

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 $\mu\text{mol g}^{-1}\text{h}^{-1}$ 提高至1425.0 $\mu\text{mol g}^{-1}\text{h}^{-1}$ ）、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. $\approx$ 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](https://www.iikx.com)转发