“连接键工程”策略显著提升光催化制氢性能

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/41965.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！

“连接键工程”策略显著提升光催化制氢性能。近日，中国科学院宁波材料技术与工程研究所张涛团队联合中国科学院理化技术研究所李旭兵、吴骊珠团队，在二维共轭有机框架（2DCOF）光催化制氢研究方面取得重要进展。研究团队通过连接键工程策略，构筑了一种具有刚性香豆素连接键的全共轭2DCOF，实现了光生载流子的高效分离与长寿命输运，并显著提升了光催化制氢性能。相关成果发表于《自然-合成》。

近年来，共价有机框架材料凭借可调控的结构和电子性质，成为光催化领域的重要材料体系。但传统COF中的连接键通常具有一定的构象自由度，容易发生面外旋转，引起π共轭破坏和振动能量耗散，从而不利于光生载流子的分离与传输。

针对上述问题，研究团队提出通过连接键工程调控2DCOF骨架刚性与光生载流子行为的新策略。研究人员采用一锅法聚合构筑了香豆素连接的全共轭2DCOF。与传统亚胺键和乙烯键相比，香豆素连接键具有更加刚性、平面的分子结构，其计算得到的旋转能垒达到60kJ/mol，分别约为亚胺键和乙烯键的1.9倍和1.5倍，有效抑制了骨架的构象运动。

研究发现，连接键结构的改变能够显著影响COF中的光生电荷动力学。飞秒瞬态吸收光谱表明，香豆素连接COF的电荷分离态寿命达到约1080ps，而相应亚胺连接COF仅为1.07ps，实现了超过3个数量级的提升。

得益于高效的电荷分离与传输，所制备的香豆素连接COF表现出优异的光催化制氢性能。研究进一步表明，香豆素连接键的刚性平面结构、扩展π共轭、供体－受体结构以及羰基与水分子之间的相互作用，共同促进了光生载流子的空间分离和界面质子还原。上述结果表明，COF连接键并非仅承担骨架构筑作用，其化学结构还能够直接调控材料的激发态电荷动力学和光催化性能。

该研究建立了COF连接键结构与光生电荷行为及光催化性能之间的内在联系，提出了通过连接键工程调控共轭有机框架光物理过程的新思路，为高效有机光催化材料的分子设计提供了新的研究路径。（来源：中国科学报 张楠 黄莎莎）

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s44160-026-01146-w

作者：张涛等 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