

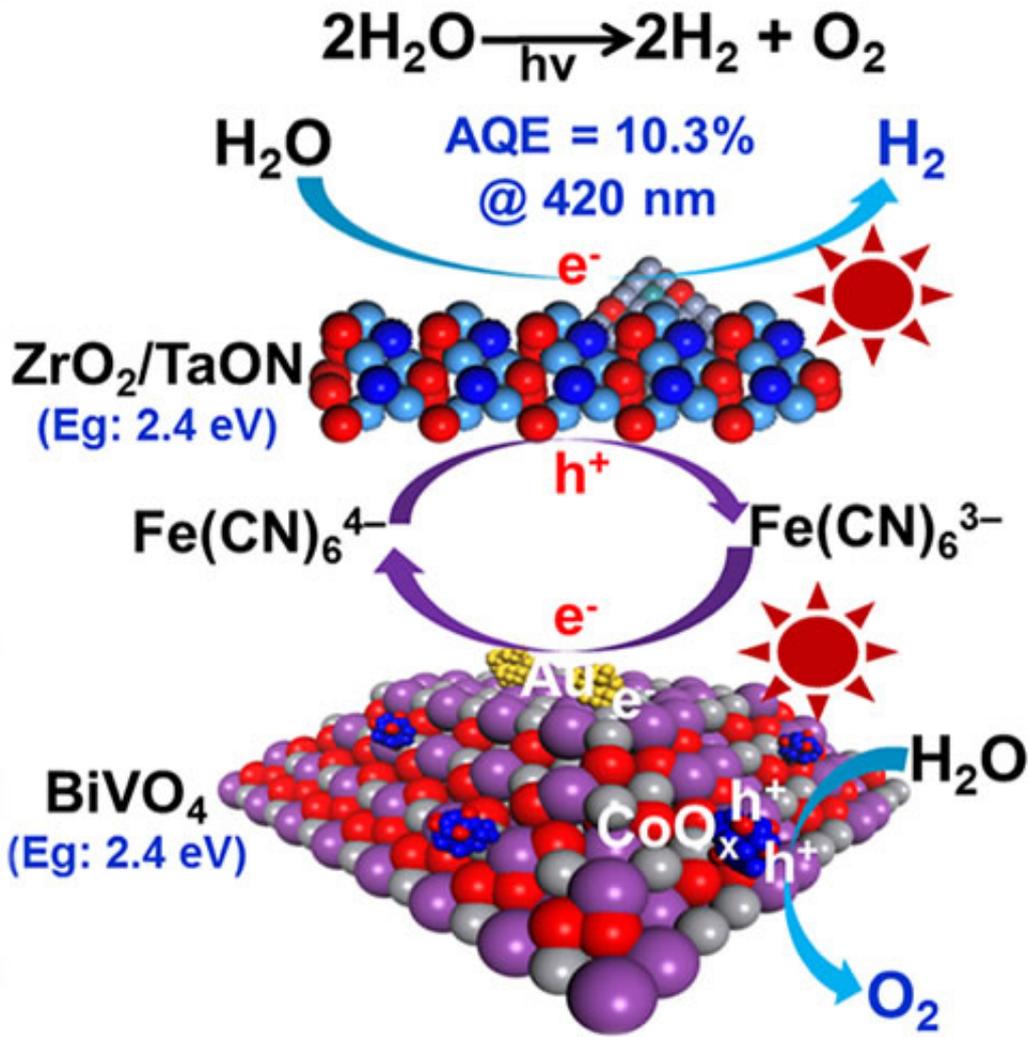
大连化物所宽光谱捕光催化剂全分解水制氢研究取得新进展

近日，中国科学院大连化学物理研究所太阳能研究部中科院院士李灿、研究员章福祥等在宽光谱捕光催化剂Z机制全分解水制氢研究中取得新进展。研究发现，通过设计和调控BiVO₄表面助催化剂Au的负载，以及双助催化剂（Au和CoOx）的选择性负载，可有效促进BiVO₄的产氧性能及其与氧化还原电对离子间的电荷传输，并基于此构筑了高效的可见光Z机制全分解水体系，其表观量子效率超过10%（420nm激发）。相关结果在线发表在Cell旗下的Joule期刊上。

基于光催化剂粉末悬浮体系实现太阳能全分解水产氢有望成为经济可行的太阳能转换方式之一。近年来，李灿和章福祥团队一直致力于利用宽光谱响应材料构筑Z机制全分解水体系，期间发展了“一锅氮化”构筑异质结促进电荷分离的新方法，解决了含氮化合物在空气或惰性气体下热稳定性差、不易构筑异质结的实验难题，进而构筑了多个Z机制全分解水制氢体系（Angew. Chem. Int. Ed., Chem. Sci.）。此外，该团队发展了氨气流保护负载放氧助催化剂的新方法，极大提升了宽光谱捕光催化剂的放氧性能；在此基础上又发现助催化剂的分散性对界面电荷分离有极大影响，其受界面的亲疏水属性影响明显，例如：通过Ta₃N₅表面氧化镁层修饰不仅可促进助催化剂分散和界面电荷分离效率，而且可有效抑制Z机制中的竞争反应，最终使Z机制全分解水制氢成为可能（相关结果发表在J. Am. Chem. Soc., Angew. Chem. Int. Ed., J. Catal., Appl Catal B: Environ.等）。通过不断努力，该团队不仅成功拓展了Z机制全分解水制氢中产氢和产氧端催化剂对可见光的利用范围（产氢端由510nm拓展至650nm；产氧端由450nm拓展至590nm），而且将粉末体系Z机制可见光催化全分解水制氢的表观量子效率记录不断刷新。

该研究利用具有单电子转移、适宜中性环境且具有较低氧化还原电位的[Fe(CN)₆]³⁻/[Fe(CN)₆]⁴⁻为氧化还原电对，基于其前期实验发现，BiVO₄不同晶面间存在光生电子和空穴空间分离（Nature Commun.），采用双助催化剂（Au/CoOx）在BiVO₄的{010}和{110}晶面上的选择性沉积策略使得产氧性能大幅提升。在此基础上通过耦合具有较宽可见光响应的产氢端，实现了高效的Z机制全分解水，取得了10.3%（420nm激发）的全分解水制氢量子效率，刷新了该团队以前保持的6.8%（420nm激发）的记录。此外，研究同时发现Au纳米粒子的负载有利于从BiVO₄抽取电子向[Fe(CN)₆]³⁻的转移。以上研究结果为今后进一步发展高效可见光完全分解水体系奠定了基础。

该研究工作获得基金委、科技部、中科院以及能源材料化学协同创新中心等资助。



原文地址：<http://www.china-nengyuan.com/tech/128322.html>