奥里维里斯相铁电材料光解水制氢研究获进展

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/25324.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

奥里维里斯相铁电材料光解水制氢研究获进展。太阳能光催化分解水制氢是获取绿氢极具潜力的技术，其走向应用的关键是发展高效稳定的半导体光催化材料。铁电光催化材料（例如PbTiO3、BiFeO3、Na0.5Bi0.5TiO3和Bi3TiNbO9）由于具有能够促进光生载流子分离的内建电场而广受关注。其中，Bi3TiNbO9是一种奥里维里斯（Aurivillius）型层状铁电光催化材料，具有沿a轴方向的退极化场，该内建电场源自(Bi2O2)2+层中的铋原子和(BiTiNbO7)2-中的氧原子发生偶极相互作用而产生晶格畸变。在退极化场驱动和层间扩散约束下，电子倾向于富集在{001}面，而空穴富集在{110}面，从而实现了光生电荷和反应位点的空间分离。然而，Bi3TiNbO9中产生的光生电子沿层间（c轴）传输的能垒较大，光生电荷分离不足，限制了该材料的光催化全分解水活性。

中国科学院金属研究所沈阳材料科学国家研究中心刘岗团队前期围绕PbTiO3铁电材料研究了铁电特性在光催化分解水中的作用，同时对层状铁电材料展开了深入探究，发现将Bi3TiNbO9片状颗粒的表面终端层从(Bi2O2)2+层调变为(BiTiNbO7)2-层能够实现稳定地光催化全分解水。在此基础上，该团队与合作者近期提出了利用梯度W掺杂在Bi3TiNbO9片状颗粒的c轴方向引入额外的内建电场助力光催化全分解水。相关研究成果以Gradient tungsten-doped Bi3TiNbO9 ferroelectric photocatalysts with additional built-in electric field for efficient overall water splitting为题发表于《自然-通讯》（Nature Communications）。

该研究在Bi3TiNbO9片状颗粒中进行梯度的W掺杂，引入额外的内建电场，用于克服光生电子在(Bi2O2)2+层和(BiTiNbO7)2-层之间的势垒，将光生电子激发到基面{001}晶面，从而打破层状Bi3TiNbO9光催化材料全分解水的瓶颈。其基本原理是施主掺杂剂可以有效增加光催化剂中自由电子的数量，从而缩小费米能级和导带底位置的差值。当施主掺杂剂从体相到表面呈现浓度从低到高的梯度分布时，材料的费米能级和导带底的差值会出现连续缩小的现象，形成促进光生电子由体相向表面迁移的内建电场。表面光电压光谱表明Bi3TiNbO9中的光生电子沿c轴方向迁移较慢，引入额外的内建电场之后，光生电子向表面传输速率增加，从而出现稳态和瞬态表面光电压转变为负信号的现象，并且W掺杂Bi3TiNbO9的表面光电压信号衰减到0的时间延长，说明电荷分离效率增加（图1）。光催化全分解水测试发现W掺杂能够有效提升Bi3TiNbO9的活性，并且当W掺杂浓度为5%时，活性达到最高值，与掺杂浓度饱和相关。然而，材料的表面终端层对光催化全分解水的稳定性起着决定性作用，当将W掺杂Bi3TiNbO9的表面终端层由(Bi2O2)2+层调整为钙钛矿层时，光催化活性和稳定性明显提升，活性相比于原始样品提高一个数量级（图2）。

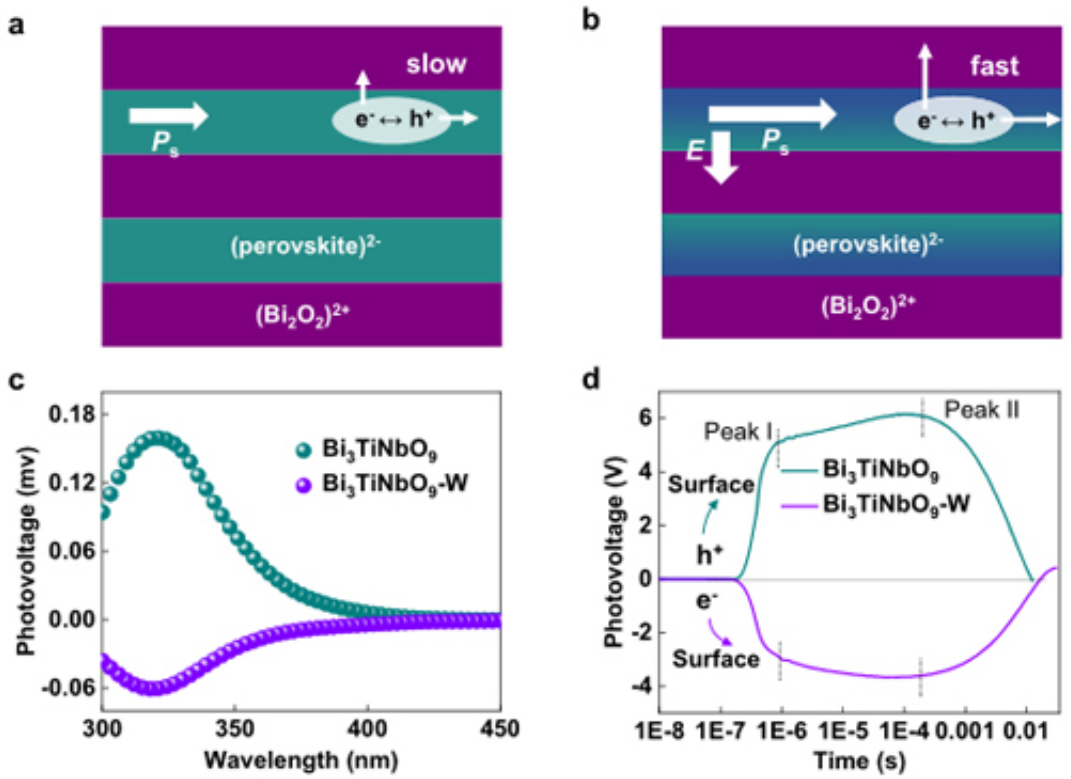


图1　光生电荷转移行为。光生载流子沿ac面的转移示意图（Ps-铁电极化，E-额外的内建电场）：(a) Bi3TiNbO9，(b) Bi3TiNbO9-W。Bi3TiNbO9（青色点）和Bi3TiNbO9-W（紫色点）晶体的表面光电压光谱：(c) 稳态，(d) 瞬态。

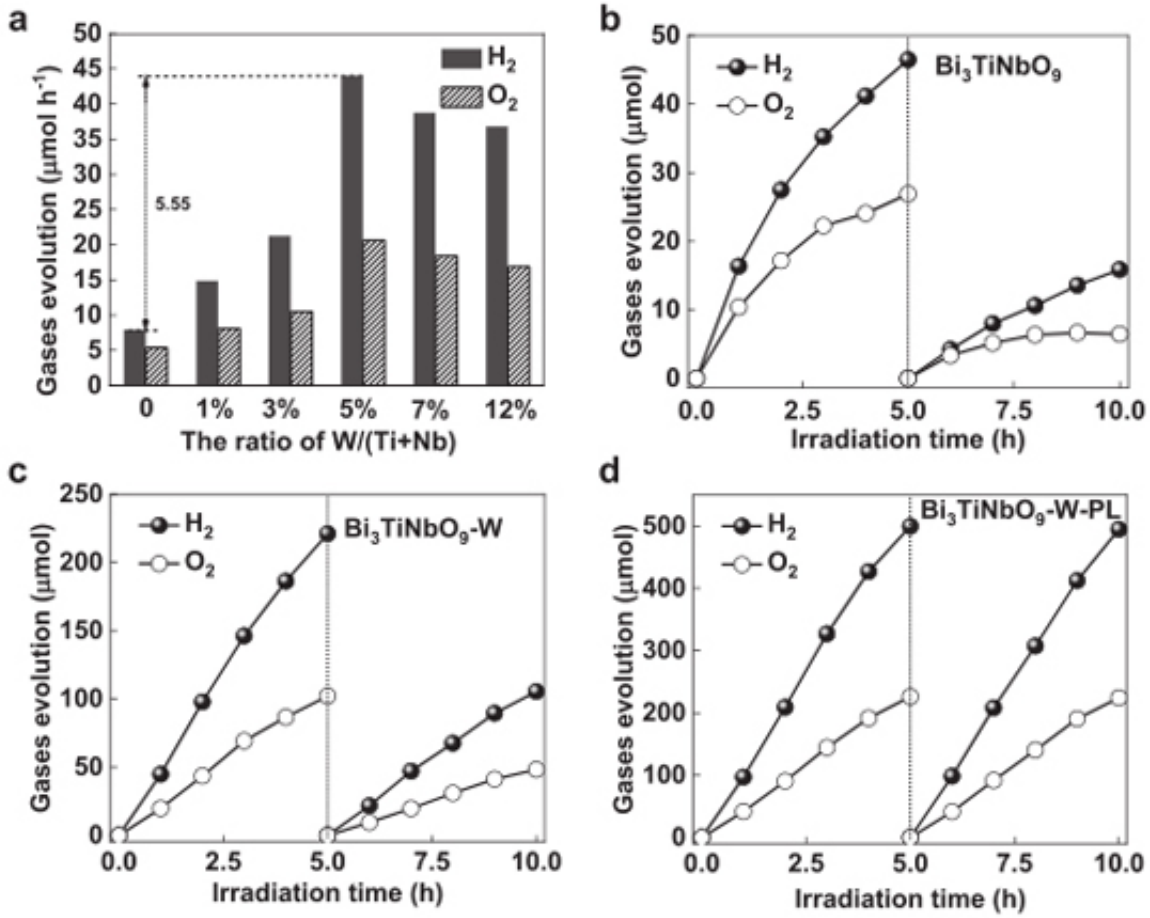


图2　光催化全分解水的活性和稳定性。(a)
不同W掺杂浓度的Bi3TiNbO9-W的活性比较。光催化全分解水稳定性测试（λ≥300 nm）：(b)
Bi3TiNbO9，(c) Bi3TiNbO9-W，(d) Bi3TiNbO9-W-PL（以钙钛矿层为截止面）。

相关研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金委、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划等项目的资助。（来源：中国科学院金属研究所）

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s41467-023-43837-4

作者：刘岗等 来源：《自然—通讯》

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发