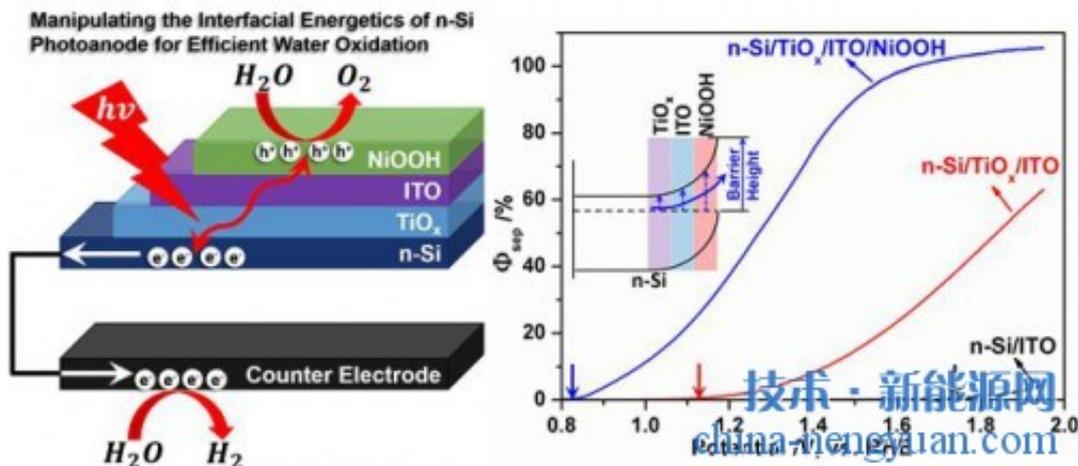


大连化物所硅基材料用于光电化学分解水研究取得新进展



近日，中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室、洁净能源国家实验室（筹）李灿团队在硅基半导体材料用于光电化学分解水的光阳极研究中取得新进展，发现了单晶硅基光电极中的界面施主态缺陷能级是制约光电极效率的因素之一，成功对异质结的界面能带结构进行了精细调控，有效提高光电极的电荷分离及水氧化效率。相关研究结果以全文的形式发表在《美国化学会志》上（Tingting Yao, Can Li, et al, J. Am. Chem. Soc., 2016, DOI: 10.1021/jacs.6b07188）。

太阳能催化水分解反应是未来解决能源问题和环境污染的理想途径之一。半导体基光（电）催化剂中，光生载流子被有效分离和迁移至光催化剂表面参与水分解反应，是提高光催化效率的关键。李灿团队长期致力于解决这一关键问题，相继在国际上提出了“异质结”（J. Am. Chem. Soc., 2008, DOI: 10.1021/ja8007825）、“异相结”（Angew. Chem. Int. Ed., 2012, DOI: 10.1002/anie.201207554）和“晶面间电荷分离”（Nat. Commun., 2013, DOI:10.1038/ncomms2401）等策略来促进光生电荷分离。然而，由于电荷转移主要发生在界面上，光电极的光伏特性往往与界面能带结构和性质紧密相关。但是截至目前，关于电荷在硅基光电极界面能级上的分离和传输机理并不明确。

在本工作中，研究人员发现存在于n-Si/ITO肖特基结界面上的施主态能级阻碍了光生空穴抵达电极表面参与氧化反应，并确认了该施主态缺陷的能级位置；在n-Si和ITO之间引入薄层TiO_x，并对其离散能级进行精细调控，有效地减少了界面施主态能级，并实现n-Si/TiO_x/ITO肖特基势垒高度近理论值，从而极大地提高了光生电荷的分离和传递效率。其次，研究还证实了表面负载型NiOOH的双重角色，一方面作为传统认知的水氧化催化剂促进光生电荷的注入效率；另一方面修饰了该肖特基电极的表面功函，增加了势垒高度和内建电场强度，使可获得的表面光电压额外增加到215%。将n-Si/TiO_x/ITO/NiOOH光电极水氧化反应的起始电位从文献报道的约1.1-1.2V降低至0.9V，为目前文献报道的最低值。同时在一个较宽的电极电位下实现了光生电荷注入效率大于90%以及电荷分离效率接近100%。该研究结果不仅适用于硅基光阳极，还可有望拓展应用至其他半导体基光电器件的制备中。本项工作也是继该团队非晶硅的相关研究后（ChemSusChem, 2015, DOI: 10.1002/cssc.201501004）在单晶硅用于光电化学分解水方面取得的新进展。

该工作得到了科技部“973”项目、国家自然科学基金和教育部能源材料化学协同创新中心(iChEM)的资助。

原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/99745.html>