

理化所成功制备新兴二氧化碳光还原催化剂

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/6555.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！

理化所成功制备新兴二氧化碳光还原催化剂。在自然界中，光合生物能够在太阳光的照射下利用光合色素将二氧化碳(或硫化氢)和水转化为有机物，并释放出氧气(或氢气)，该过程是生物界赖以生存的基础，也是地球碳氧循环的重要媒介。受此启发，利用可见光还原的方式将二氧化碳转化为具有高附加值的化学品和/或太阳能燃料(如CO、HCOOH、CH₃OH、CH₄等)受到了科研工作者越来越多的关注，也被认为是解决能源危机和环境问题的重要途径之一。如何开发出成本更低、稳定性更好、效率更高的二氧化碳人工光还原催化剂是近年来该领域的研究热点。半导体量子点(QDs)具有低成本、易制备、可见光捕获能力强、多激子生成、载流子易调控以及表面位点丰富等优势，是目前最具潜力的建立高效人工光合系统的材料之一，并且已经被广泛应用于光催化产氢、光催化有机转换等领域。然而，目前所报道的绝大多数二氧化碳光还原体系都需要牺牲试剂的加入(如抗坏血酸、亚硫酸钠、三乙醇胺等)以除去无法被消耗的光生空穴，这不仅在经济上增加了二氧化碳还原的成本，而且浪费了光生空穴的氧化能力。

近日，中国科学院理化技术研究所超分子光化学研究团队首次提出了将太阳能驱动的有机氧化反应和二氧化碳还原相结合的实例，充分利用了被激发的电子和空穴，在产生太阳能燃料(一氧化碳)的同时获得了高附加值的有机化学品(频哪醇)(图1)。可见光照下，CdSe/CdS半导体量子点(QDs)的光生电子能够将CO₂转化为CO，空穴氧化三乙胺。如图2所示，CO的生成速率能够高达~4 12.8 mmol g⁻¹ h⁻¹，选择性高达~96.5%。体系光照1.0 h的催化循环数(TON值)和表观量子效率(AQY)分别高达~47360和32.7%。同时，催化剂表现出了优异的稳定性，循环使用多次活性没有出现明显降低。更重要的是，该体系可以在可见光照条件下高效耦合CO₂还原与氧化有机合成。当氧化端用1-苯乙醇及其衍生物代替三乙胺，CO₂还原生成CO依然可以高效、高选择性地。同时，体系中的1-苯乙醇及其衍生物能够被量子点表面的光生空穴氧化偶联形成频那醇，产率高达98%。这一策略可以同时获得有价值的气相产物(CO)和高附加值的液相产品分子(频哪醇)，最大程度地实现了太阳能到化学能的转换。

进一步地，研究团队总结了近年来半导体量子点在二氧化碳光还原领域的最新进展，深入剖析了半导体量子点独特的光物理和结构特性，揭示了其作为光催化二氧化碳还原催化剂的重要优势，从而为该领域的进一步发展提供合理的导向。文章首先从可见光吸收、激子生成、电荷分离与传输以及表面反应等多个方面系统分析了量子点在太阳能转换领域具有广泛应用的原因。之后，详细讨论论述了II-VI族半导体量子点(如CdSe、CdS、ZnSe)、I-III-VI族半导体量子点(如CuInS₂、CuAlS₂)以及钙钛矿型量子点(如CsPbBr₃、CH₃NH₃PbBr₃、Cs₂AgBiBr₆)在光催化CO₂还原领域的最新研究进展。最后，作者指出了半导体量子点在未来二氧化碳光还原领域所面临的前景和挑战，他们认为光生电子和空穴的协同利用实现CO₂和氧化有机转换的耦合是未来光催化CO₂还原的重要方向(图3)。这一策略不仅为实现经济高效的光催化CO₂还原提供了有效方案，同时为太阳能-化学能转换开辟了崭新的视野。

相关工作分别以Efficient and Selective CO₂ Reduction Integrated with Organic Synthesis by Solar Energy 和Semiconductor Quantum Dots: an Emerging Candidate for CO₂ Photoreduction 为题发表于Chem 和Adv.

Mater.，文章第一作者分别为郭庆和吴昊林，指导老师为研究员吴骊珠和副研究员李旭兵。

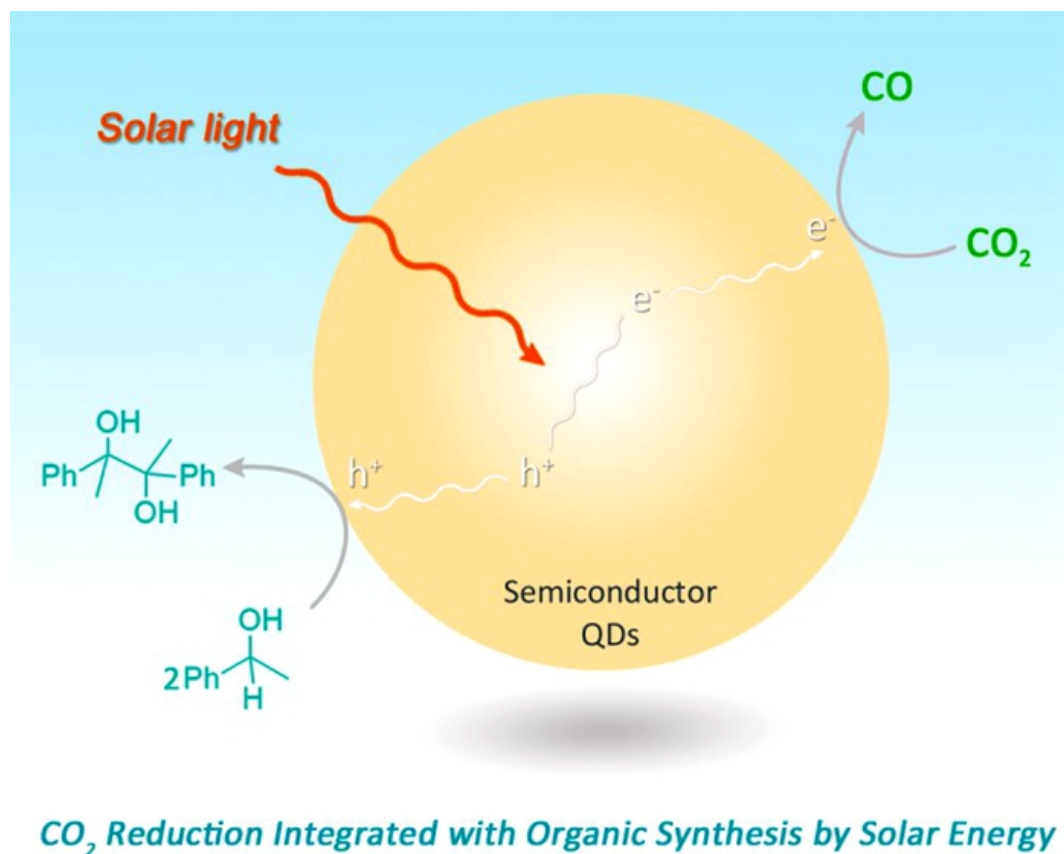


图1. 可见光下半导体量子点光催化CO₂还原耦合氧化有机合成反应

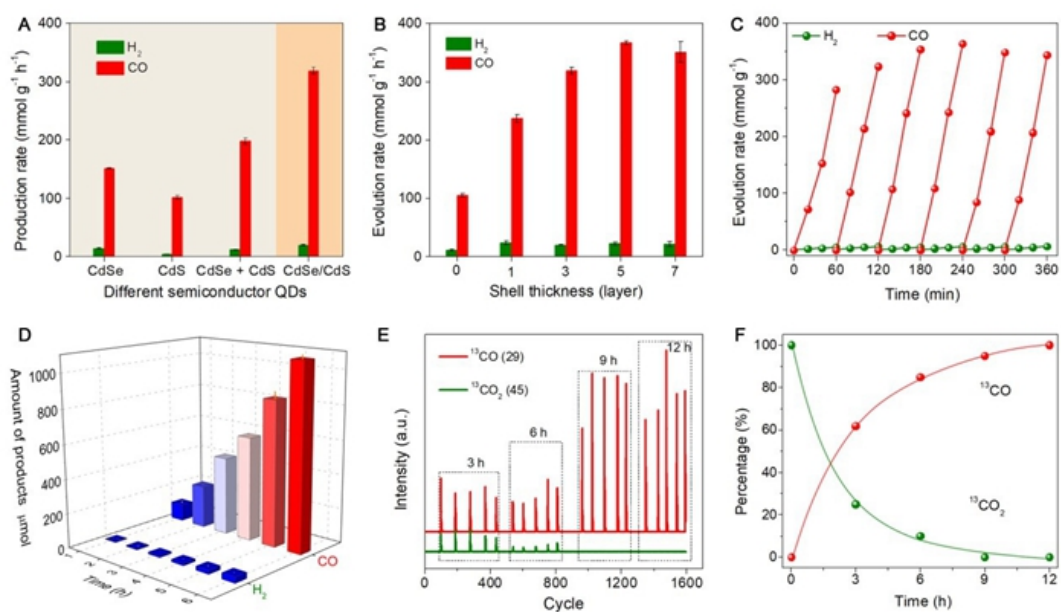


图2. 量子点光催化还原CO₂。(A)不同半导体量子点作为光催化剂的光催化CO₂还原反应速率。(B)相同条件下，不同CdS壳层厚度修饰的CdSe量子点的光催化CO₂还原速率。(C) 催化剂的循环利用。(D) AM1.5光照。(E-F) ¹³C标记实验。

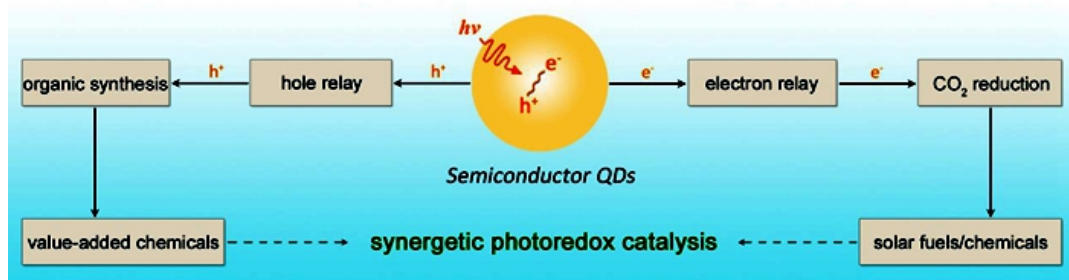


图3. 半导体量子点可见光催化CO₂还原

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](http://www.iikx.com)转发