
中国科大在金属氧化物表面二氧化碳光致还原机理研究中取得进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/8282.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！

近日，中国科学技术大学物理学院及合肥微尺度物质科学国家研究中心国际功能材料量子设计中心(ICQD)教授赵瑾团队在氧化物表面CO₂光致还原机理研究工作中取得新进展，他们利用团队自主发展的第一性原理激发态动力学程序，揭示了氧化物表面的CO₂分子可以通过短暂捕获电子来激发CO₂分子的弯曲和非对称拉伸的振动模式，降低CO₂LUMO轨道的能量，使得CO₂分子能够捕获光电子，发生还原反应。该研究结果以CO₂Photoreduction on Metal Oxide Surface is Driven by Transient Capture of Hot Electrons: Ab initio Quantum Dynamics Simulation 为题，发表在《美国化学会志》[J. Am. Chem. Soc. 142, 6, 3214 (2020)]上。第一作者褚维斌在合肥微尺度物质科学国家研究中心取得博士学位，赵瑾为通讯作者。

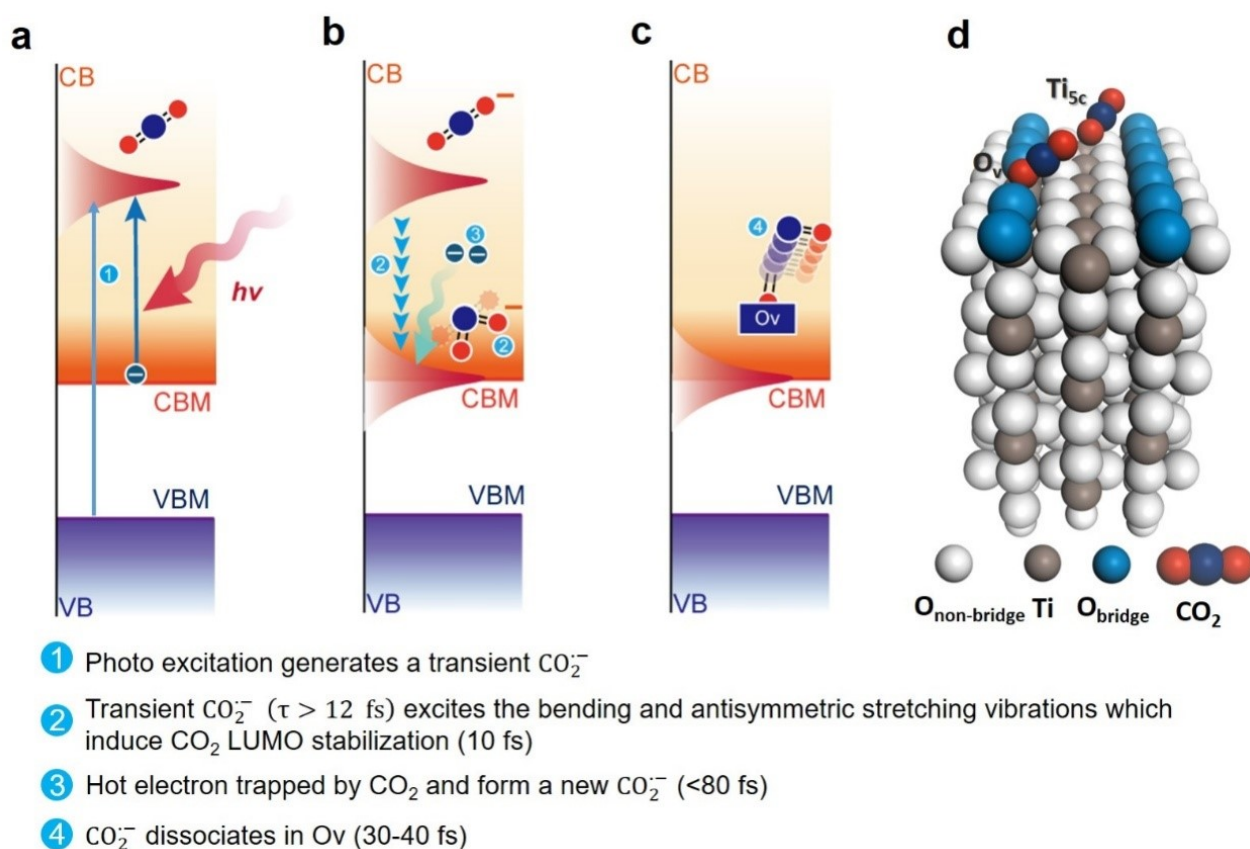
固体表面CO₂光还原一直是一个有挑战的科学问题，其中主要的瓶颈存在于CO₂分子的LUMO轨道能量过高，难以捕获光激发的热电子而产生还原反应。赵瑾团队利用自主研发的第一性原理激发态动力学软件Hefei-NAMD对TiO₂表面的CO₂光还原机制进行了研究。研究发现，由于CO₂分子的LUMO能量高于TiO₂的导带底能量，因此CO₂分子难以稳定地捕获电子，在一定的寿命之内，CO₂上的电子将会衰减回TiO₂导带。然而，如果CO₂吸附在TiO₂的氧缺陷位置，并且其捕获电子的寿命可以超过12飞秒，形成短暂寿命的CO₂⁻，那么CO₂分子的弯曲和非对称拉伸两种振动模式就会被有效激发，就可以将CO₂的LUMO轨道能量降低至TiO₂导带底之下，并保持150 fs左右的时间，此时CO₂可以在80 fs之内有效捕获导带上的电子，并在之后的30-40 fs发生解离形成CO分子。这项工作揭示了CO₂振动模式激发在光还原过程中的关键性作用，并

从第一性原理计算的角度对TiO₂表面CO₂分子的光致还原的激发态动力学给出了清晰的描述。

该工作是Hefei-NAMD软件的又一重要应用，自2016年起，利用该软件发表的学术论文已接近30篇。

该工作受到基金委、科技部、安徽省等的支持。

[论文链接](#)



图片说明:TiO₂表面CO₂光致解离过程。(1) 光激发产生具有一定寿命的瞬态CO₂⁻;
(2)CO₂⁻寿命大于12fs时, 弯曲振动模式与非对称拉伸振动模式被激发, CO₂LUMO在10 fs之内被降低至导带底之下; (3)CO₂在80 fs的时间内捕获热电子并重新形成稳定的CO₂⁻; (4) 30-40 fs之后CO₂⁻解离。

研究团队单位：中国科学技术大学

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](http://iikx.com)转发