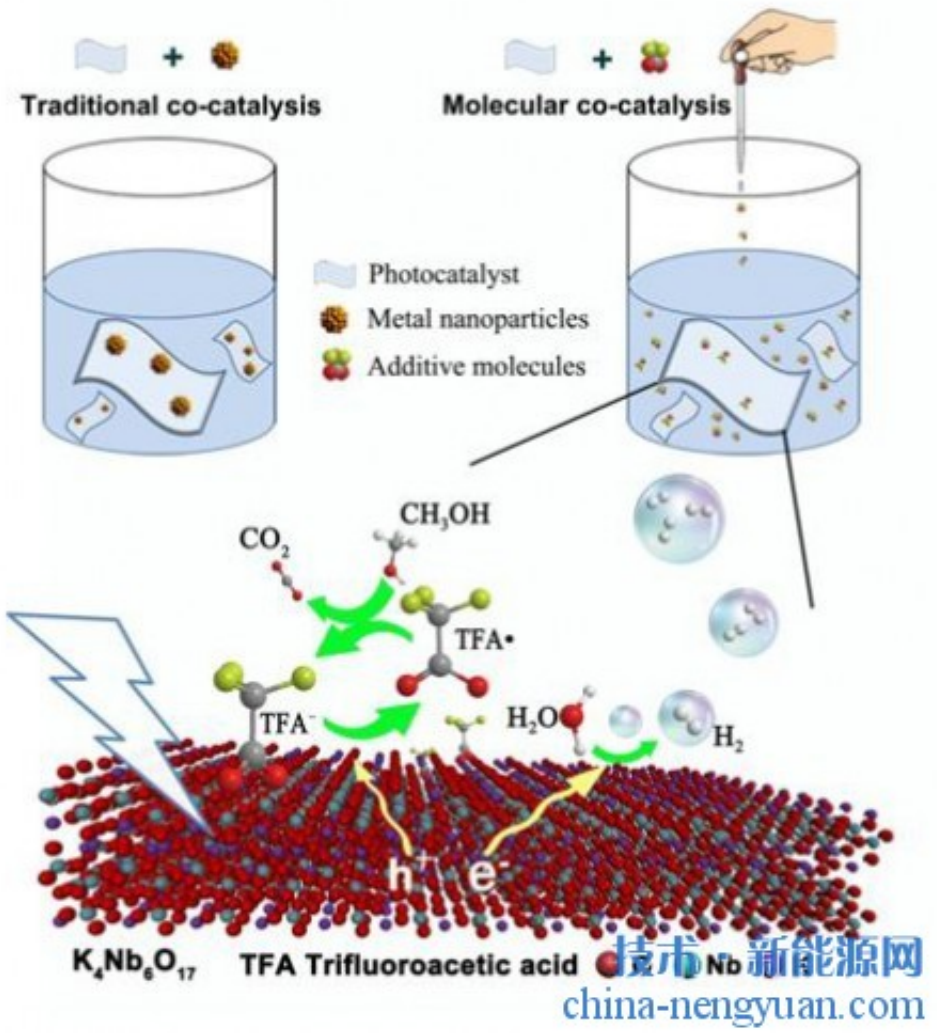
中国科大光催化产氢新型助催化剂研究取得进展



水溶性小分子助催化剂三氟乙酸加速空穴转移

近日，中国科学技术大学教授吴长征研究组与张群研究组合作，发展出全新水溶性小分子助催化剂以加速光生空穴转移，实现了光催化产氢性能的大幅提升，从而为摆脱目前广泛使用的贵金属助催化剂提出了新的解决途径。相关研究成果10月21日在线发表于《自然·通讯》（Nature Comm. 2015, 6, 8647）。

把低密度的太阳能高效转化为可存储的化学能是发展可再生能源的重要途径。然而，光生载流子的复合严重限制了人工光催化体系的转化效率，如何实现光生载流子分离的最大化成为提高光催化效率的重要挑战。负载型贵金属被广泛认为是高效助催化剂，然而贵金属作为固体催化剂往往带来有限的接触面积，同时高昂的成本也极大地限制其大规模应用。

针对上述挑战，吴长征研究组突破了传统观点认为高效助催化剂大多集中于固相贵金属的局限，首次发现水溶性小分子三氟乙酸（TFA）是一类全新、高效的分子助催化剂。他们创新性地发现TFA存在可逆氧化还原电对，并且在光催化环境中表现出高度的可逆性，这为传递光生载流子提供了新的思路。分子助催化剂TFA通过自身氧化还原电对实现了分子间快速的自由基反应，加速了空穴的快速转移。

在铌酸钾二维纳米材料高比表面积优势的基础上，成功将光催化产氢性能提高了32倍。核磁共振、元素分析、原位电子自旋共振等系列表征证实了铌酸钾价带的光生空穴与吸附的TFA阴离子反应能产生高活性的TFA自由基；同时TFA自由基转移空穴至甲醇分子，从而实现铌酸钾二维纳米材料催化体系中电子-空穴对的高效分离。

其合作者张群研究组采用超快瞬态吸收光谱和稳态/瞬态荧光光谱等测量手段，刻画了该模型体系中与空穴陷阱态和电子陷阱态密切相关的光生载流子动力学行为和机制，从而证实了水溶性小分子助催化剂策略的合理性和有效性。超快动力学分析表明TFA添加后铌酸钾纳米片光生电子的寿命提高了近3倍，揭示出小分子助催化剂诱导的高效空穴转移和电子-空穴对分离是该体系光催化性能大幅提高的根本原因。小分子助催化剂策略的提出，有望摆脱传统贵金属助催化剂体系，为设计廉价、高效的光催化体系开辟新途径。

这项研究工作得到了国家基金委、科技部、中科院、能源材料化学协同创新中心、量子信息与量子科技前沿协同创新中心的支持。

原文地址：http://www.china-nengyuan.com/tech/85320.html