


姓 名	吴凯丰	性 别	男	出生年月	1989/10/20	
出生地	江西高安	婚姻状况	未婚	政治面貌	群众	
国 籍	中国	从事专业	物理化学			
现工作单位及职位	美国洛斯阿拉莫斯国家实验室，博士后					
人事关系所在单位	美国洛斯阿拉莫斯国家实验室					
<p>学习及工作经历：</p> <p>（从大学开始填，内容包括时间、单位、学位、所学专业、从事专业、专业技术职务情况，时间段要连续，准确到月份）</p> <p>理学学士（BS） 2006/9-2010/7 中国 中国科学技术大学 材料科学与工程</p> <p>博士（PhD） 2010/8-2015/8 美国 埃默里大学 化学</p> <p>主任奖学金博士后学者（Director's Postdoc fellow） 2015/10-至今 美国洛斯阿拉莫斯国家实验室（Los Alamos National Laboratory）</p>						

如内容较多，本栏目填不下时，可另纸接续（下同）。

主要学术成就、科技成果及创新点:

太阳能可以被视为“取之不尽,用之不竭”的能源,因为一小时内照耀在地球表面的太阳能可供目前人类社会一年的能量需求. 高效率的太阳能转换体系需要具有高效的光吸收, 可调控的能量转移, 以及有效的电荷分离和长寿命的电荷分离态等优点. 这些优点的实现归根到底依赖于我们对光吸收, 能量转移, 和电荷转移等基本物理化学问题的理解. 基于这一出发点, 申请人在博士导师 Tianquan Lian 教授的指导下致力于用超快激光光谱学手段来测量太阳能转换(光催化)体系内的动力学过程, 从而揭示已有体系的工作原理和为未来体系提供设计思路. 这一研究方向填补了目前国际上太阳能转换研究工作主要集中于材料合成, 而对机理了解有限的空白. 采用量子限域的胶体纳米异质结作为模型体系, 申请人在过去四年内以**第一作者**身份在专业顶级期刊发表论文 17 篇, 其中包括, *Science* 1 篇; *Chemical Society Review* 1 篇; *Accounts of Chemical Research* 1 篇, *JACS* 4 篇; *Nano Letter* 1 篇; *ACS Nano* 3 篇; *Chemical Science* 2 篇. 申请人这一系列工作得到国际同行广泛关注, 论文被 *Science*, *C&E News*, *Emory News*, *WSB-TV*, *Physics.org*, *ScienceDaily*, *Optics&Photonics* 等学术或科技媒体详细报道. 以下为申请人主要学术成果(仅限第一作者)的介绍:

1. 半导体/铂纳米异质结中的电荷分离动力学及其对光催化性能的启示

负载铂 (Pt) 颗粒的半导体材料能够在光激发下还原质子实现太阳能到氢气的转化. 近期报道的胶体半导体纳米棒材料让这一方向重新引起广泛重视, 因为纳米棒的光吸收性能和电荷分离距离都可以通过它的尺寸来进行精确调控. 我们从最基本物理化学原理出发, 认为这一众所周知的光催化反应其实并非如此显然. 半导体纳米棒中的光生激子可以通过电子转移, 空穴转移, 能量转移等多种途径被铂颗粒猝灭, 而其中只有电子转移途径是对质子还原有利的. 采用量子限域的硫化镉(CdS)纳米棒/Pt 颗粒异质结作为模型体系和超快瞬态吸收技术作为研究手段, 我们首次揭示这一体系中有效的电子转移依赖于表面缺陷态对空穴的捕获. 空穴的超快捕获 (~0.7 皮秒) 导致空穴转移和能量转移途径被阻断, 同时帮助实现长寿命 (~1 微秒) 的电荷分离态 (电子转移至 Pt 上而空穴被捕获在 CdS 表面). 这一成果 (*J. Am. Chem. Soc.* 2012, 134, 10337-10340.) 向国际光催化同行揭示了 CdS/Pt 体系的工作机理, 在四年内被引用 107 次 (此部分均采用 Google 学术统计). 为了对空穴捕获进行灵活调控, 我们研究了另一具有“人造”空穴缺陷态的体系: CdSe@CdS 纳米棒/Pt 异质结. 在这一体系中, CdSe/CdS 界面处的价带势垒使 CdSe 核成为一个“人造”空穴势阱. 超快瞬态吸收表明这一体系确实也可以实现有效的电子转移和长寿命的电荷分离, 而且电荷分离态的寿命可以通过纳米棒的长度进行精确调控. 我们进一步将 CdS 纳米棒/Pt 和 CdSe@CdS 纳米棒/Pt 体系进行对比研究, 并将超快测量结果与光催化性能进行比照, 发现到牺牲试剂的空穴转移是决定这些体系光催化效率的关键步骤. 这一成果 (*J. Am. Chem. Soc.* 2014, 136, 7708-7716.) 给国际光催化同行指出了半导体纳米棒/Pt 体系的优化方向, 在仅两年内被引用 80 次, 入选 **SCI 高被引用论文**. 考虑到空穴转移的关键性, 我们细致研究了从纳米棒到受体分子的空穴转移行为, 发现缺陷态空穴也能够有效转移且转移行为由静态猝灭 (吸附) 主导. 这一成果 (*J. Am. Chem. Soc.* 2015, 137, 10224-10230.) 在不到一年内被引用 11 次. 我们受邀撰写综述 (*Acc. Chem. Res.* 2015, 48, 851-859.) 总结了这一系列高质量工作. 该综述在仅一年内被引用 38 次, 也入选 **SCI 高被引用论文**.

2. 表面等离子激元诱导的热电子转移及新型机理的探索

在上述研究中, 我们以半导体作为光吸收中心, 金属作为电子受体和催化中心, 是较为传统和广泛使用的太阳能转换思路. 近年来报道的表面等离子基元诱导的热电子转移现象是一种以金属作为光吸收中心, 而半导体作为电子受体的全新太阳能转换模式. 尽管利用了表面等离子基元具有半导体不可比拟的巨大光吸收截面的优点, 这个研究方向存在至少两大问

题：(1) 对热电子转移的机理和效率限制因素理解有限，(2) 目前报道的基于这一机理的器件效率太低（大多数低于 1%）。以这两大问题作为出发点，我们使用半导体纳米棒/金(Au)颗粒异质结作为模型体系对表面等离子激元诱导的电荷分离进行了系统性研究。首先，在 CdS 纳米棒/Au 异质结中，我们使用可见光区瞬态吸收测量了 Au 颗粒中的热电子产生和弛豫的动力学，同时采用中红外瞬态吸收清晰展示了从 Au 颗粒到 CdS 纳米棒的热电子转移和复合过程。通过可见光和红外瞬态吸收结合对比，我们发现 Au 颗粒中超快的热电子弛豫使得从 Au 到 CdS 的电荷转移很难与之竞争，从而导致很低的热电子转移效率 (~2%)。这一成果 (*Nano Lett.* 2013, 13, 5255-5263.) 直接揭示了热电子转移的效率限制因素，得到国际光电子器件研究者的广泛关注，在三年内引用 66 次（入选 **SCI 高被引用论文**）。我们随后从原理上提出，如果半导体/金属界面处的超强电子耦合作用能够导致金属中的表面等离子基元直接衰变为界面电荷分离态（空穴在金属中而电子在半导体中），从而巧妙地回避金属中的热电子弛豫步骤，电荷分离效率将得到显著提升。使用强烈耦合的 CdSe 纳米棒/Au 异质结作为模型体系，我们首次展示了这一全新机理（表面等离子基元诱导的界面电荷跃迁），实现了高达 24% 的光致电荷分离效率。这一成果 (*Science* 2015, 349, 632-635.) 得到同期 *Science* 杂志观点文章的专门点评，并被包括 C&E News 在内的多家学术或科技媒体详细报道，在不到一年内被引用 33 次。

3. 基于半导体纳米异质结的光学天线中的激子输运动力学

核@壳结构的半导体纳米晶可以被视为纳米尺度的光学天线：通过大体积的壳层材料快速吸收光子并将产生的激子输运到小体积的内核材料中发出光子。因为壳层光吸收截面远远大于内核，整个异质结发出的光子因自身重吸收导致的损失很小。这类纳米天线在太阳能聚光板，激光器等器件中有广阔的运用前景。实现这些应用的一个内在假设是壳层材料中的光生激子能够有效地输运到内核材料中，而这一假设的合理性有待证明。使用 CdSe 量子点@CdS 量子棒这种一维纳米天线作为模型体系，我们首次发现棒到点的激子输运和激子被棒上的缺陷态捕获两个过程之间存在竞争，导致同一体系中多种激子态的共存。这一成果 (*ACS Nano* 2013, 7, 7173-7185.) 让国际同行对半导体异质结中的激子弛豫行为有了一个全新的理解，在三年内被引用 37 次。我们随后系统研究了棒到点的激子输运效率对棒长度的依赖关系并为这一关系提出了简单但是通用的解析解，为这类材料在太阳能聚光板中的应用提供了预测性的指导 (*ACS Nano* 2015, 9, 4591-4599.)。理想的纳米天线应该具有不依赖长度的 100% 激子输运效率，为实现这一目标我们合成并测试了 CdTe 量子片@CdSe 量子片这种二维纳米异质结 (*ACS Nano* 2015, 9, 961-968.)。受益于原子级别整齐的厚度，量子片表面几乎没有捕获激子的缺陷态，从而确实达到了 100% 的激子输运，是理想的太阳能聚光材料。这一新材料的报道引起胶体纳米晶领域的广泛关注，一年内被引用 18 次。

最近，我们受邀撰写长综述文章 (*Chem. Soc. Rev.* 2016, DOI: 10.1039/C5CS00472A.) 总结了这三部分系统性工作。审稿人高度评价这一综述：“Lian 组一直引领者纳米材料光谱学领域的前沿，很多国际同行从他们的工作中学习和受益，这篇出色的综述将他们的理解和视野带到一个全新高度 (full bloom)”。

文章被选为 2016 年 Issue 14 的杂志内封面。

4. 基于纳米晶的高性能，大面积太阳能聚光板

申请人博士期间的工作主要致力于调控纳米异质结中的电荷输运和分离动力学，以实现高效的太阳能转换。博士后工作则采用另外一种思路来实现纳米晶材料对太阳能转换的贡献：太阳能聚光。把高荧光效率，低重吸收的纳米晶量子点掺杂于聚合物板中制成太阳能聚光板，大面积吸收的太阳能被转化成荧光光子并通过全反射模式输运到聚光板边缘处。在边缘处安装技术成熟的太阳能转化装置（如高效率单晶硅电池）吸收聚光板发出的高通量光

子，则整个装置等效于大面积的高效率电池，从而大大降低太阳能转换的成本。但目前报道的量子点太阳能聚光板多为几个厘米尺寸，离实际应用较为遥远。我们首次采用低成本，易产业化的流延法将高荧光效率，低重吸收的量子点涂层于商品化的玻璃衬底表面，制成了目前为止最大面积（米级别）并且具有高聚光效率的量子点聚光板。这一工作发表于于 *Nature Energy* 2016, DOI: 10.1038/NEENERGY.2016.157。一经发表，被多达二十多家媒体跟踪报道。

主要论著目录:

(1. 论文作者、题目、期刊名称、年份、卷期、页、总引次数、他引次数、期刊影响因子; 2. 著作: 著者、书名、出版社、年份)

目录列表最后请注明论文总引次数、他引次数、期刊影响因子的查询截止时间和查询数据库。

第一作者(含共同)论文如下:

1. Wu, K.; Chen, J.; McBride, J. R.; Lian, T. "Efficient Hot-Electron Transfer by a Plasmon-Induced Charge-Transfer Transition." *Science* 2015, 349, 632-635.
2. Li, H.*; Wu, K.*; Lim, J.; Klimov, V. "Doctor-blade deposition of quantum dots onto standard window glasses for low-loss large-area luminescent solar concentrators." *Nat. Energy* 2016, DOI: 10.1038/NENERGY.2016.157 (* Equal contributions)
3. Wu, K.; Lian, T. "Quantum Confined Colloidal Nanorod Heterostructures for Solar-to-Fuel Conversion." *Chem. Soc. Rev.* 2016, DOI: 10.1039/C5CS00472A.
4. Wu, K.; Zhu, H.; Lian, T. "Ultrafast Exciton Dynamics and Light-Driven H₂ Evolution in Colloidal Semiconductor Nanorods and Pt-Tipped Nanorods." *Acc. Chem. Res.* 2015, 48, 851-859.
5. Wu, K.; Liang, G.; Shang, Q.; Ren, Y.; Kong, D.; Lian, T. "Ultrafast Interfacial Electron and Hole Transfer from CsPbBr₃ Perovskite Quantum Dots." *J. Am. Chem. Soc.* 2015, 137, 12792-12795
6. Wu, K.; Du, Y.; Tang, H.; Chen Z.; Lian, T. "Efficient Extraction of Trapped Holes from Colloidal CdS Nanorods." *J. Am. Chem. Soc.* 2015, 137, 10224-10230
7. Wu, K.; Chen, Z.; Lv, H.; Zhu, H.; Hill, C. L.; Lian, T. "Hole Removal Rate Limits Photo-driven H₂ Generation Efficiency in CdS-Pt and CdSe/CdS-Pt Semiconductor Nanorod-metal tip Heterostructures." *J. Am. Chem. Soc.* 2014, 136, 7708-7716.
8. Wu, K., Zhu, H., Liu, Z., Rodríguez-Córdoba, W. E., and Lian, T. "Ultrafast Charge Separation and Long-lived Charge Separated State in Photocatalytic CdS-Pt Nanorod Heterostructures." *J. Am. Chem. Soc.* 2012, 134, 10337-10340.
9. Wu, K.; Rodríguez-Córdoba, W. E.; Yang, Y.; Lian, T. "Plasmon-Induced Hot Electron Transfer from the Au Tip to CdS Rod in CdS-Au Nanoheterostructures." *Nano Lett.* 2013, 13, 5255-5263.
10. Wu, K.; Hill, L.; Chen, J.; McBride, J. R.; Payropolous, N.; Richey, N.; Pyun, J.; Lian, T. "Universal Length-dependence of Exciton Localization Efficiency in Type I and Quasi Type II CdSe@CdS Dot-in-rod Nanorods." *ACS Nano* 2015, 9, 4591-4599.
11. Wu, K.; Li, Q.; Jia, Y.; McBride, J. R.; Xie, Z.; Lian, T. "Efficient and Ultrafast Formation of Long-Lived Charge-transfer Exciton State in Atomically-thin CdSe/CdTe Type-II Heteronanosheets." *ACS Nano* 2015, 9, 961-968.
12. Wu, K.; Rodríguez-Córdoba, W. E.; Liu, Z.; Zhu, H.; Lian, T. "Beyond Band Alignment: Hole Localization Driven Formation of Three Spatially Separated Long-lived Exciton States in CdSe/CdS Quasi-type II Dot-in-rod Nanorods." *ACS Nano* 2013, 7, 7173-7185.
13. Wu, K.; Li, Q.; Du, Y.; Chen, Z.; Lian, T. "Ultrafast Exciton Quenching by Energy and

Electron Transfer in Colloidal CdSe Nanosheet-Pt Heterostructures.” *Chemical Science* 2015, 6, 1049-1054.

14. Wu, K.; Liang, G.; Kong, D.; Chen, J.; Chen, Z.; Lian, T. “Quasi-Type II CuInS₂/CdS Core/Shell Quantum Dots.” *Chemical Science* 2016, 7, 1038-1244.
15. Wu, K.; Rodríguez-Córdoba; Lian, T. “Exciton Localization and Dissociation Dynamics in CdS and CdS–Pt Quantum Confined Nanorods: Effect of Nonuniform Rod Diameters.” *J. Phys. Chem. B* 2014, 118, 14062–14069. *Invited paper for Special Issue: Spectroscopy of Nano- and Biomaterials Symposium*
16. Wu, K.; Liu, Z.; Zhu, H.; Lian, T. “Exciton Annihilation and Dissociation Dynamics in Group II-V Cd₃P₂ Quantum Dots.” *J. Phys. Chem. A* 2013, 117, 6362-6372. *Invited paper for Special Issue: Prof. John C. Wright Festschrift*
17. Wu, K.; Song, N.; Liu, Z.; Zhu, H.; Rodríguez-Córdoba, W. E.; Lian, T. “Interfacial Charge Separation and Recombination in InP and Quasi-type II InP/CdS Core/Shell Quantum Dot-Molecular Acceptor Complexes.” *J. Phys. Chem. A* 2013, 117, 7561-7570. *Invited paper for Special Issue: Prof. Joel M. Bowman Festschrift*

一、检索要求

- 1、被检作者：吴凯丰（Wu Kaifeng）
- 2、委托单位：中国科学院大连化学物理研究所
- 3、论文发表年限：2012—2016 年
- 4、提供待检索论文篇数：26 篇
5. 检索日期：2016 年 6 月 26 日

二、检索范围

Science Citation Index Expanded (SCI-EXPANDED)	1900 - present	网络版
Engineering Village 2-Compendex (EI)	1969 - present	网络版

三、检索结果

1. 收录：
 - 有 21 篇被 SCI 收录（记录见附件一）；
 - 有 19 篇被 EI 收录（记录见附件二）；
2. 引用：
 - **SCI**：有 19 篇被引用 398 次，其中他人引用 323 次（记录见附件三）。

（引用标准：每篇引用文献中出现该篇文章的任何一个合作者，视为自引，其它情况视为他引。）

主持(参与)科研项目及申请专利:

(项目来源、项目名称、经费、个人在其中的作用)

科研项目:

项目名称: Record-Low Lasing Thresholds Using Colloidal Type-II Quantum Wells

项目性质及来源: 主任奖学金博士后独立研究项目, 由洛斯阿拉莫斯国家实验室赞助

项目经费: \$250000

起始终结: 2015-2017

本人排名/总人次: 1/3

专利申请:

专利名称: HOT ELECTRON TRANSFER BY PLASMON INDUCED INTERFACIAL CHARGE TRANSFER
TRANSITION

专利申请国: 美国

申请号: 62/190,822

申请日: 2015-7-10

本人排名/总人次: 2/2

获科技奖情况：

(项目名称、奖项、获奖时间、本人在其中的作用及排名、获奖总人数)

获各类荣誉奖情况：

- 1) Charles Lester 奖 (授予化学系最优博士生, 每年一位), 2014 年 8 月, 埃默里大学
- 2) Osborne R. Quayle 奖 (授予化学系优秀博士生), 2012 年 8 月, 埃默里大学
- 3) 中科大优秀毕业生奖, 2010 年 6 月, 中国科学技术大学
- 4) 中科大优秀学生奖学金金奖, 2009 年 11 月, 中国科学技术大学
- 5) 中科大优秀学生奖学金银奖, 2008 年 11 月, 中国科学技术大学
- 6) 中科大优秀学生奖学金银奖, 2007 年 11 月, 中国科学技术大学

受聘后拟开展研究工作的计划和思路（包括研究方向、内容和目标）：

申请人在博士期间致力于测量和调控具有光催化活性的纳米晶异质结中的载流子动力学，揭示太阳能转换体系的物质调控机理。在博士后工作中，申请人则探索对太阳能光源的调控（太阳能聚光板），作为提高太阳能转换效率的另一条途径。这两种互补型的研究可以统一到同一个大框架：太阳能转换的物理本质是光与物质间的相互作用，高效的太阳能转换应该通过对光源和物质的共同调控来实现。申请人将运用在国外学习期间掌握的各种超快光谱测量技术和丰富的材料合成和调控经验，进一步拓展和深化在物质调控和光源调控领域的研究。更重要的是，申请人将开展物质和光源协同调控的研究方式：很多光催化反应（如二氧化碳还原）都是多电子过程，而多电子的积累取决于光子吸收速率（光源调控）和电荷复合速率（物质调控）之间的竞争。申请人认为这是未来太阳能转换领域不可或缺的研究方向，但是目前在国际上尚属空白。除了从物理本质研究太阳能转换外，申请人还将探索太阳能转换中的化学反应过程。依托大连化学物理研究所的极紫外自由电子激光，申请人将搭建新型的超快测量手段来实时观测催化剂活性中心在催化过程中的构型和价态变化。上述研究方向和思路总结于图 1，具体研究方法和体系则在下文详述。

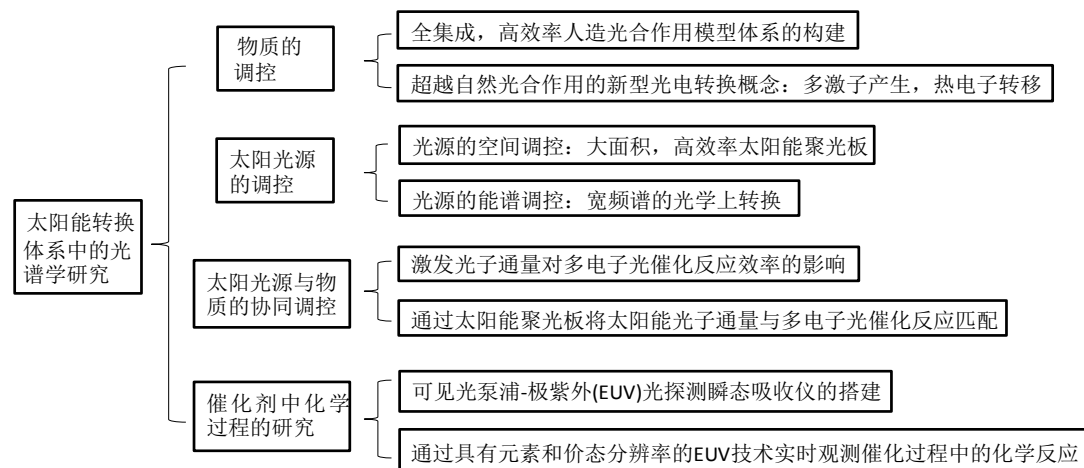


图 1. 太阳能转换中的光谱学研究：方向和思路的框架示意图

一. 物质的调控

物质调控将分为两条思路：首先，我们将学习自然界光合作用机理，采用纳米材料作为构筑单元来构建集光吸收组分，电子受体和给体，氧化和还原催化剂为一体的高效模型体系。其次，纳米材料中的独特物理效应可能赋予其自然界所不具备的新型光电转换模式，如单光子诱导多激子产生和热电子转移，这些都可以大大提升太阳能转换效率。

1. 构建全集成，高效率人造光合作用体系

纳米晶异质结因其灵活的合成和独特的光吸收性能而成为构建人造光合作用模型体系的理想材料。申请人将结合博士工作期间丰富的相关经验，以 type-II 量子片异质结为例来设计全集成光合作用体系。这一结构中，CdTe 在 CdSe 量子片的边缘处外延生长，因此电子给体（CdTe）和受体（CdTe）的主要晶面都完全暴露，使得氧化和还原催化剂的同时修饰成为可能。我们将采用光沉积方法把还原型(如 Pt, Ni 等)和氧化型(如 IrO_x, RuO_x 等)催化剂分别选择性修饰在 CdSe 和 CdTe 区域上。使用可见光泵浦-探测瞬态吸收技术，我们将探测 CdSe@CdTe 量子片的内部电荷分离，从 CdSe 到还原型催化剂的电子转移，和从 CdTe 到氧化型催化剂的空穴转移。我们还将研究这一全集成体系的光致产氢效率，并与超快光谱数据结合分析，提供优化方向。

2. 探索超越自然光合作用的新型光电转换概念

人造纳米材料具有自然界材料不具备的新型物理性质。首先，量子限域的纳米材料具有强烈的电子-电子关联，有利于实现单光子诱导的多激子产生，使光电转换效率超越 100%。其次，强烈耦合的纳米界面有利于实现高效率的热电子转移，避免热电子驰豫带来的能量损失。申请人将开展如下研究：

(1) 寻找高效率多激子产生的纳米材料。目前为止报道的多激子产生现象主要集中在量子点体系且效率大都远小于 200%，本质原因是零维材料中的电子-电子关联作用较弱。最近广泛研究的二维材料（如单层二硫化钼）具有极强的电子-电子关联作用。我们将采用带有显微镜功能的泵浦-探测瞬态吸收技术研究这类材料中的多激子产生，着重关注近期报道的具有近红外带隙的单层二碲化钼（MoTe₂）。单层二维材料中的强烈电子-电子关联很有希望带来低阈值和高效率的多激子产生。

(2) 高效率的热电子转移机制。申请人在博士期间报道了一种高效率的表面等离子体基元诱导的热电子转移机理 (*Science* 2015, 349, 632-635.)。回国后，申请人将延续这一研究方向，着重研究如何调控金属/半导体界面处的电子耦合作用使这一机理能够可控地再现，为这一机理在器件中的实现提供基础。

二. 太阳光源的调控

对太阳光源的调控将从空间和能量两个维度来进行。前者使用太阳能聚光板技术将弥散的太阳光子聚集成高通量的荧光光子并用于光电转换。后者使用宽频谱响应的上转换材料将太阳光谱中的低能光子转换成高能光子以便被宽带隙材料吸收，提高太阳光子的利用效率。

1. 大面积，高效率的太阳能聚光板

实现高效率的太阳能聚光需要聚光板中的荧光材料具有高发光效率，低重吸收的特征。这一要求用传统荧光材料很难满足，但可以通过核@壳结构的纳米晶异质结实现。申请人将致力合成基于低毒性近红外 I-III-VI 族量子点的高荧光效率核@壳结构（比如 CuInSe₂@ZnSe）来取代有毒性的镉系纳米晶。采用我们最近发展的流延法制备大面积太阳能聚光板并测量其光学效率和聚光因子等参数。同时考虑降低制造成本和提高长期稳定性，以期实现太阳能聚光板的商品化生产。

2. 宽频谱的光学上转换

目前主流的上转换材料（如有机分子和稀土掺杂的纳米颗粒）很难实现宽频谱的上转换。半导体和金属纳米晶具有宽频谱吸收特征，然而基于这些材料的上转换机制有待展示。申请人将设计独特的半导体和金属纳米晶并利用其中的高能载流子实现光学上转换：

(1) 利用半导体量子点的超快俄歇复合来实现上转换。例如，在磷化铟（InP）量子点上生长厚的 CdS 壳，形成具有近红外吸收的 type-II 结构。在吸收两个近红外光子后，该结构中的俄歇复合可将 InP 中的空穴激发至 CdS 壳中，并迅速被 CdS 壳外面的 CdSe 壳捕获。最终电子与 CdSe 中的空穴复合发出高能光子，实现近红外到可见光区的上转换。我们将合成这类结构并采用瞬态吸收测量其中涉及的载流子跃迁步骤，同时采用稳态技术来测量上转换效率。这一俄歇上转换机制目前鲜有报道，我们的成功展示将提供一种新的上转换设计思路。

(2) 利用金属纳米晶中表面等离子体基元诱导的热电子来实现上转换。例如，在金（Au）纳米棒（具有近红外吸收）上生长 CdS 壳，将 Au 中表面等离子体基元诱导的热电子和热空穴注入到 CdS 中。在 CdS 壳外面再生长薄的 CdSe 壳来捕获这一电子空穴对，最终在 CdSe 中发出可见光子。这一表面等离子体基元诱导的热电子上转换机制目前仅有理论预测，我们将合成上述异质结并首次在实验上展示这一机制。

三. 太阳光源与物质的协同调控

涉及多电子的光催化反应（如氢气产生，二氧化碳还原等）需要实现多电子在催化剂上的积累。积累效率取决于光子吸收速率和电荷复合速率之间的竞争。前者和后者可分别通过调控光源和物质来实现。申请人将开展对两者进行协同调控以优化多电子光催化反应效率的

研究。

1. 以第一部分构筑的模型体系为研究对象，研究激发光子通量对多电子光催化反应效率的影响。例如，我们可以用单色连续光作为激发源，研究模型体系催化产氢的效率对激发功率的依赖关系。预计在功率增大至光子吸收速率可与电荷分离态的复合速率竞争的时候，催化效率得到显著提升。我们还将以飞秒激光作为激发源与连续光源进行对比，研究瞬时多光子吸收的作用。

2. 上述研究中我们可以得出使光子吸收快于电荷复合所需要的激发光子通量。我们将评估使用高效的太阳能聚光板实现这一光子通量的可行性。如果可行，我们将展示一套以纳米晶材料实现太阳能聚光，又以纳米晶材料进行光催化的新型，高效太阳能转换体系。

四. 催化剂中化学过程的研究

上述研究是从太阳能转换的物理本质出发而设计的，并未涉及其中的化学问题（如催化剂活性位点的反应过程）。常用的可见和红外超快激光技术所探测的跃迁缺少对元素和价态的分辨率。相反，短波长的 X 射线和极紫外（EUV）光源可以探测到具有元素和价态分辨率的内层电子的跃迁。大连化学物理研究所的极紫外（EUV）自由电子激光器为申请人开展这一研究提供了珍贵的平台。

1. 首先，我们将搭建可见光泵浦-EUV 探测的瞬态吸收装置。泵浦激光和 EUV 光的时间同步将是主要技术难题，可能限制最终装置的时间分辨率。更高分辨率可通过最近报道的高阶倍频产生方法来实现。

2. 装置搭建完成后，我们将研究经典的自然界催化剂（包括 NiFe 氢酶，MoFe 固氮酶等）体系内的化学变化过程。例如，我们可以构建量子点-氢酶杂化材料，以可见光激发量子点后通过 EUV 探测氢酶中 NiFe 活性中心的价态演化。我们还将研究人造催化剂体系并与自然界体系进行对比，提供催化剂设计思路。