

陈若天——未来三年工作计划

研究目标

本项目的研究将聚焦光催化太阳能转化过程中光生电荷如何高效分离和转移等关键基础科学问题,发展和利用时空分辨和原位液相的电荷成像技术研究微纳米尺度光生电荷分离、转移和动态演化过程,建立对电荷分离和转移过程的微观机制和本质驱动力的深入认识,提出实现高效电荷分离的光催化剂构筑策略,推动太阳能光催化领域的发展。

研究背景

太阳能光催化分解水制氢以及进一步还原二氧化碳生产液态燃料被认为是变革性的清洁能源技术,一旦该技术取得突破,有望从根本上改变过度依赖化石能源的现状,成为人类生态文明建设和可持续发展的基础。然而,目前光催化太阳能转化的效率仍远低于工业应用水平,其主要瓶颈在于人们对光催化电荷转移复杂的微观机制认识不清,从而无法理性的设计高效的光催化体系。光催化电荷转移过程十分复杂,时间上横跨跨越飞秒至秒级的多个量级时间尺度,空间上跨越从亚纳米尺度到微米尺度的距离,且涉及体相至表面电荷分离、固固界面和固液界面电荷转移等多重复杂的微观表界面过程。这些多重复杂的固液相表界面过程和多时空尺度的复杂性使得长久以来认识光催化电荷转移过程十分挑战。

研究内容

1. 发展时空分辨的电荷转移成像新技术。

拟在前期发展的稳态表面光电压显微镜电荷成像的基础上发展时空分辨的

表面光电压成像技术。由于原子力显微镜内在的锁相回路和反馈回路的时间限制，其进行表面光电压成像研究的时间分辨能力仅能到毫秒尺度。该项目拟创新地通过利用频率调制光电压信号的相位时间函数克服原子力显微镜本身的毫秒时间极限。对于一个单一的电荷分离过程，其相位时间函数有如下关系： $\tau = T \frac{\tan \theta}{2\pi}$ ，其中 τ 为该过程动力学时间常数， T 为斩波周期， θ 为测量的相位值。在 10^{-3} s 检测周期和 0.005° 相位检测精度时，可以测量的微观电荷分离过程时间 τ 可以拓展到 10^{-8} s。因此有望实现纳米空间尺度和纳秒时间尺度的光电压成像研究。进一步结合前期发展的 fs-ns 时间分辨的光发生电子显微镜和 ms-s 时间分辨的表面光电压显微镜，有望实现全时空尺度的光催化电荷转移成像研究。

2. 利用所发展的时空分辨光电压成像技术对高效光催化体系进行全时空尺度电荷转移成像研究。

拟选取光催化全分解水效率较高的光催化体系，铝掺杂的钛酸锶光催化剂和锌镓氧氮固溶体光催化剂颗粒，利用所发展的先进的时空分辨电荷成像技术对实际全分解水光催化剂中电荷分离和转移过程进行直接观察，揭示其中多重复杂的电荷转移机制，明析其中电荷分离和转移关键内在驱动力，诊断其中出现效率和能量损失的瓶颈问题，提出优化的光催化剂设计策略。

3. 发展光催化剂溶液界面电荷转移微观策略技术，揭示高效界面电荷转移机制。

拟通过结合纳米金属电极、原位光电化学和差分方法的方法发展原位在线反应条件下表（电）催化体系表界面电化学势和光电压微观测量技术，研究光催化反应条件下半导体/助催化剂和半导体/溶液等界面电荷转移规律，探索高效的界面电荷转移机制，提出高效电荷提取和利用策略。

预期结果

1. 实现单个光催化剂颗粒上全时空尺度的电荷转移成像研究和光催化剂溶液界面电荷转移成像研究。
2. 发现和揭示光催化高效电荷转移新机制，提出光催化剂理性设计策略。
3. 预期申请仪器相关专利 2-3 项，在国内外顶级学术期刊发表高水平论文 3-5 篇。