理化所量子点光催化剂活性中心的定点“锚定”研究获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/10380.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

中国科学院理化技术研究所在量子点光催化剂活性中心的定点“锚定”及其优异产氢性能研究方面取得新进展，相关工作
于7月7日在线发表于细胞出版社旗下材料期刊*Matter*
。论文通讯作者为中科院院士吴骊珠和理化所副研究员李旭兵，第一作者为博士高雨季。

通过人工光合成将太阳能转化为化学能并以氢气等形式储存起来，是太阳能转化和利用的一种有效途径。在众多人工光合成制氢反应研究中，基于半导体量子点与廉价金属离子构筑的人工光合成体系展现出了极高的活性和稳定性，已成为光催化分解水制氢的一条高效、便捷且经济的途径。然而，在表面结构复杂、尺寸极小的量子点表面可控锚定活性中心一直以来都是该领域的巨大挑战。传统的光沉积或者热沉积手段不仅无法控制催化位点的位置，而且会引入缺陷态，导致光生电子-空穴的非辐射跃迁。因此，实现廉价金属离子在量子点表面的可控负载是进一步提升可见光催化分解水制氢效率和稳定性的关键。

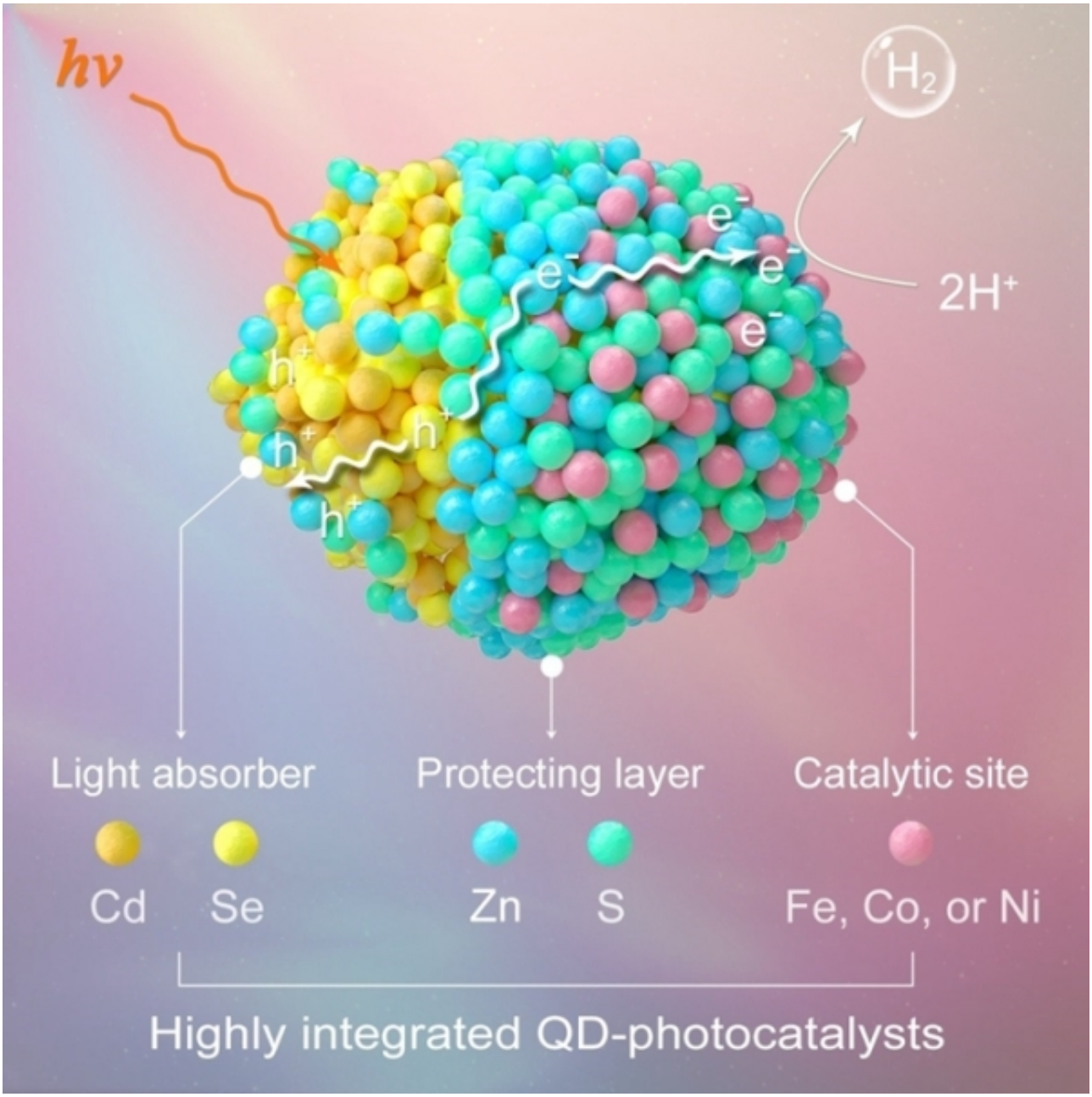
理化所超分子光化学研究中心的研究团队发展了选择性阳离子交换的手段实现廉价金属离子在量子点表面的定点、定向负载，为构筑高效、稳定的光催化剂提供了新策略。研究人员通过连续离子层吸附反应的方式在CdSe量子点表面各向异性地修饰了原子层厚度的ZnS，然后巧妙通过阳离子交换选择性地将ZnS中部分的Zn原子替换为具有催化质子还原活性的金属（如Fe、Co、Ni等，记为M），成功在超小尺寸的量子点（3.2
nm）
上制备得
到集吸光单元（CdSe）、保护层（ZnS）和活性位点（M）于一体的CdSe/$Zn_{1-x}M_xS$量子点。

研究人员利用相关技术研究表明，原子层厚度的ZnS不仅可以避免在CdSe量子点表面引入缺陷，同时缩短了吸光单元与产氢助催化剂之间的距离，使光生电子在91 ps内由CdSe定向传递到活性中心，实现了光生电
子-
空穴对的高效分离。得益于此，制备得到的
CdSe/$Zn_{1-x}M_xS$量子点展现出了优异的光催化产氢活性。以CdSe/$Zn_{1-x}Fe_xS$量子点为例，60
h内的光催化产氢速率保持不变，约为393 ± 6.7 mmol mg^{-1} h^{-1}。光照172 h（约一周），6.0
mL的CdSe/$Zn_{1-x}Fe_xS$量子点水溶液可产生约880 mL氢气，产氢催化循环数高达600000。密度泛函理论（DFT）计算进一步揭示阳离子交换引入的Fe原子为高效质子还原的活性中心，从而极大提高了体系光催化产氢活性。此外，各向异性的ZnS层可以抑制吸光单元的光氧化，提升体系的稳

定性。

该工作为纳米尺度光催化剂的可控功能化提供了新思路，有望为人工光合成器件的设计与集成奠定基础。

文章链接



廉价金属原子在量子点表面的定点锚定

研究团队单位：理化技术研究所

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发