二维平面异质结构实现光生载流子快速分离和传输

吴 凯

(北京大学化学与分子工程学院, 北京 100871)

Two-Dimensional in-Plane Heterostructure Achieving Fast Photocarrier Separation and Transfer

WU Kai

(School of Chemistry and Molecular Engineering, Peking University, Beijing 100871, P. R. China)

随着全球经济和技术的快速发展, 传统的化石能源的过度消耗引起了严重的环境污染和能源短缺等世界性问题, 开发新型能源技术已成为当前人类发展所面临的重要目标¹。利用光催化水分解把太阳能转变为氢能的方式被普遍认为是解决人类未来能源的有效途径之一, 这亟需高效、稳定和廉价的太阳能水分解制氢催化剂材料。然而, 在体相材料的光催化水分解过程中, 长的迁移距离、缓慢的迁移速率使得大量光生电子-空穴在到达表面活性位点前就发生复合, 严重制约了光解水能量转换效率的提升。

为实现光生载流子的快速分离, 需要发展新材料或构建新结构。传统的掺杂改性能够加快光生载流子传输, 同时也极易引入光生载流子复合中心; 由二维材料有序堆叠形成的范德瓦尔斯异质结构能够有效减少光生载流子的体相复合, 但其弱的层间范德瓦尔斯力难以驱动光生载流子在层间的有效传输²⁻⁵。为克服光生载流子迁移驱动力不足的缺陷, 需要在二维材料内引入较强的内建电场并进一步改善其电荷的传导特性, 才能够引导光生载流子在二维平面内的快速传输, 实现光生载流子的有效分离, 显著提升其光催化水分解效率。

最近, 中国科学技术大学国家同步辐射实验室韦世强教授研究组以二维氮化碳(g-C₃N₄)材料为基质, 提出了构建新型二维 π 共轭平面异质结构实现光生载流子在二维平面内快速分离的理念, 并利用同步辐射技术深入研究异质结构的构效关系, 研究结果发表在 *Journal of the American*

Chemical Society 杂志上⁶。通过将碳环嵌入类石墨烯材料 sp^2 杂化的二维平面内形成 π 共轭键连接的平面异质结构, 利用局域微区异质界面内建电场及时快速地驱动光生电子和空穴空间分离, 显著提升了光生载流子的平均迁移长度和有效寿命。同步辐射 X 射线吸收谱学技术以及电化学方法揭示了光生电子-空穴快速分离的内在机制, 发现碳环强的电子亲和力和能及时俘获光生电子, 并将平面电荷去局域化促进空穴传输, 从而有效抑制光生载流子的复合。他们所设计的 C_{ring}-C₃N₄ 平面异质结构不但能有效拓展催化剂对太阳光谱的吸收, 而且显著提升了其可见光全解水的效率。该工作有效分离了光生载流子, 极大提高了太阳能转换效率, 为构建新型太阳能转换材料提供了新的理念和结构设计。

References

- (1) Lewis, N. S. *Science* **2016**, 351, 353. doi: 10.1126/science.aad5117
- (2) Zhang, G.; Zhang, M.; Ye, X.; Qiu, X.; Lin, S.; Wang, X. *Adv. Mater.* **2014**, 26, 805. doi: 10.1002/adma.201303611
- (3) Deng, D.; Novoselov, K. S.; Fu, Q.; Zheng, N.; Tian, Z.; Bao, X. *Nat. Nanotech.* **2016**, 11, 218. doi: 10.1038/nnano.2015.340
- (4) Duan, X.; Wang, C.; Pan, A.; Yu, R.; Duan, X. *Chem. Soc. Rev.* **2015**, 44, 8859. doi: 10.1039/C5CS00507H
- (5) Di Valentin, C.; Pacchioni, G. *Acc. Chem. Res.* **2014**, 47, 3233. doi: 10.1021/ar4002944
- (6) Che, W.; Cheng, W. R.; Yao, T.; Tang, F. M.; Liu, W.; Su, H.; Huang, Y. Y.; Liu, Q. H.; Liu, J. K.; Hu, F. C.; Pan, Z. Y.; Sun, Z. H.; Wei, S. Q. *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, doi: 10.1021/jacs.6b11878