

学院概况

师资队伍

科学研究

重点实验室

招生就业

学位教育

校友基金

党建工会

学生工作

规章制度

首页 > 科学研究 > 科技动态 > 韩治际教授课题组：有机染料与金属铁配位的分子光催化剂用于光催化CO₂还原发表于J. Am. Chem. Soc.

韩治际教授课题组：有机染料与金属铁配位的分子光催化剂用于光催化CO₂还原发表于J. Am. Chem. Soc.

发布人：陈昱昀 | 责任审核人：冯双 | 发布日期：2022-03-14 | 阅读次数：381



扫描此二维码分享

通过人工光合作用获取绿色能源是一种重要的策略，利用可见光催化二氧化碳还原，将CO₂转化为增值化学原料（例如H₂、CO、CH₄、CH₃OH和C₂等产物）被认为是一种可持续的二氧化碳资源化有效途径。大部分光催化体系通常由光敏剂，催化剂以及牺牲剂等多组分构成，但存在分子间电子的传递效率低和体系的稳定性差等问题。发展光敏剂和催化剂合二为一的多功能光催化剂有利于提高电子传递效率和体系的稳定性，从而提高体系光催化二氧化碳还原的催化活性。在先前的报道中，利用可见光均相光催化二氧化碳还原的光催化剂大部分都含有贵金属，从催化的成本和实际应用角度考虑，不适合大规模应用。然而不含贵金属的分子光催化剂罕有报道，并且其催化效率较低，通常需要在紫外光的条件下进行。通过有机染料作为配体，光催化剂的可见光吸收大大范围增加（图2）。

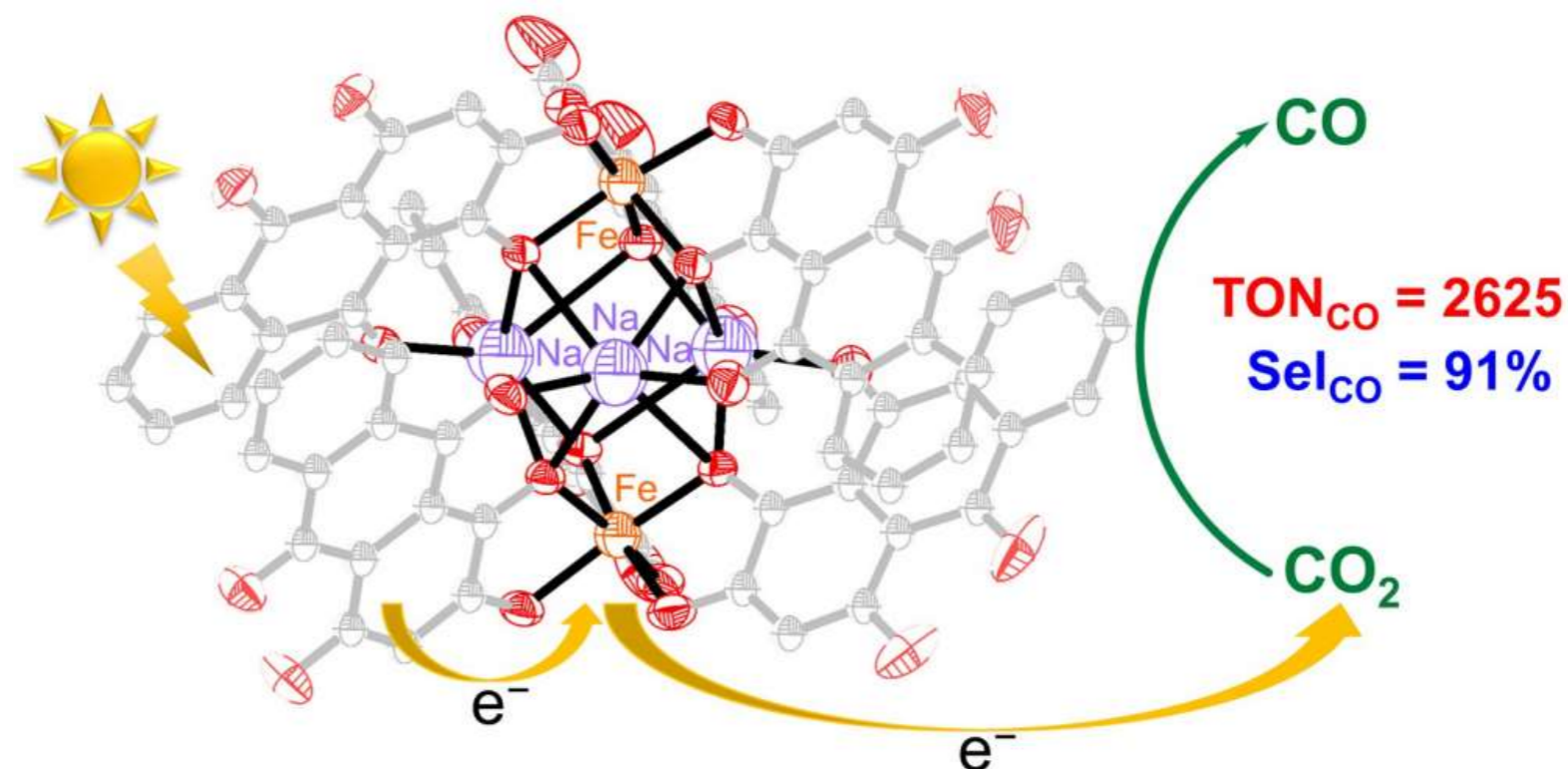


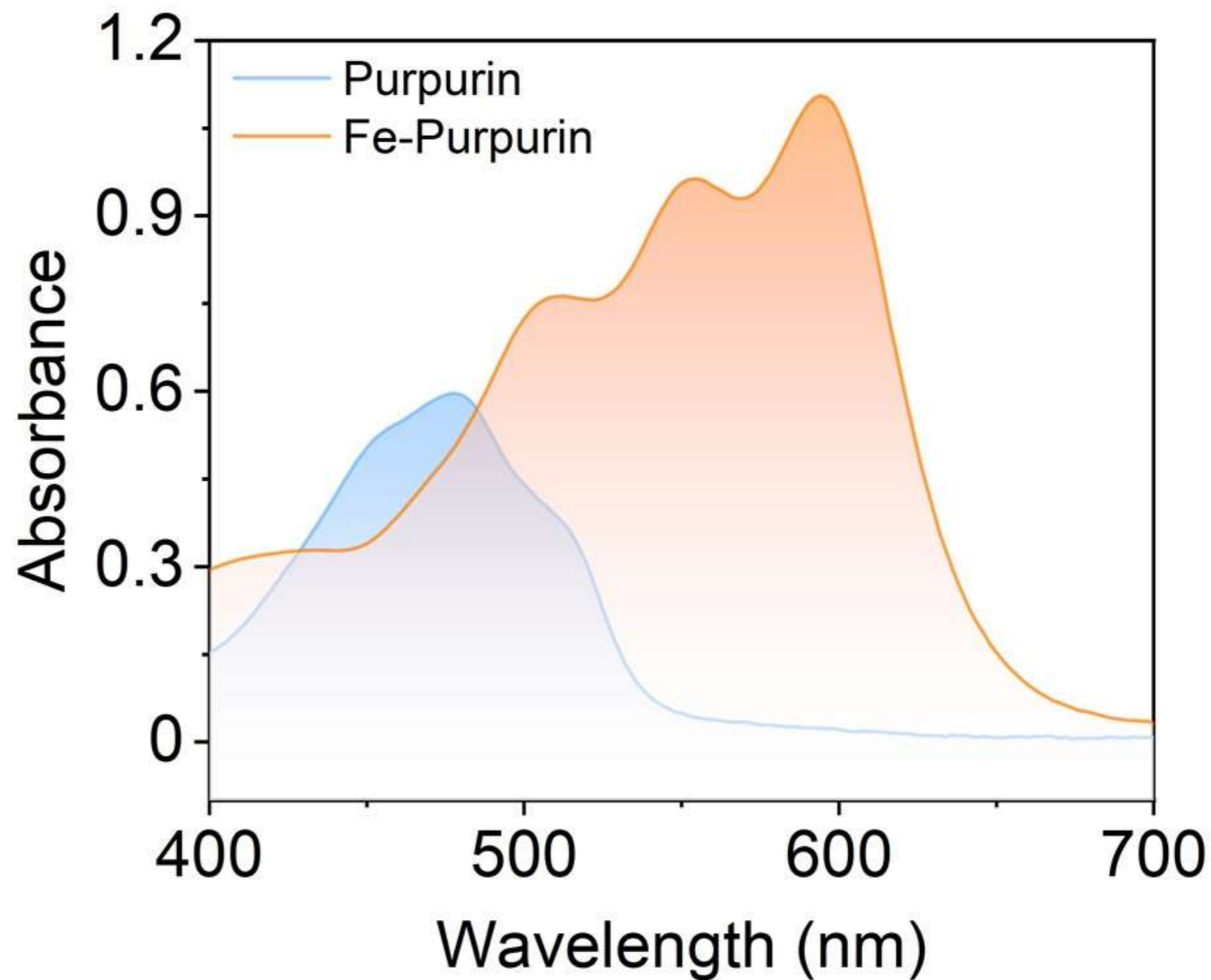
图1红紫素铁 (Fe-Purpurin) 催化CO₂还原过程

图2 Fe-Purpurin和配体Purpurin的紫外可见吸收光谱对照图

近日，中山大学化学学院韩治际教授课题组报道了一种有机染料 (Purpurin) 与廉价金属铁配位的分子光催化剂用于均相光催化二氧化碳还原 (图1)。在前期的研究中，该课题组设计合成了一种新型的金属-有机染料光敏剂(Cu-Purpurin)提高光敏剂的还原性能，促进光催化二氧化碳还原(Nat. Commun. **2021**, 12, 1835), 虽然Cu-Purpurin也能用作光催化二氧化碳还原的光催化剂，但稳定性较差，在可见光下光照一个小时体系就基本上失去了活性。在此基础上，该课题组又设计合成了Fe-Purpurin，同时发现在不额外添加光敏剂或催化剂时也具有催化二氧化碳还原的性能，并且稳定性高达120 h。该系统在450 nm的LED灯源下光照时，光催化CO₂还原为CO的选择性达到91% (CO vs H₂)，可实现超过2625的转换数 (图3)。

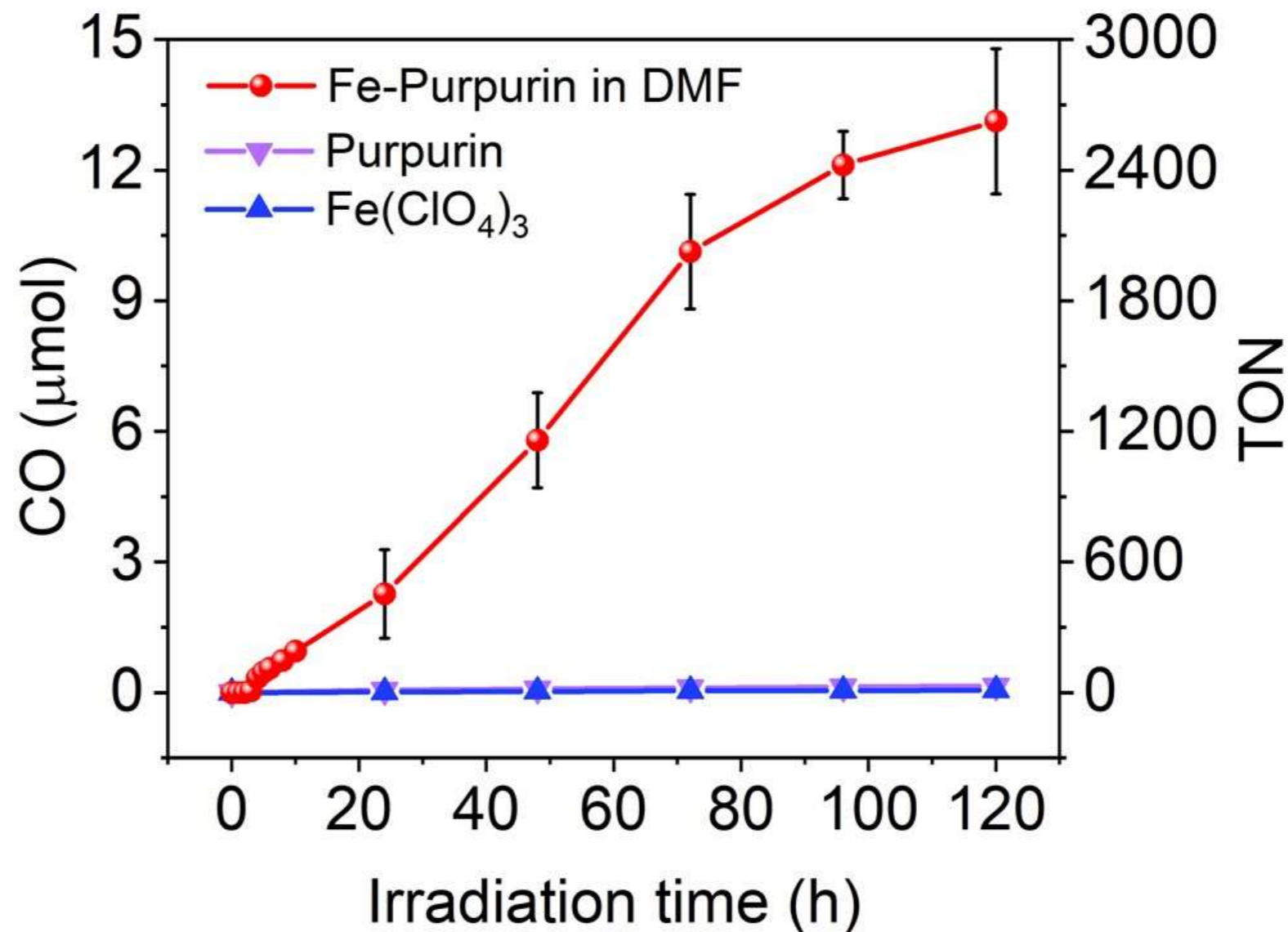


图3 光催化二氧化碳还原实验

根据原位紫外可见吸收光谱, 电化学以及光谱电化学研究表明, 可能存在如图4的催化机理, [Fe^{III}2Na₃(PP)₆]³⁻在450 nm光源下激发, 同时被BIH还原为[Fe^{II}2Na₃(PP)₆]⁵⁻, 在有氧气存在条件下, 该物种又能被氧化为[Fe^{III}2Na₃(PP)₆]³⁻。进一步光照[Fe^{II}2Na₃(PP)₆]⁵⁻, 配体PP上的羰基被质子化变成羟基, 得到[Fe^{II}2Na₃((H)₂PP)₆]⁵⁻物种, 在进一步的光照作用下, 该物种快速地将CO₂还原到CO。同时发现该物种在黑暗条件下也能缓慢地将CO₂还原为CO, 自身被氧化为[Fe^{III}2Na₃((H)₂PP)₆]³⁻。[Fe^{III}2Na₃((H)₂PP)₆]³⁻在光照条件下又能被BIH还原回到[Fe^{II}2Na₃((H)₂PP)₆]⁵⁻。这项工作为设计多功能光催化剂提供了一种新的思路。

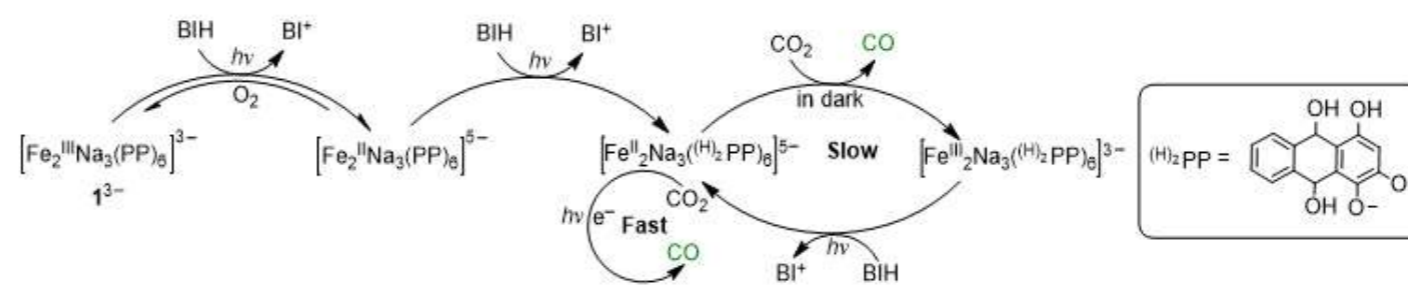


图4 可能的催化机理

相关成果以“Combination of Organic Dye and Iron for CO₂ Reduction with Pentanuclear Fe₂Na₃ Purpurin Photocatalysts”为题发表于Journal of the American Chemical Society

(<https://doi.org/10.1021/jacs.1c13081>)。韩治际教授为通讯作者，化学学院2018级博士袁慧清为第一作者。

©中山大学 化学学院 IT服务

[友情链接](#) [联系我们](#) [旧版](#)



总访问量：9752738人次

◇ 中山大学网络与信息技术中心 ◇ 技术支持