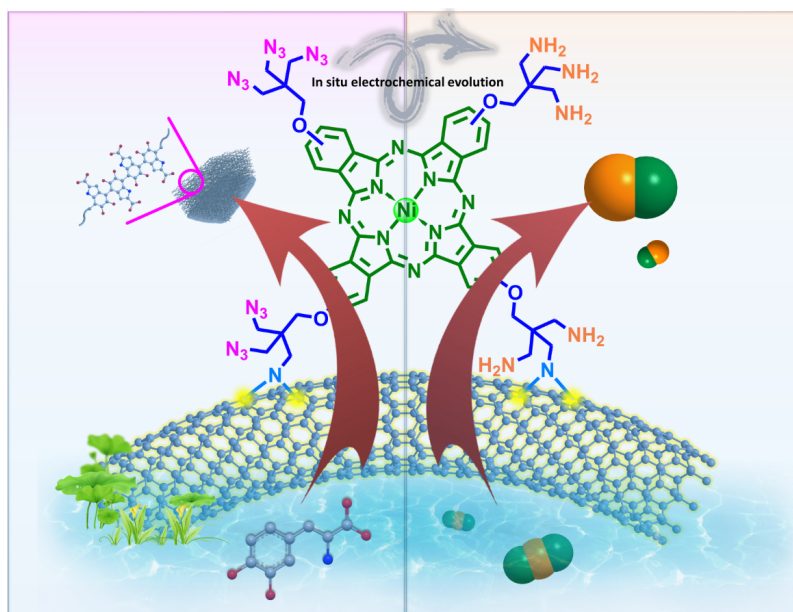


您现在的位置: 首页 > 新闻动态 > 科研进展

福建物构所单分子异质结电催化研究取得新进展

更新日期: 2021-02-07



单分子异质结电催化剂的结构示意图及其CO₂还原-高分子氧化纳米聚集成电催化应用

利用可再生电力将二氧化碳(CO₂)高效转化为高附加值的化学品和燃料,对解决能源和环境危机具有重要的战略意义。目前,电催化CO₂还原(ECR)依然存在着还原电势高、电流密度小、产物选择性低等问题,严重阻碍了其工业化。开发结构明确、高效稳定的电催化剂是解决这些问题的核心。目前,在众多电化学CO₂还原(ECR)催化剂中,具有明确M-N₄结构的异相分子基催化剂表现出了巨大的优势。

鉴于此,在国家自然科学基金项目等项目的资助下,中科院福建物构所结构化学国家重点实验室朱起龙课题组设计并合成了一种含12个叠氮基团的新型镍酞菁(N₃NiPc)分子材料,并用于构筑单分子异质结型双功能电催化剂,实现了阴极CO₂还原和阳极氧化纳米聚合的优异性能与高效集成。由于N₃NiPc独特的分子结构,通过强π-π堆积、电荷转移作用以及共价键合作用,可以有效地将N₃NiPc以单分子形式锚定在碳纳米管(CNT)表面,实现了高稳定的单分子异质结电催化剂的构建。

这种结构独特的单分子异质结实现了活性中心的最大化利用,另外单分子异质结内的强相互作用(电荷转移作用和共价键合作用)可以有效调控M-N₄催化中心的电子结构,从而实现了出色的ECR催化性能。测试结果表明,所制备的单分子异质结电催化剂(N₃NiPc-CNT)表现出100%的CO选择性(CO/H₂产物比>1000)、大的电流密度、高的转化频率(TOF)及优异的稳定性。特别是在超过200 mA cm⁻²的大电流密度下,N₃NiPc-CNT依然可以实现100%的CO选择性(CO/H₂比可达700)。进一步研究发现,N₃NiPc-CNT中丰富的叠氮基团除了用于共价锚定,多余的叠氮基团还可以被原位电化学加氢衍变为丰富的氨基基团,从而在M-N₄活性中心周围构筑富氨基的特殊局域微环境,从而提高了CO₂的局域浓度并促进活化。此外,N₃NiPc-CNT单分子异质结可作为双功能电催化剂用于集成阴极CO₂还原和阳极氧化纳米聚合,同时实现了阴阳双极高附加值产品的高效制备和能耗的有效降低。

这项工作为开发高效实用的ECR电催化剂以及集成电化学合成技术提供了范例性的参考。相关结果发表在国际期刊*Energy & Environmental Science* (DOI: 10.1039/D0EE03731A) 上, 中科院福建物构所博士后马冬冬是该论文的第一作者。

此前, 朱起龙研究团队在原子级纳米多孔催化剂的能源应用研究方面也取得了其它重要进展: *Adv. Mater.* 2021, 33, 2006965; *Angew. Chem. Int. Ed.* 2020, 59, 15014; *Appl. Catal. B-Environ.* 2021, 283, 119591; *Appl. Catal. B-Environ.* 2020, 264, 118530; *Appl. Catal. B-Environ.* 2020, 267, 118720; *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2020, 12, 37986等。

论文链接: <https://doi.org/10.1039/D0EE03731A>

(朱起龙课题组供稿)