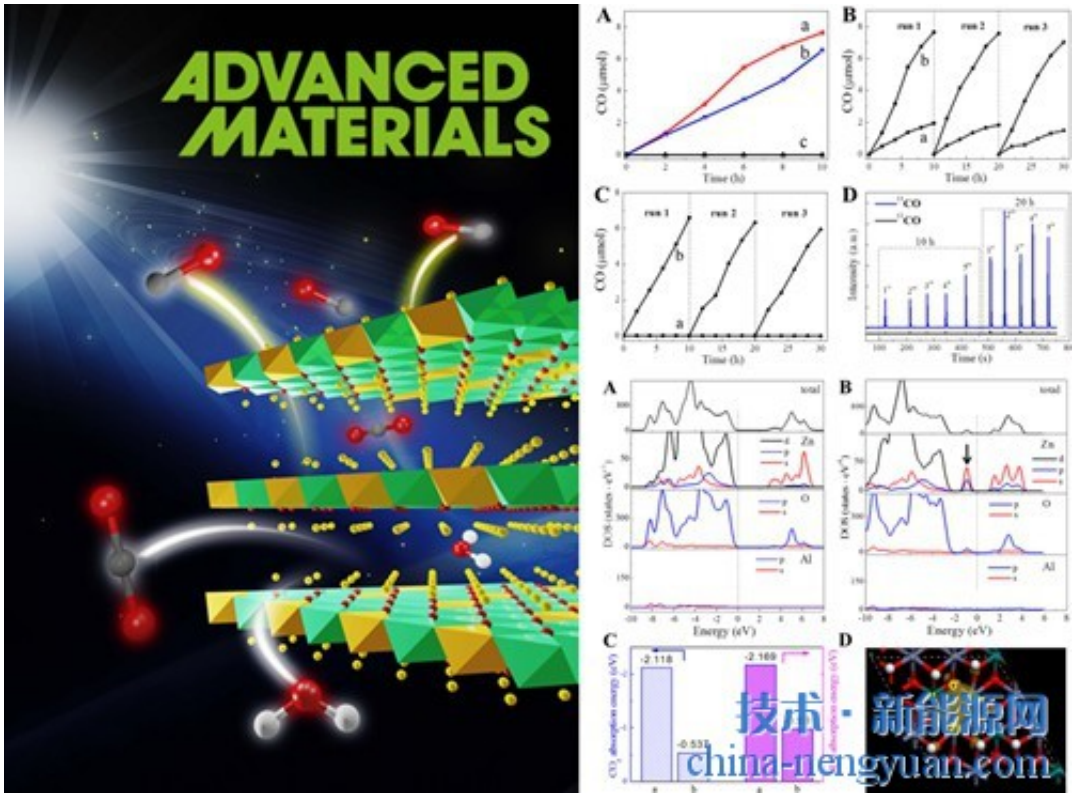
理化所在富含缺陷位的超薄水滑石光催化剂研究中取得进展



多相金属催化剂在化学工业领域应用极其广泛。其中不饱和配位金属Fe(II)、Co(I)/Co(III)、Ni、Rh等因其暴露丰富的电子
轨道，有利于
提高电子与反应分子传递的
效率，显示了卓越的催化活性和选择性。其中不饱和配
位Zn^{d+}
(d<2)在光催化甲烷脱氢制备乙烷等催化方面引起了人们的广泛关注。传统含不饱和Zn的催化材料一般仅局限于ZnO材料和通过高温蒸镀Zn金属与分子筛所得的催化剂。上述有限的材料以及合成方法繁琐、易于在空气中中毒以及不能规模化生产等问题，进一步限制了该催化体系的研究和应用。近些年，随着石墨烯等超薄二维纳米片的发展，其表面富含丰富的氧缺陷（V_o）有望为制备不饱和配位金属提供思路。

近期，中国科学院理化技术研究所超分子光化学研究团队研究员张铁锐和英国牛津大学教授Dermot O’Hare合作制备了一种富含缺陷的超薄水滑石（LDHs）纳米材料，通过精准调控层板厚度，成功引入了氧缺陷，进而实现了与氧原子键合的不饱和配位Zn的合成。在题为Defect-rich Ultrathin ZnAl-Layered Double Hydroxide Nanosheets for Efficient Photoreduction of CO_2 to CO with Water 的文章中，研究人员通过简单的水热合成方法，可控水滑石纳米晶的生长微环境，成功实现了水滑石厚度从280层到2层的调控，粒径进一步控制在30 nm。X射线精细结构衍射等手段表明，该超薄纳米片表面富含大量的氧缺陷，影响
了Zn金属周围的配位环境，进而形成了Zn^{+}-V_o
复合体。
该缺陷位可以有效
作为电子受限位，有利于光生电子传
导到反应分子，在光催化还原温室气体CO_2
方面展现了非常好的催化效率和循环稳定性。采用传统方法合成的大粒径LDH因为没有该催化活性位，没有明显的光催化活性。通过理论计算和实验结合的手段，进一步证实了表面掺杂的氧缺陷作为杂质能级，影响了Zn原子周围电子轨道密度，提高了对CO_2
吸附能力，促进了光催化还原反应。该合成方法简单，催化剂对空气等不敏感，易于保存，并且可以规模化制备；该思路同样适用于制备其他不饱和金属（Fe、Co、Ni、Ti等）掺杂的水滑石材料，为制备高效多相金属催化剂搭建了一个材料平台。

相关研究结果发表在国际材料期刊《先进材料》（Advanced Materials）上，并被选为当期“首插图（frontispiece）”向读者重点推荐。随后国际著名科学媒体ChemistryViews以Desirable Defects in Photocatalytic Nanoslices 为题对该研究进行了亮点点评（highlight）。报道认为，通过引入缺陷位，实现了不饱和配位Zn的调控，提供了一种非贵金属光催化还原CO_2的路径；更重要的是，该方法不仅局限于Zn，还适用于制备其他不饱和配位金属。

相关研究工作得到了科技部国家重点基础研究计划、国家自然科学基金委优秀青年科学基金项目、重大研究计划培育项目、青年基金、中组部青年拔尖人才支持计划、中国科学院前沿科学重大突破项目的大力支持。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/85128.html