

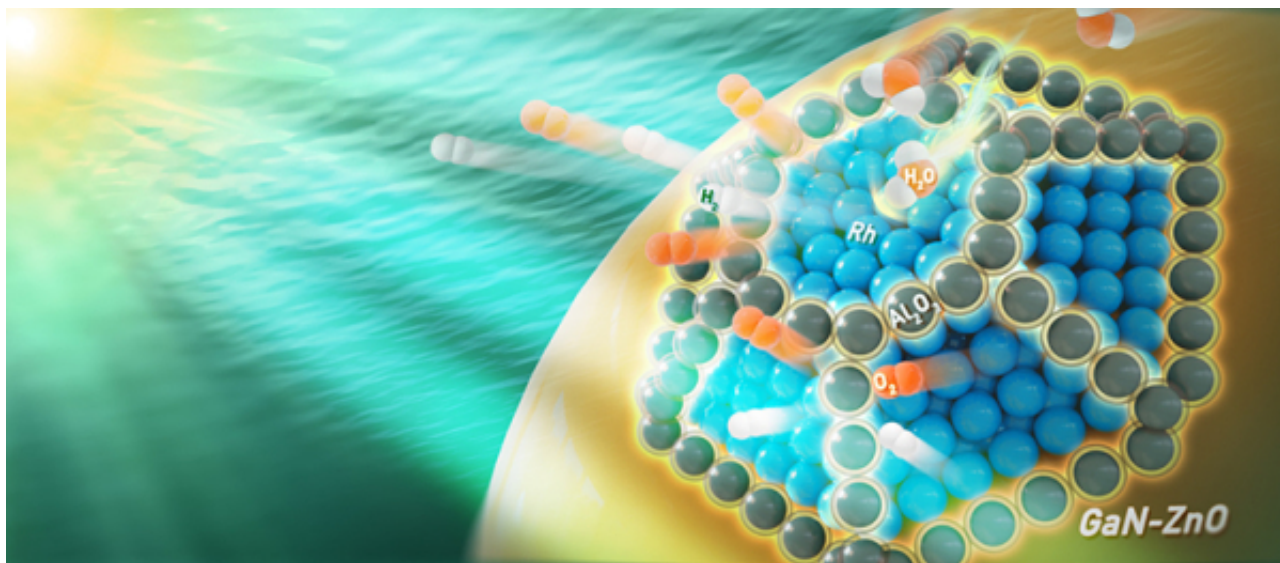
大连化物所发展出抑制光催化分解水制氢逆反应新技术

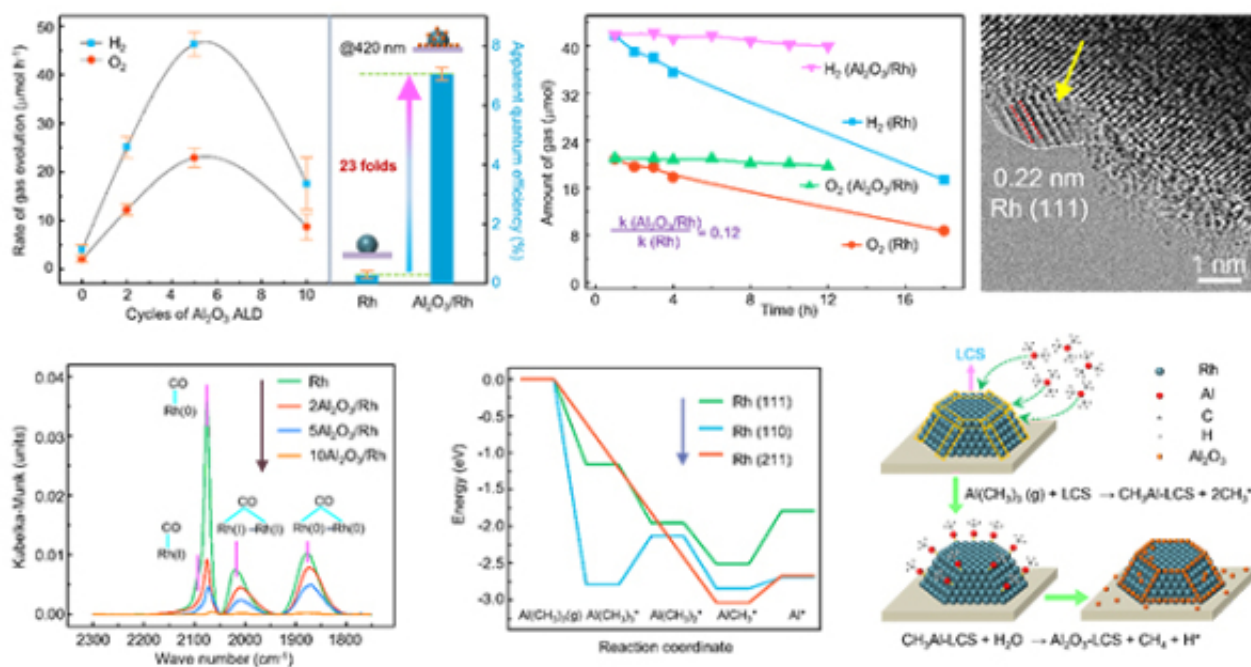
近日，中国科学院大连化学物理研究所催化基础国家重点实验室、太阳能研究部中科院院士李灿、博士后李政和研究员李仁贵等，在纳米颗粒光催化完全分解水制氢的逆反应（氢气和氧气复合生成水的反应）研究方面取得新进展，确认光催化完全分解水逆反应发生于低配位活性位点，并利用原子层沉积技术精准定点修饰抑制逆反应，从而显著提升了光催化完全分解水的性能。

太阳能光催化完全分解水制氢具有重要的应用背景，更是基础科学领域的前沿课题。其中，光催化完全分解水体系中助催化剂表面的氢氧逆反应是该领域长期未解决的重要问题。逆反应的存在使得完全分解水光催化体系的效率很低，甚至无法实现分解水反应，是光催化完全分解水的“最后一公里”。李灿团队长期致力于光催化分解水中助催化剂及其表面的催化作用研究，取得系列重要进展【在国际上较早提出并发展了双助催化剂概念（*J. Catal.*、*Catal. Lett.*、*Acc. Chem. Res.*、*Energy Environ. Sci.*），并开发出单核锰水氧化催化剂，活性可媲美自然界水氧化催化剂的产氧活性（*Nat. Catal.*）】。

本工作聚焦光催化完全分解水体系中助催化剂表面的氢氧逆反应问题，以典型的可见光催化完全分解水的催化剂Rh/GaN-ZnO为研究对象，通过原子层沉积（ALD）的方式将氧化铝（ Al_2O_3 ）沉积到光催化剂反应中心，可显著提升光催化全分解水的活性。研究发现，ALD沉积 Al_2O_3 可以使Rh/GaN-ZnO上的逆反应降低90%，进一步通过光谱表征结合理论模拟证明， Al_2O_3 主要沉积在Rh纳米颗粒表面的低配位点上，揭示了Rh表面的低配位点是氢氧逆反应的主要反应位点。该研究通过ALD选择性地将 Al_2O_3 沉积到Rh表面低配位点上，有效阻断了氢氧逆反应的发生，从而将Rh/GaN-ZnO上可见光催化完全分解水的量子效率从0.3%提升至7.1%。此外，该研究还发现ALD选择性沉积氧化物的策略适用于其他贵金属助催化剂，证明了这一策略的普适性。该工作明确了光催化完全分解水中氢氧逆反应的活性位点和机制，为解决这一挑战性问题提供了新的普适性策略。

相关研究成果以Blocking the reverse reactions of overall water splitting on a Rh/GaN – ZnO photocatalyst modified with Al_2O_3 为题，发表在《自然-催化》（*Nature Catalysis*）上。研究工作得到国家重点研发计划、国家自然科学基金委员会“人工光合成”基础科学中心等的支持。





原文地址: <http://www.china-nengyuan.com/tech/191382.html>