
氧化-还原分子结用于人工光合作用领域

作者：writer 来源：爱科学

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/20251.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！

氧化-还原分子结用于人工光合作用领域。 华南师范大学化学学院兰亚乾教授和刘江教授在晶态材料用于人工光合作用领域取得了重要研究进展。相关研究发表于美国《国家科学院院刊》。华南师范大学化学学院青年英才博士后张雷为该论文第一作者，青年英才博士后李润寒和李晓鑫为共同第一作者，兰亚乾教授和刘江教授为通讯作者。

在自然界中，绿色植物可以通过光合作用将CO₂转化为富能有机物的同时将水氧化为氧气，从而维持大气中的碳-氧平衡。为了模拟这一绿色的转化途径，科学家将不同功能且能带匹配的半导体相结合，设计构建兼具氧化还原活性的半导体异质结光催化剂（如II型、Z型和S型异质结）来完成人工光合作用（即耦合光驱动CO₂还原和水氧化反应）。得益于其高效的光生电子-空穴分离效率和强大的氧化还原能力，异质结光催化剂已广泛应用于人工光合作用。

然而，由于异质结材料具有多相杂化、非周期性分布和复杂的结构等特征，很难在分子水平上探索精准的催化机理并建立对应分子级结构-性能关系。这不利于进一步指导高效全反应催化剂的设计合成。此外，异质结材料难以精确设计和调整结构中氧化和还原组分不同连接方式和空间排列，因此很难系统地研究这些因素对光催化性能的具体影响。

为了解决上述的难题，研究团队提出利用具有氧化还原活性的晶态结构基元构建周期性分布的氧化-还原（OR）分子结光催化剂。这样不仅可以存在更多的电荷分离和转移途径，还可以为深入了解光催化机理提供准确的结构信息。在独立的OR分子结中，光照下氧化和还原组分之间可以发生特定的电子转移方式，这与异质结本质上相似。通过进一步的周期性分布和延伸，分子结晶格中的氧化和还原组分可以在空间上以不同的模式排列和连接，这意味着在分子结构中可以实现更多可能的光生电荷分离和转移途径。因此，探索OR分子结的结构-性能关系，可以为多相分子光催化剂的设计、合成和机理解释提供更准确、更深入的理解。

基于这样的设计理念，研究团队利用氧化型多酸簇（PMo₁₂）和还原型金属-有机簇（Ni₅）以直接（d-OR）、交替（a-OR）或对称（s-OR）方式，合成了三种分子结化合物。与预期相符，这三种分子结化合物均可以实现人工光合作用。值得注意的是，这些具有单相周期性分布的晶态催化剂明显改变和丰富了传统异质结中已发现的光生电荷迁移方向和路径，从而提高了光生电子和空穴的分离效率。

特别是s-OR中的展现出的对称电荷迁移模式，与传统的异质结模型相比，可以更有效地抑制光生电荷复合，从而大大提高光催化性能。结构分析和密度泛函理论计算表明，通过调整氧化簇和还原簇的空间排列，可以同步调节这些OR分子结光催化剂的能级、轨道排布和光生电荷迁移模式，从而进一步优化光催化性能。OR分子结体系的建立为提高人工光合作用中光生电荷利用效

率提供了开创性的思路和解决方案。

上述研究得到了国家自然科学基金项目和广东省基础与应用基础研究基金项目的支持。（来源：中国科学报朱汉斌）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1073/pnas.2210550119>

作者：兰亚乾等 来源：《国家科学院院刊》

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](https://www.iikx.com)转发