jacobson Phase 2D Layered Perovskite

- Optoelectronic Applications. *Nano Energy*, **86**, Article ID: 106129. <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2021.106129>
- [14] Xing, J., Zhao, Y., Askerka, M., Quan, L.N., Gong, X., Zhao, W., *et al.* (2018) Color-Stable Highly Luminescent Sky-Blue Perovskite Light-Emitting Diodes. *Nature Communications*, **9**, Article No. 3541. <https://doi.org/10.1038/s41467-018-05909-8>
- [15] Meng, F., Liu, X., Chen, Y., Cai, X., Li, M., Shi, T., *et al.* (2020) Co-Interlayer Engineering toward Efficient Green Quasi-Two-Dimensional Perovskite Light-Emitting Diodes. *Advanced Functional Materials*, **30**, Article ID: 1910167. <https://doi.org/10.1002/adfm.201910167>
- [16] Qing, J., Ramesh, S., Xu, Q., Liu, X., Wang, H., Yuan, Z., *et al.* (2021) Spacer Cation Alloying in Ruddlesden-Popper Perovskites for Efficient Red Light-Emitting Diodes with Precisely Tunable Wavelengths. *Advanced Materials*, **33**, Article ID: 2104381. <https://doi.org/10.1002/adma.202104381>
- [17] Qin, X., Liu, F., Leung, T.L., Sun, W., Chan, C.C.S., Wong, K.S., *et al.* (2022) Compositional Optimization of Mixed Cation Dion-Jacobson Perovskites for Efficient Green Light Emission. *Journal of Materials Chemistry C*, **10**, 108-114. <https://doi.org/10.1039/d1tc04743d>
- [18] Alahbakhshi, M., Mishra, A., Verkhogliadov, G., Turner, E.E., Haroldson, R., Adams, A.C., *et al.* (2023) Highly Efficient Quasi 2D Blue Perovskite Electroluminescence Leveraging a Dual Ligand Composition. *Advanced Functional Materials*, **33**, Article ID: 2214315. <https://doi.org/10.1002/adfm.202214315>
- [19] Hu, J., Li, J., Lu, G., Zhang, D., Cai, Q., Wang, X., *et al.* (2024) Monoammonium Modified Dion-Jacobson Quasi-2D Perovskite for High Efficiency Pure-Blue Light Emitting Diodes. *Small*, **20**, Article ID: 2402786. <https://doi.org/10.1002/smll.202402786>
- [20] Qin, C., Xu, L., Zhou, Z., Song, J., Ma, S., Jiao, Z., *et al.* (2022) Carrier Dynamics in Two-Dimensional Perovskites: Dion-Jacobson vs. Ruddlesden-Popper Thin Films. *Journal of Materials Chemistry A*, **10**, 3069-3076. <https://doi.org/10.1039/d1ta09549h>
- [21] Dong, W., Zhang, X., Yang, F., Zeng, Q., Yin, W., Zhang, W., *et al.* (2022) Amine-Terminated Carbon Dots Linking Hole Transport Layer and Vertically Oriented Quasi-2D Perovskites through Hydrogen Bonds Enable Efficient LEDs. *ACS Nano*, **16**, 9679-9690. <https://doi.org/10.1021/acsnano.2c03064>
- [22] Quan, L.N., Zhao, Y., García de Arquer, F.P., Sabatini, R., Walters, G., Voznyy, O., *et al.* (2017) Tailoring the Energy Landscape in Quasi-2D Halide Perovskites Enables Efficient Green-Light Emission. *Nano Letters*, **17**, 3701-3709. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.7b00976>
- [23] Yuan, M., Quan, L.N., Comin, R., Walters, G., Sabatini, R., Voznyy, O., *et al.* (2016) Perovskite Energy Funnels for Efficient Light-Emitting Diodes. *Nature Nanotechnology*, **11**, 872-877. <https://doi.org/10.1038/nnano.2016.110>
- [24] Quan, L.N., Zhao, Y., García de Arquer, F.P., Sabatini, R., Walters, G., Voznyy, O., *et al.* (2017) Tailoring the Energy Landscape in Quasi-2D Halide Perovskites for Efficient Green-Light Emission. *Advanced Materials*, **29**, Article ID: 1605945.
- [25] Chu, Z., Ye, Q., Zhao, Y., Ma, F., Yin, Z., Zhang, X., *et al.* (2021) Perovskite Light-Emitting Diodes with External Quantum Efficiency Exceeding 22% via Small-Molecule Passivation. *Advanced Materials*, **33**, Article ID: 2007169. <https://doi.org/10.1002/adma.202007169>
- [26] Nenon, D.P., Pressler, K., Kang, J., Koscher, B.A., Olshansky, J.H., Osowiecki, W.T., *et al.* (2018) Design Principles for Trap-Free CsPbX<sub>3</sub> Nanocrystals: Enumerating and Eliminating Surface Halide Vacancies with Softer Lewis Bases. *Journal of the American Chemical Society*, **140**, 17760-17772. <https://doi.org/10.1021/jacs.8b11035>
- [27] Cheng, T., Tumen-Ulzii, G., Klotz, D., Watanabe, S., Matsushima, T. and Adachi, C. (2020) Ion Migration-Induced Degradation and Efficiency Roll-Off in Quasi-2D Perovskite Light-Emitting Diodes. *ACS Applied Materials & Interfaces*, **12**, 33004-33013. <https://doi.org/10.1021/acsami.0c06737>
- [28] Ye, F., Shan, Q., Zeng, H. and Choy, W.C.H. (2021) Operational and Spectral Stability of Perovskite Light-Emitting Diodes. *ACS Energy Letters*, **6**, 3114-3131. <https://doi.org/10.1021/acsenerylett.1c01545>
- [29] Zhang, X., Einhaus, L., Huijser, A. and ten Elshof, J.E. (2024) Manipulation of Crystal Orientation and Phase Distribution of Quasi-2D Perovskite through Synergistic Effect of Additive Doping and Spacer Engineering. *Inorganic Chemistry*, **63**, 5246-5259. <https://doi.org/10.1021/acs.inorgchem.4c00335>
- [30] Yang, Y., *et al.* (2015) Comparison of Recombination Dynamics in CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbBr<sub>3</sub> and CH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>PbI<sub>3</sub> Perovskite Films: Influence of Exciton Binding Energy. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, **6**, 4688-4693.
- [31] Meng, F., Shi, S., Chen, Z., Li, B., Lu, X., Feng, Q., *et al.* (2025) Synergistic Mixed Halide and Additive Strategy for Efficient Pure Red Quasi-2D Perovskite Light-Emitting Diodes. *Journal of Materials Chemistry C*, **13**, 7352-7357. <https://doi.org/10.1039/d5tc00131e>
- [32] Yu, A., Wang, J., Huo, Y., Wang, S., Zhang, X., He, T., *et al.* (2025) Promoting Phase Transition in Quasi-2D Perovskites for High-Performance Pure-Red LEDs. *Advanced Materials*, **37**, e2503704. <https://doi.org/10.1002/adma.202503704>
- [33] Qu, Y., Zhan, H.-M., Zhao, C.-Y., Cheng, Y.-X. and Qin, C.-J. (2025) Effect of Chiral Ligand Structure on Red Quasi-2D

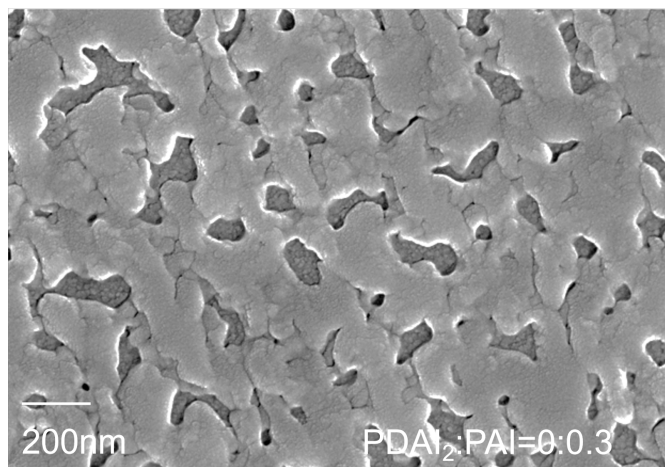
- 
- Perovskites Circularly Polarized Electroluminescence. *Chinese Journal of Luminescence*, **42**, 776-784. (In Chinese)
- [34] Jiang, J., Chu, Z., Yin, Z., Li, J., Yang, Y., Chen, J., *et al.* (2022) Red Perovskite Light-Emitting Diodes with Efficiency Exceeding 25% Realized by Co-Spacer Cations. *Advanced Materials*, **34**, Article ID: 2204460. <https://doi.org/10.1002/adma.202204460>
- [35] Tian, Y., Zhou, C., Worku, M., Wang, X., Ling, Y., Gao, H., *et al.* (2018) Highly Efficient Spectrally Stable Red Perovskite Light-Emitting Diodes. *Advanced Materials*, **30**, Article ID: 1707093. <https://doi.org/10.1002/adma.201707093>
- [36] Liu, S., Zhang, D., Wang, L., Li, B., Yuan, W., Xiong, Z., *et al.* (2026) *In-Situ* Formation of Oriented Perovskite Nanosheets with Tailored Optical Dipoles Enabling >30% EQE in Pure-Red LEDs. *Light: Science & Applications*, **15**, Article No. 163. <https://doi.org/10.1038/s41377-026-02184-x>

## 附录



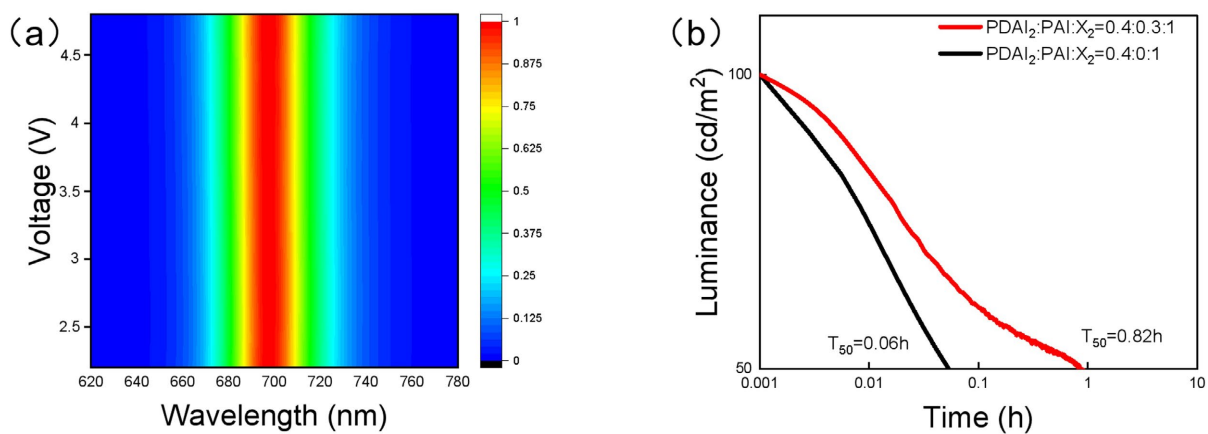
**Figure A1.** Crystal structure schematic diagram of the DJ-RP mixed ligand device

**图 A1.** DJ-RP 混合配体器件晶体结构示意图



**Figure A2.** SEM image of single RP ligand perovskite film

**图 A2.** 单 RP 配体的钙钛矿薄膜的 SEM 图



**Figure A3.** (a) Two-dimensional electroluminescence-voltage (EL-V) plot of the DJ-RP mixed ligand device; (b) Operational lifetime ( $T_{50}$ ) measurement under constant-current driving mode at an initial luminance of  $100 \text{ cd}\cdot\text{m}^{-2}$

**图 A3.** (a) DJ-RP 混合配体器件的 EL-V 二维图; (b) 在恒定电流模式下初始亮度为  $100 \text{ cd}\cdot\text{m}^{-2}$  的  $T_{50}$  器件寿命测量

**Table A1.** TRPL triple-exponential fitting data table for single DJ, RP and DJ-RP mixed quasi-2D perovskites  
**表 A1.** 单 DJ、RP 及 DJ-RP 混合准二维钙钛矿的 TRPL 采用三指数拟合数据表

Sample	$A_1$	$\tau_1$ (ns)	$A_2$	$\tau_2$ (ns)	$A_3$	$\tau_3$ (ns)	$\tau_{avg}$ (ns)
PDAI <sub>2</sub>	2003	1.90	804	15.49	500	21.20	8.06
PAI	2505	2.08	1199	10.86	296	20.53	5.79
PDAI <sub>2</sub> :PAI = 0.4:0.3	1009	3.04	1505	15.07	804	36.39	16.55

辐射复合率( $k_r$ )和非辐射复合率( $k_{nr}$ )用下面的公式(1)和(2)估算:

$$k_r = \frac{PLQY}{\tau_{avg}} \quad (1)$$

$$k_{nr} = \frac{1}{\tau_{avg}} - k_r \quad (2)$$

**Table A2.** Summary of performance parameters of quasi-two-dimensional red PeLEDs in recent years

**表 A2.** 近年来准二维红光 PeLEDs 的性能参数汇总

年份	策略/关键组分	发光峰(nm)	EQE (%)	亮度(cd/m <sup>2</sup> )	稳定性(T <sub>50</sub> )	参考文献
2022	混合大体积有机阳离子 (Co-Spacer Cations)	680	25.8	1,300	—	[29]
2022	对称分子 FDPA 添加剂	653	18.5	2,545	—	[30]
2024	双端锚定配体 MOPA	638	28.7	11,500	>7,600 min	[31] [32]
2025	醋酸根阴离子配位诱导相变	641	25.3	—	—	[33]
2025	混合卤素 + TDA 添加剂	650	12.39	—	—	[34]
2025	手性配体 R-MPEAI	641	7.25	—	—	[35]
2026	原位构筑取向准二维钙钛矿 纳米片	635	31.2	13,400	—	[36]