

РЕФЕРАТ

Робота містить: 119 с., 15 рис., 8 табл., 3 дод., 43 джерела.

Актуальність теми – вивчення взаємодії молекули кисню, яка в газовій фазі в основному електронному стані має мультиплетність 3 (тобто знаходиться в триплетному стані), із поверхнею твердого тіла, спіновий стан якої синглетний, має важливе значення, зважаючи на можливість триплет-синглетного переходу в адсорбційному комплексі. Другорядним, але не менш важливим, є з'ясування впливу кисневих вакансій на поверхні діоксиду титану та адсорбції на них молекул газової фази на ширину забороненої зони, яка визначає ефективність утилізації сонячного випромінювання кристалічним оксидом титану (IV).

Мета роботи – з використанням квантово-хімічних розрахунків встановити послідовність елементарних актів взаємодії молекули кисню, основний електронний стан якої триплетний, з модельними кластерами поверхні TiO_2 , які знаходяться в синглетному стані, для з'ясування умов їх взаємодії.

Об'єкт дослідження – комп'ютерно-інтегровані технології для дослідження ідеальної грані кристалічного анатазу, грані анатазу з кисневою вакансією, поверхні потенціальної енергії, триплетно-синглетного переходу.

Предмет дослідження – просторова будова та електронна структура кластерних моделей, енергія утворення адсорбційних комплексів, властивості триплетно-синглетного переходу.

Метод дослідження – квантово-хімічний метод теорії функціонала густини з обмінно-кореляційним функціоналом B3LYP в базисі 6-31 G**.

Наукова новизна результатів полягає в наступному:

- 1) Утворення кисневих вакансій на грані (001) анатазу призводить до зменшення ширини забороненої зони TiO_2 .
- 2) Адсорбція молекулярного кисню на бездефектній грані (001) діоксид титану не відбувається.
- 3) Адсорбція O_2 на кисневій вакансії грані (001) анатазу передусім триплет-синглетний перехід у системі [Кластер 001 + O_2].

4) Утворення кисневої вакансії з наступною адсорбцією на ній молекули O_2 призводить до подальшого зменшення ширини забороненої зони, що відкриває шлях до створення на основі анатазу ефективних перетворювачів сонячного випромінювання.

Публікації. За матеріалами роботи опубліковано 6 тез доповідей на міжнародних та українських конференціях.

АНАТАЗ, КВАНТОВО-ХІМІЧНИЙ РОЗРАХУНОК, КРИСТАЛІЧНА ГРАНЬ, КИСНЕВА ВАКАНСІЯ, МОЛЕКУЛА O_2 , АДСОРБЦІЙНИЙ КОМПЛЕКС, ТРИПЛЕТ-СИНГЛЕТНИЙ ПЕРЕХІД

РЕФЕРАТ

Работа содержит 119 с., 15 рис., 8 табл., 3 доп., 43 источника.

Актуальность темы – изучение взаимодействия молекулы кислорода, которая в газовой фазе в основном электронном состоянии имеет мультиплетность 3 (то есть находится в триплетном состоянии), с поверхностью твердого тела, спиновое состояние которой синглетное, имеет важное значение, учитывая возможность триплет-синглетного перехода в адсорбционном комплексе. Не менее важным является установление влияния кислородных вакансий на поверхности диоксида титана и адсорбции на них молекул газовой фазы на ширину запрещенной зоны, определяющей эффективность утилизации солнечного излучения кристаллическим оксидом титана (IV).

Цель работы – с использованием квантово-химических расчетов установить последовательность элементарных актов взаимодействия молекулы кислорода, основное электронное состояние которой триплетное, с сокластерами поверхности TiO_2 , которые находятся в синглетном состоянии, для выяснения условий их взаимодействия.

Объект исследования – компьютерно-интегрированные технологии для исследования идеальной грани кристаллического анатаза, грани анатаза с кислородной вакансией, поверхности потенциальной энергии, триплет-синглетного перехода.

Предмет исследования – пространственное строение и электронная структура кластерных моделей, энергия образования адсорбционных комплексов, свойства триплет-синглетного перехода.

Метод исследования – квантово-химический метод теории функционала плотности с обменно-корреляционной функционалом B3LYP в базисе 6-31 G**.

Научная новизна заключается в следующем:

1) Образование кислородных вакансий на грани (001) анатаза приводит к уменьшению ширины запрещенной зоны TiO_2 .

2) Адсорбция молекулярного кислорода на бездефектной грани (001) диоксид титана не происходит.

3) Адсорбция O_2 на кислородной вакансии грани (001) анатаза предшествует триплет-синглетный переход в системе [Кластер 001 + O_2].

4) Образование кислородной вакансии с последующей адсорбцией на ней молекулы O_2 приводит к дальнейшему уменьшению ширины запрещенной зоны, открывает путь к созданию на основе анатаза эффективных преобразователей солнечного излучения.

Публикации. По материалам работы опубликовано 6 тезисов докладов на международных и всеукраинских конференциях.

АНАТАЗ, КВАНТОВО-ХИМИЧЕСКИЕ РАСЧЕТЫ, КРИСТАЛЛИЧЕСКАЯ ГРАНЬ, КИСЛОРОДНАЯ ВАКАНСИЯ, МОЛЕКУЛА O_2 , АДСОРБЦИОННЫЙ КОМПЛЕКС, ТРИПЛЕТ-СИНГЛЕТНЫЙ ПЕРЕХОД

SUMMARY

The work contains 119 p., 15 fig., 8 table., 3 ext., 43 source.

Actuality – studying the interaction of molecules of oxygen, which is in the gas phase mainly electronic state has multiplicity 3 (that is a triplet state) with a solid surface, spin state which singlet is essential, given the possibility of triplet-singlet transition in adsorption complex. The influence of oxygen vacancies on the surface of titanium dioxide adsorption on molecules in the gas phase gap, which determines the efficiency of utilization of solar radiation crystalline oxide of titanium (IV).

Purpose – using quantum chemical calculations to establish the sequence of elementary acts of interaction between oxygen molecules, the basic electronic triplet state which, with mold surface clusters TiO_2 , which are in the singlet state, to determine the conditions of their interaction.

Object of study – computer-integrated technologies for the study of perfect crystalline anatase verge, brink anatase with oxygen vacancy, potential energy surface, singlet-triplet transition.

Purpose of the study – the spatial structure and electronic structure of cluster models, the energy complex formation of adsorption properties of triplet-singlet transition.

Research methods – quantum-chemical method of density functional theory of exchange-correlation functional basis in V3LYP 6-31 G **.

Scientific novelty of the results is as follows:

1) The formation of oxygen vacancies on the edge (001) anatase leads to a reduction in the band gap TiO_2 .

2) Adsorption of molecular oxygen on the verge of defect-free (001) Titanium dioxide occurs.

3) O_2 adsorption on the verge oxygen vacancies (001) anatase preceding triplet-singlet transition in the system [001 Cluster + O_2].

4) The formation of oxygen vacancies, followed by adsorption of O_2 molecules in it leads to further reduce the band gap, opening the way for on the basis of anatase efficient converters of solar radiation.

Publications. Based on work published 6 abstracts at international and Ukrainian conferences.

ANATASE, QUANTUM-CHEMICAL CALCULATION CRYSTAL FACES,
OXYGEN VACANCIES, O₂ MOLECULES, ADSORPTION COMPLEX, TRIPLET-
SINGLET TRANSITION