

化学化工学院孔祥建和龙腊生教授课题组研究成果发表在 Nature Communications

发布时间: 2018-08-31 浏览次数: 1964



ARTICLE

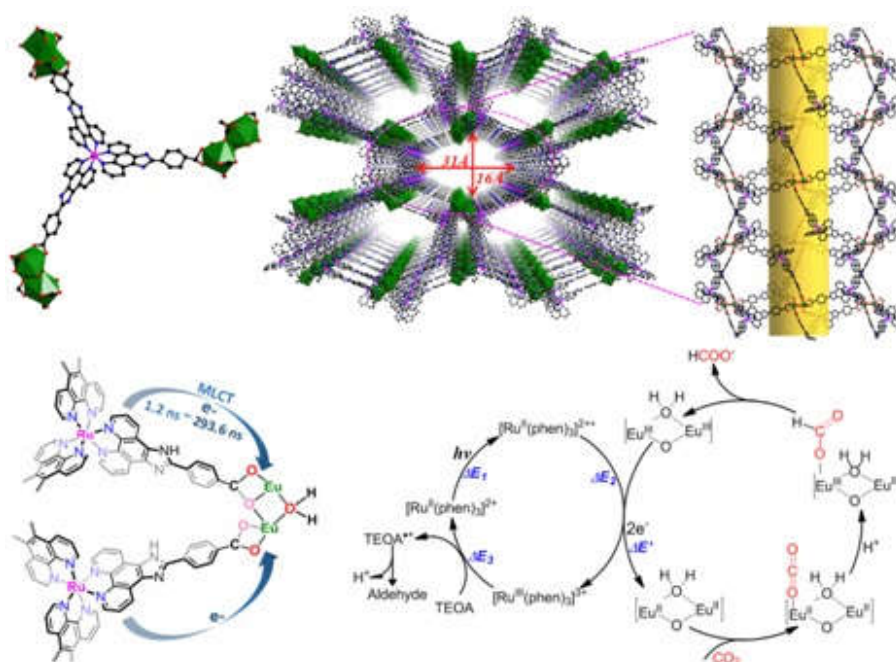
DOI: 10.1038/s41467-018-06639-7 OPEN

Photo-generated dinuclear {Eu(II)}₂ active sites for selective CO₂ reduction in a photosensitizing metal-organic framework

Zhi-Hao Yan¹, Ming-Hao Du¹, Junxue Liu², Shengye Jin², Cheng Wang¹, Gui-Lin Zhuang³, Xiang-Jian Kong¹, La-Sheng Long¹ & Lan-Sun Zheng¹

Photocatalytic reduction of CO₂ is a promising approach to achieve solar-to-chemical energy conversion. However, traditional catalysts usually suffer from low efficiency, poor stability, and selectivity. Here we demonstrate that a large porous and stable metal-organic framework featuring dinuclear Eu(III)₂ clusters as connecting nodes and Ru(phen)₃-derived ligands as linkers is constructed to catalyze visible-light-driven CO₂ reduction. Photo-excitation of the

化学化工学院孔祥建教授与龙腊生教授课题组在稀土簇基金属有机框架材料光催化还原CO₂的研究中取得重要进展, 相关结果“Photo-generated dinuclear {Eu(II)}₂ active sites for selective CO₂ reduction in a photosensitizing metal-organic framework”发表在《自然-通讯》(Nature Communications, 2018, 9, 3353)。



利用太阳光驱动CO₂还原不仅可降低大气中CO₂浓度, 而且可以生成重要的化工原料, 是缓解气候变暖和开发新能源的理想途径之一。然而如何制备高效光催化剂将CO₂高选择性地转化为高附加值

的化学产品极具挑战性。课题组巧妙地将具有催化活性的稀土簇合物与光敏配体组装在一起,合成了具有大孔结构的稀土Eu-Ru(phen)₃-MOF催化剂,实现了可见光驱动的CO₂到甲酸盐的高效选择性转化。研究表明,该材料光催化生成甲酸盐的反应速率可达到321.9 μmol h⁻¹ mmol MOF⁻¹,这是至今为止报道的光催化还原CO₂转化为甲酸盐活性最高的MOFs催化剂。原位电子顺磁共振(EPR)结果显示,光照条件下原位生成的双核 Eu²⁺单元是光催化活性位点。另外,通过超快瞬态光谱和稳态/瞬态荧光光谱数据,并结合密度泛函理论计算(DFT),揭示了光催化反应体系的光生电荷分离与传输机制,解释了光催化反应机理。该工作为设计具有高催化活性的稀土MOFs材料提供了实验参考。



该项研究工作由博士生闫志浩完成,博士生杜明浩参与部分表征工作;中国科学院大连化学物理研究所金盛焯研究员、刘俊学博士在瞬态光谱表征中给予了支持;我校化学化工学院汪骋教授在数据分析过程中给予大量帮助;理论计算由浙江工业大学庄桂林副教授完成。研究工作得到科技部(项目批准号:2014CB845601)、国家自然科学基金委(项目批准号:21422106、21673184、21431005、21721001、21390391)、教育部霍英东基金会青年教师基金(项目批准号:151013)等资助。

论文链接: <https://www.nature.com/articles/s41467-018-05659-7#Ack1>

(化学化工学院)

责任编辑:黄伟栋