中国科学技术大学优秀博士学位论文推荐表

作者姓名	王辉	学号	BA14019059	出生年月	1988.11	民族	汉族
院系名称	化学系	联系电话	15856973963	毕业去向	本校博后		
指导教师	谢毅		获博士学位日期		本次申请		
一级学科名称	化学		二级学科名称		无机化学		
本科毕业院校	中国科学技术大学		硕士毕业院校		硕博连读		
承担主要社会工作	无						
获奖情况	2015 年 10 月 获得博士研究生国家奖学金 2016 年 11 月 获得中国科大—苏州工业园区奖学金						
学位论文题目	低维固体中的激子过程调控及其光催化应用						
学位论文研究方向	低维固体化学						
学位论文评阅专家	田玉鹏	周虹屏	蒋阳	张卫新	王文中		
学位论文答辩专家	田玉鹏	周虹屏	蒋阳	张卫新	王文中		
论文答辩日期	2017 年 5 月 23 日		论文答辩结果 （通过票数/不通过票数）		5 / 0		

学位论文中文摘要

近年来，基于太阳能开发利用的光催化反应，例如光分解水、二氧化碳还原以及水污染处理等，以其在解决环境污染与能源紧缺等问题上的迷人前景而受到广泛关注。作为一种重要的光催化反应载体，半导体以其独特的电子结构以及材料物性吸引了研究人员的目光。然而，光生载流子之间相互作用对半导体材料催化性能的影响被长期忽略,成为深入理解材料光催化机制、提升材料光催化性能以及拓展催化反应的重要制约因素。从激子效应的角度对半导体催化剂的光催化反应开展系统而深入的研究工作，不仅有助于理解光催化机制，同时也为设计具有高效、特异光催化性能的催化材料提供新思路。

本论文旨在揭示激子效应在低维半导体材料光激发过程的重要作用，并通过探索新策略，对半导体材料中激子过程进行调控，最终实现半导体材料光催化性能的优化。在本论文中，作者聚焦几种典型半导体材料（黑磷、聚合物氮化碳、溴化氧铋），利用超快光谱与发光光谱等技术手段，并结合密度泛函理论计算，研究材料激子和载流子行为特性，揭示材料的结构因素（包括结构限域、维度、微结构等）对材料过程的影响，从而实现对材料光催化性能的调控与优化。本论文主要包括以下几方面的内容：

1. 基于黑磷晶体独特的电子结构特征，作者首次选择水作为溶剂，通过液相剥离得到厚度约为 2 nm、表面洁净的超薄黑磷纳米片，具有延伸至红外区的广泛光吸收谱带。作者通过原子分辨显微分析技术观测到制备的黑磷纳米片表面原子排布的不均匀性，首次证明了液相剥离得到的超薄黑磷纳米片存在结构扭曲。纳米片的表面原子排布扭曲不仅提升了结构稳定性同时也增强的激子效应，从而获取了高效单线态氧产生，使其在光动力学治疗和催化有机反应领域具有潜在的应用价值。该研究拓展了黑磷纳米片在光催化领域的应用前景。

2. 针对具有共轭结构聚合物氮化碳材料，作者通过发光光谱首次证实了结构中强烈的激子效应和延迟荧光现象，提出三线态－三线态激子湮灭过程是限制材料量子效率提升的关键因素，并通过时间分辨的超快光谱技术构建完整的光激发过程模型，为研究其光催化过程提供了新视角；基于上述实验结果，作者提出通过向聚合物氮化碳中引入羰基来提升结构的自旋－轨道耦合，增从而增强其系间窜越过程，实现体系三线态激子浓度显著提升，使其在光照下呈现出显著增强的单线态氧产生；在理解材料结构特点和激子过程的基础上，首次提出了通过有序－无序界面策略调控聚合物光催化剂激子过程，从而提升热载荷子相关光催化反应性能，理论模拟显示有序聚合物链较无序链具有更低的最高占有轨道能级和最低空轨道能级，使得激子解离产生的电子和空穴分别向有序链和无序链注入，发光光谱和电化学结果显示半结晶氮化碳具有明显提升的激子解离和热电子浓度，苄醇氧化实验显示半结晶样品相较无定型样品

具有大约 3－6 倍的相应醛产率。

3. 针对卤化氧铋材料，作者提出其特殊的层状结构能够对光生载流子产生结构限域作用，利于激子的形成。理论模拟显示材料的导带边和价带边在铋原子上具有明显交叠，使得材料具有较大的激子结合能;据此,作者以 BiOBr 为例研究了晶面对材料激子过程的影响,超快光谱和发光光谱结果显示,BiOBr 材料的{001}晶面较{010}晶面更易产生激子，从而实现晶面工程调控材料光催化性能。该工作不仅为深入理解激子效应在光催化过程中的作用提供指导,同时还为设计具有强激子效应无机半导体材料指明了新方向。

攻读博士期间与博士学位论文相关的代表性成果（限列 10 项）					
发表学术论文数	14	本人第一论文数（含导师第一本人第二）	7	专利及其它成果数	/

序号	成果名称	作者排名	期刊名称	发表时间	收录情况
1	Boosting Hot-Electron Generation: Exciton Dissociation at the Order–Disorder Interfaces in Polymeric Photocatalysts	1	Journal of the American Chemical Society	2017-2-15	SCI 一区 IF 13.038
2	Giant Electron–Hole Interactions in Confined Layered Structures for Molecular Oxygen Activation	1	Journal of the American Chemical Society	2017-3-23	SCI 一区 IF 13.038
3	Ultrathin Black Phosphorus Nanosheets for Efficient Singlet Oxygen Generation	1	Journal of the American Chemical Society	2015-9-9	SCI 一区 IF 13.038
4	Half-Metallicity in Single-Layered Manganese Dioxide Nanosheets by Defect Engineering	1	Angewandte Chemie International Edition	2015-1-19	SCI 一区 IF 11.709
5	Enhanced Singlet Oxygen Generation in Oxidized Graphitic Carbon Nitride for Organic Synthesis	1	Advanced Materials	2016-8-24	SCI 一区 IF 18.96
6	Insights into the Excitonic Processes in Polymeric Photocatalysts	1	Chemical Science	2017-3-24	SCI 一区 IF 9.144
7	Structural distortion in graphitic-C_3N_4 realizing an efficient photoreactivity	1	Nanoscale	2015-2-16	SCI 一区 IF 7.76