

收藏本站 设为首页

English 联系我们 网站地图 邮箱 旧版回顾



面向世界科技前沿, 面向国家重大需求, 面向国民经济主战场, 率先实现科学技术跨越发展,  
率先建成国家创新人才高地, 率先建成国家高水平科技智库, 率先建设国际一流科研机构。

——中国科学院办院方针



官方微博



官方微信

首页 组织机构 科学研究 人才教育 学部与院士 资源条件 科学普及 党建与创新文化 信息公开 专题

搜索

首页 &gt; 科研进展

## 大连化物所揭示二氧化钛中Ti<sup>3+</sup>相关电子结构物理本质

文章来源: 大连化学物理研究所 发布时间: 2015-07-22 【字号: 小 中 大】

我要分享

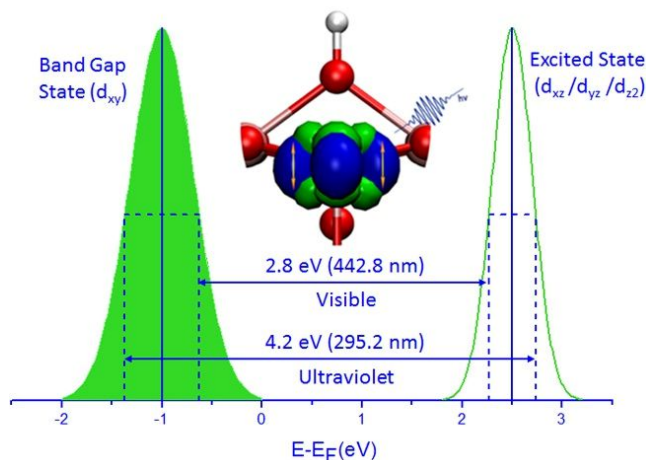
近日, 中国科学院大连化学物理研究所分子反应动力学国家重点实验室研究员杨学明、博士周传耀和博士生王志强等与北京计算科学研究中心研究员刘利民以及普林斯顿大学教授Annabella Selloni合作, 结合双光子光电能谱(two-photon photoemission spectroscopy; 2PPE)和理论计算, 揭示了二氧化钛中Ti<sup>3+</sup>离子3d轨道由于John-Teller效应分裂成费米能级以下1eV的带隙态和费米能级之上2.5eV的激发态的物理本质。由于带隙态和激发态本身的宽度, 通过Ti<sup>3+</sup>离子带隙态到激发态的跃迁(局域的d→d跃迁)将TiO<sub>2</sub>的吸收光谱扩展到可见光区域, 成功解释了Ti<sup>3+</sup>自掺杂导致的吸收光谱和可见光催化活性。相关研究成果以*Localized Excitation of Ti<sup>3+</sup> Ions in the Photoabsorption and Photocatalytic Activity of Reduced Rutile TiO<sub>2</sub>*为题在线发表在《美国化学会志》(DOI: 10.1021/jacs.5b04483)上。

作为光催化、太阳能转化等诸多研究领域的模型催化剂, 二氧化钛容易被还原, 形成Ti<sup>3+</sup>并伴随Ti 3d性质带隙态的出现。杨学明、周传耀和刘利民在前期的工作中已经确定了带隙态和Ti<sup>3+</sup>浓度的定量关系(*J. Phys. Chem. Lett.*, 2013, 4, 3839)。带隙态是TiO<sub>2</sub>中d→d跃迁的基态电子态, 与光吸收密切相关, 如还原性TiO<sub>2</sub>呈蓝色以及Ti<sup>3+</sup>自掺杂实现可见光催化。相比于对带隙态的透彻研究, 对激发态的了解非常有限, 其中一个重要的原因是实验测量的困难。实验数据的缺乏又是导致激发态电子结构理论计算方法发展缓慢的一个重要因素。2PPE采用1+1泵浦-探测的方式, 是研究激发态电子结构和超快电子动力学的有力实验方法。过去几年中, 周传耀等采用该方法深入研究了醇类在TiO<sub>2</sub>(110)表面的光催化解离(*Chemical Science*, 2010, 1, 575; *Chemical Science*, 2011, 2, 1980; *Energy and Environmental Science*, 2012, 5, 6833)。本工作中, 周传耀和王志强等通过变波长2PPE发现TiO<sub>2</sub>(110)费米能级以上2.5±0.2 eV处的电子激发态是一个与Ti<sup>3+</sup>相关的固有电子态, 而不是之前报道的吸附质的空轨道(*Science*, 2005, 308, 1154; *Science*, 2006, 311, 1436)。刘利民和Annabella Selloni等应用基于杂化泛函(HSE06)的密度泛函理论计算证实了实验结果, 并明确了带隙态的d<sub>xy</sub>属性和激发态的d<sub>xz</sub>/d<sub>yz</sub>/d<sub>z<sup>2</sup></sub>属性。

该成果一方面澄清了TiO<sub>2</sub>(110)费米能级以上2.5±0.2 eV处电子激发态的物理本质, 另一方面解释了Ti<sup>3+</sup>自掺杂对TiO<sub>2</sub>吸收光谱的扩展进而实现可见光催化的原因, 同时为研究金属氧化物的基态和激发态电子结构提供了一个范例。

该研究得到了国家自然科学基金委、科技部973计划和中科院重大突破择优支持等相关项目的资助。

### Extended Photoabsorption via the Localized Excitation of Ti<sup>3+</sup> in TiO<sub>2</sub>



大连化物所揭示二氧化钛中Ti<sup>3+</sup>相关电子结构物理本质

### 热点新闻

#### 发展中国家科学院第28届院士大...

14位大陆学者当选2019年发展中国家科学...  
青藏高原发现人类适应高海拔极端环境最...  
中科院举行离退休干部改革创新形势...  
中科院与铁路总公司签署战略合作协议  
中科院与内蒙古自治区签署新一轮全面科...

### 视频推荐

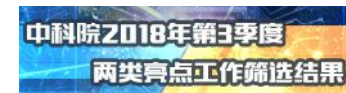


【新闻联播】“率先行动”  
计划 领跑科技体制改革



【朝闻天下】邵明安: 为绿  
水青山奋斗一生

### 专题推荐



(责任编辑: 麻晓东)



© 1996 - 2018 中国科学院 版权所有 京ICP备05002857号 京公网安备110402500047号 联系我们  
地址: 北京市三里河路52号 邮编: 100864