科学家构建多团簇组装体催化剂用于串联转化反应

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/25659.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！

科学家构建多团簇组装体催化剂用于串联转化反应。近日，华南师范大学化学学院教授刘江/兰亚乾团队在光催化领域取得重要研究进展，设计构建了两例多功能性团簇催化剂，并开发三串联系统用于低选择性二氧化碳（CO2）还原产物的升级和分离。相关成果发表于《自然—合成》。

太阳能驱动的二氧化碳还原反应（CO2RR）可直接将CO2转化为有用的化学物质，已成为一种前景广阔的二氧化碳循环利用技术。其中，析氢反应（HER）作为一种常见的副反应，它不仅进一步降低了CO2光还原的产物选择性；同时，导致产生的氢气（H2）、碳基还原气态产物以及未转化CO2混合，在进一步利用之前必须先经过复杂而昂贵的分离程序。虽然某些特定比例的CO和H2混合物可作为合成气进行工业转化，但在低选择性CO2光还原系统中，低浓度的CO、H2和剩余未转化CO2的混合并不适合费托合成。因此，将CO2光还原为合成气进行转化仅作为一项概念性工作提出，但目前并未实现。

基于此，兰亚乾团队设计并构建了两例高活性的多功能性团簇基催化剂，分别由具有还原活性的Ni基团簇和快速电子转移能力的W10多金属盐酸盐组装形成（Ni5W10和Ni6W10）。通过这两种催化剂引发了由低选择性CO2光还原反应、炔烃半氢化反应和羰基化反应组成的高效三串联系统，可以将H2和CO混合还原产物依次分转化并分离为高价值的烯烃和羰基化合物，还原产物的原子利用效率最高可达94%。

其中，低选择性CO2光还原反应与炔烃半加氢的原位一锅法耦合，可以极大地提高催化反应整体光转化效率（从935 μmol g-1h-1提高至1425.0 μmol g-1h-1）、CO选择性（从50%提高到80.0%）和炔烃到烯烃的转化率（Conv. > 86.0%, Sel. ≈100.0%）。更重要的是，相比于具有传统独立活性位点的Ni5W10在半加氢反应中经历的Volmer-Heyrovsky反应路径，具有协同活性区域的Ni6W10可通过Volmer-Tafel机理降低加氢过程的能垒，且利用*H的Tafel机制更加有利于串联反应对CO选择性的提高并获得更出色的串联催化性能。

总之，三串联系统不仅能抑制H2副产物的生成，可控控制光催化CO2RR的选择性，并且可以将低价值的H2和CO依次升值和分离。同时，通过三重串联反应，可方便地合成13C标记的抗抑郁药物分子和氘代烯烃化合物。这种高原子利用率的串联系统为未来低选择性光催化CO2RR的实际应用提供了广阔的前景。（来源：中国科学报 朱汉斌）

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s44160-023-00458-5

作者：刘江等 来源：《自然—合成》

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