



凝聚态中光致电荷和能量转移动力学的理论模拟

Prof. Xiang Sun (孙 翔)

New York University Shanghai

时间: 2024. 10. 30 (周三)

3:00 pm – 4:30 pm

地点: 蒙民伟科技大楼南楼 727



摘要:

凝聚态中的光致电荷和能量转移在太阳能转换中起着关键作用，尤其是在有机光伏材料中。对此类过程的理论模拟由于电子和核自由度的复杂程度一直是具有挑战性的。在本次报告中，我们将展示最近发展的复杂凝聚态体系计算模拟框架，该框架涵盖了三种层次的描述：速率常数、含时速率和非绝热动力学。线性半经典 (LSC) 或线性路径积分近似提供了一个灵活的平台，它可用与在全原子水平上捕捉复杂多体系统中电子态跃迁过程中重要的量子效应。例如，含时电荷转移速率可以通过非平衡费米黄金规则和基于LSC的逐级近似计算，从而引出了我们最近提出的瞬态马库斯理论 (IMT)。IMT有效地捕捉了由结构弛豫引起的瞬态速率变化。其适用性已在典型的溶液相中有机光伏分子体系得到了验证：在溶解在四氢呋喃溶液中的类胡萝卜素-卟啉-富勒烯三聚体的光诱导电荷转移动力学中，我们观察到了由非平衡溶剂弛豫引起的显著瞬态速率增强。此外，我们提出了一种从全原子信息中构建多电子态体系有效模型哈密顿量的方法，称为多态谐振 (MSH) 模型。MSH模型准确地刻画了各向异性环境对多个电子态的不同耦合强度，并通过自洽地处理所有两两电子态之间的重组能实现。通过基于映射基组的各种半经典和准经典非绝热动力学模拟，我们展示了MSH模型能够高效且准确地捕捉到全原子水平的非绝热动力学。不仅如此，MSH还提供了一个定义在扩展空间维度中的有效反应坐标，促进了对凝聚态系统非绝热动力学（如光合作用复合物中的激发态能量转移）的研究。结合全原子哈密顿量和有效模型哈密顿量的多尺度量子动力学方法提供了自洽、准确且灵活地研究复杂凝聚态系统中的电荷和能量转移过程的手段。

报告人简介:

孙翔，上海纽约大学化学助理教授（终身制路线），纽约大学全球特聘助理教授，博士生导师，同时为纽约大学-华东师范大学计算化学联合研究中心常驻成员，以及华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室兼职教授。在2018年加入上海纽约大学之前，曾在密歇根大学安娜堡分校从事博士后研究，以及在加州大学圣地亚哥分校做访问学者。孙翔在布朗大学获得化学博士学位，在中国科学技术大学获得化学物理学士学位。研究兴趣包括开发适用于复杂凝聚态体系中化学动力学的理论和计算方法，旨在研究太阳能转换过程中电荷和能量转移的微观机制以及超快光谱特征。