
研究提升共价有机框架材料光催化制氢性能

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/37488.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！

研究提升共价有机框架材料光催化制氢性能。近日，中国科学院大连化学物理研究所研究员周旭凯等在光催化制氢领域取得新进展，通过巧妙的构象异构设计，合成出四种拓扑结构相同但氮锚定位点各异的共价有机框架（COF）材料，系统揭示了氮原子位置对铂（Pt）催化剂分散状态及光催化析氢反应（PHE）性能的调控机制。相关成果发表在《德国应用化学》。

光催化制氢是实现清洁能源转换的关键技术之一，其中Pt是常用的高效助催化剂，它的锚定与分散对反应效率具有决定性影响。然而，由于载体表面存在化学异质性，如何在原子尺度精确调控金属催化剂的锚定位点仍具有挑战。

共价有机框架因其可编程的拓扑结构和明确的孔道环境，为在原子层面研究金属-载体相互作用提供了理想平台。本工作中，研究团队采用氮原子位移工程策略，通过巧妙设计三取代醛与三取代芳香胺或芳香甲基化合物的组合，构建了烯烃连接的COF-A1/A2和亚胺连接的COF-I1/I2四种异构体。这些材料具有相同的六方孔道拓扑，氮锚定位点沿孔道径向距离实现了埃米级精确调控。团队通过原位光沉积法负载Pt后，发现氮原子位置可影响Pt物种的沉积形态。多项表征结果表明，亚胺连接的COF-I2能同时稳定Pt²⁺单原子和金属态铂团簇，形成双活性位点，而烯烃连接的COF-A2则主要锚定铂单原子。

机理研究显示，COF-I2-Pt的优异性能源于Pt团簇与单原子之间的协同效应。密度泛函理论计算表明，Pt团簇作为空穴接力中心，单原子作为电子捕获位点，二者之间的电荷重新分布有效促进了光生电子-空穴对的分离，并优化了质子吸附与还原动力学。飞秒瞬态吸收光谱进一步证实，COF-I2-Pt中关键电荷分离态的长寿命是其高效析氢的主要原因。

该研究通过构象异构策略，在保持化学组成不变的前提下，实现了对载体锚定位点几何结构的精确调控，为理性设计原子级精确的光催化剂提供了新思路。该氮位移工程概念还可拓展至其他多孔框架材料的设计，对开发高效能源转化材料具有重要指导意义。（来源：中国科学报 孙丹宁）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1002/anie.202524704>

作者：周旭凯等 来源：《德国应用化学》

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