新型催化剂将二氧化碳光催化为甲烷

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/6202.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！

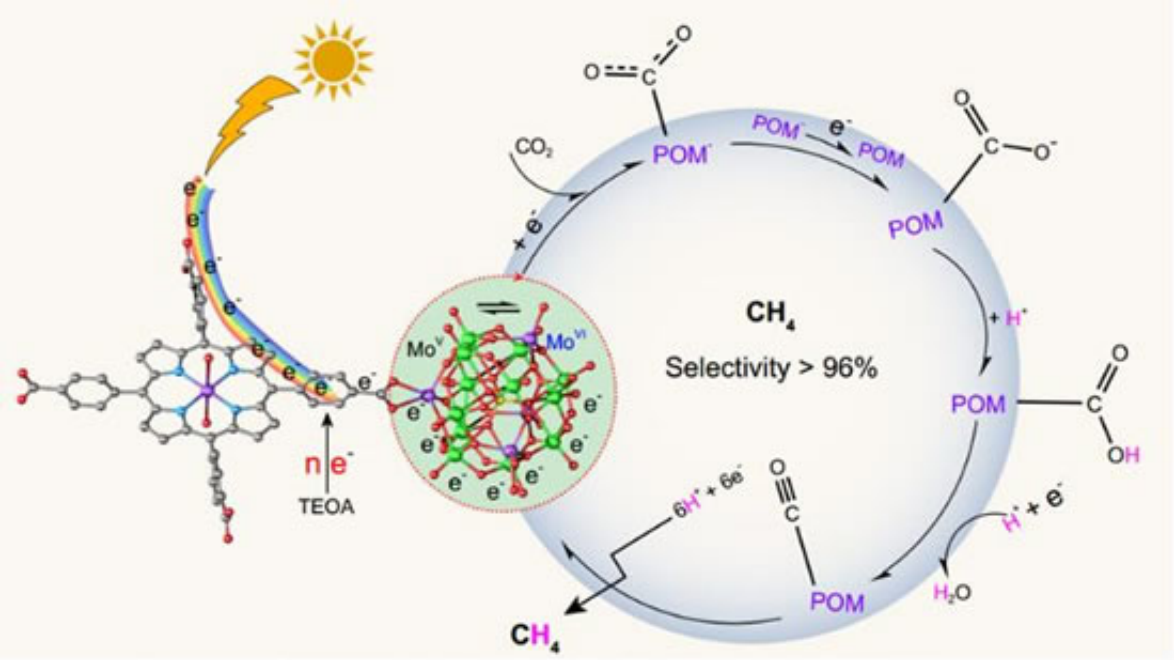


Figure 1. 多酸基配位骨架化合物用于光还原CO生成CH_4的示意图

新型催化剂将二氧化碳光催化为甲烷。《国家科学评论》(National Science Review，NSR)在线发表了南京师范大学兰亚乾教授课题组的最新研究成果，文章设计并引入了具有强还原能力的多酸簇(Zn- ε -Keggin)嫁接到金属卟啉上，构建多酸基金属配位骨架(POMCF)化合物，其在光催化CO2还原系统中对CH4的生成具有高选择性(>96%)。强还原能力的Zn- ε -Keggin连接光敏的卟啉的策略是POMCFs高选择产生CH4的重要原因，Zn- ε -Keggin的八个MoV原子理论上可以提供八个电子来实现多电子还原。

化石燃料持续燃烧产生的过量二氧化碳，导致了能源短缺和环境污染问题。将过剩的CO2人工转化为可用能源产品是实现可持续发展的重要途径。光催化将CO2还原为能源燃料(CO、CH4)或能源化学品(HCOOH、CH3OH)等，为上述转化提供了可行的策略。然而，由于CO2分子本身的化学惰性和较高的C=O键解离焓，其结构活化过程特别困难。其次，多质子及多电子与CO2·−中间体的进一步结合会生成不同的还原产物，这使得产物的选择性降低。另外，高阶质子和电子转移产物的形成仍需要克服相当大的动力学障碍，竞争性的产氢反应进一步增加了选择性获得目标产物的难度。例如，碳氢燃料CH4的生成就是一个巨大的挑战，因为完成八个电子传递过程需要光催化剂提供强大的还原能力和足够的电子。

Zn- ε -Keggin簇，包含了八个MoV原子，理论上可以作为一个强还原性组分并贡献八个电子。因此，如果用还原性多酸簇和卟啉衍生物制备多酸基金属配位骨架化合物，既能实现可见光捕获，又有光激发电子迁移，这将是一种将CO2选择性光还原成多电子产物的良好策略。理论计算表明，价带和导带的光生载流子主要分布在TCPP配体和Zn- ε -Keggin簇上。光激发电子更容易通过还原性Zn- ε -Keggin单元和TCPP连接体之间的有效相互作用流向POM端口。所以，这些POMCFs具有较高的光催化CH4选择性(>96%)。我们期望通过这样一种可行的策略，即将强还原组分嫁接到光敏配体上制备催化剂，实现高选择性地将CO2还原成CH4或其他高价值的碳氢化合物。

该研究以Multielectron transportation of polyoxometalate-grafted metalloporphyrin coordination frameworks for selective CO2-to-CH4 photoconversion为题发表于National Science Review上。论文的通讯作者为南京师范大学的兰亚乾教授，第一作者为该校化学与材料科学学院的博士生黄青和刘江博士。

相关论文信息：https://doi.org/10.1093/nsr/nwz096

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