



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 115155657 A

(43) 申请公布日 2022.10.11

(21) 申请号 202210898322.7

(22) 申请日 2022.07.28

(71) 申请人 五邑大学

地址 529000 广东省江门市蓬江区东成村  
22号

(72) 发明人 许成群 刘海洋 李德志

(74) 专利代理机构 广州嘉权专利商标事务所有  
限公司 44205

专利代理师 罗新

(51) Int. Cl.

B01J 31/02 (2006.01)

C01B 3/04 (2006.01)

权利要求书2页 说明书9页 附图4页

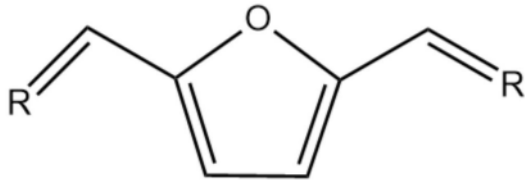
(54) 发明名称

一种光催化材料及其制备方法与应用

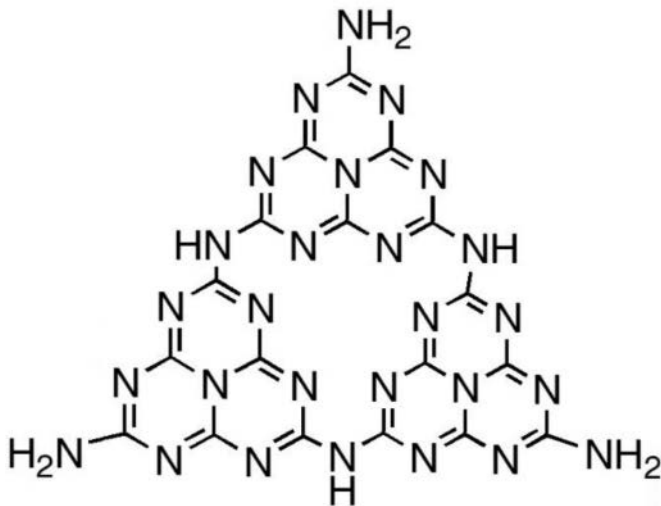
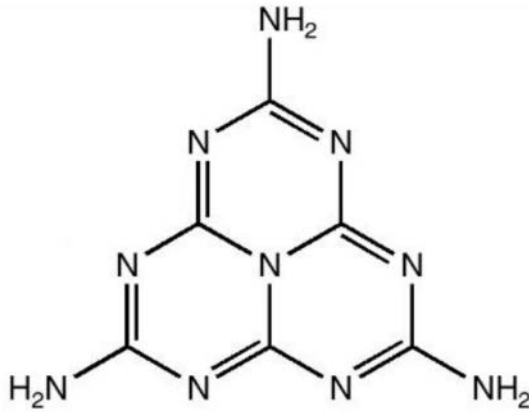
(57) 摘要

本发明公开了一种光催化材料及其制备方法与应用。该光催化材料,其结构式中包括-C=N-和芳香环。本发明在石墨相碳化氮结构中引入了有机单体2,5-二甲酰基呋喃,使得2,5-二甲酰基呋喃嫁接于石墨相碳化氮网络结构后得到该光催化材料。该光催化材料,其载流子迁移速率明显增加,光响应范围扩展到了650nm,比表面积扩大到了102.8m<sup>2</sup>/g,此外,相对于石墨相碳化氮,所述光催化材料的电子与空穴的复合率降低、电子空穴分离率提高,进而抑制了光生载流子的快速复合,促进了光催化产氢性能的显著提升,本发明制备的所述光催化复合材料在产氢效率是常规光催化复合材料的14-15倍。

1. 一种光催化材料,其特征在于:包括以下结构式:



其中,R选自以下结构或者以下结构的衍生物:



2. 一种制备如权利要求1所述的一种光催化材料的方法,其特征在于:包括以下步骤:  
混合含氮有机物和2,5-二甲酰基咪喃,得到混合物;

煅烧所述混合物,得到所述光催化材料。

3. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于:

所述含氮有机物和所述2,5-二甲酰基咪喃的质量比为10000:(3-6)。

4. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于:

所述含氮有机物包括尿素、三聚氰胺和双氰胺中的至少一种。

5. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于:

所述煅烧的温度为530-550℃。

6. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于:

所述煅烧的时间为4-5小时。

7. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于:  
所述煅烧的升温速率为5-15°C/min。
8. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于:  
还包括将煅烧后的所述混合物的产物进行研磨的步骤。
9. 如权利要求1所述的一种光催化材料在水凝胶光催化膜中的应用。
10. 如权利要求1所述的一种光催化材料在可见光下光分解水制氢反应中的应用。

## 一种光催化材料及其制备方法与应用

### 技术领域

[0001] 本发明涉及光催化材料相关技术领域,尤其是涉及一种光催化材料及其制备方法与应用。

### 背景技术

[0002] 光催化技术是一种利用光催化剂在光照条件下发生催化反应的技术,是一种在能源和环境领域有着重要应用前景的绿色技术。化石能源是一种碳氢化合物或其衍生物,它由古代生物的化石沉积而来,是一次能源。化石能源所包含的天然资源有煤炭、石油和天然气,化石能源的使用过程中会新增大量温室气体 $\text{CO}_2$ ,化石燃料在不完全燃烧后,可能产生一些有污染的烟气,甚至会散发出有毒的气体威胁全球生态。21世纪以来,化石能源的过度使用导致了全球的能源危机和环境危机,因此建立清洁能源体系迫在眉睫。氢气作为一种可再生清洁能源在该体系中发挥着重要作用,氢气可用于燃料电池,还能用于化工行业。现有的制氢气的方法主要是光解水制氢,光解水制氢是一种将太阳能转化为可利用能源的重要方式,也是一种储存太阳能的有效方式。由于光解水的性能受到催化剂光生电荷转移、带隙结构和稳定性的直接影响,这使得现有的方法制氢效率并不高,因此设计一种新型高效环保的光催化剂是提高制氢效率的关键。

[0003] 石墨相氮化碳(Graphitic carbon nitride, $g\text{-C}_3\text{N}_4$ )是一种二维片层结构的共轭聚合物,其性质稳定,与石墨结构相近。 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 作为一种新型无金属聚合光催化剂,具有绿色、经济、稳定性好、光学性能和电子性能好等优点,在光催化领域受到了广泛的关注; $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 目前可应用于光催化降解污染物领域、光解水制氢领域、光催化还原 $\text{CO}_2$ 领域和选择性有机合成反应领域。 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 作为类石墨烯材料的典型代表,带隙为2.7eV,可以吸收可见光,由于其层与层之间以范德华力相连,使得其具有较好的化学与热力学稳定性,此外 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 还具有无毒、来源丰富、价格低廉,制备简单等特点。但是, $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 在实际的应用中,由于纯相的 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 本身存在很多缺点影响其光催化性能的提高,使得 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 受限于快速电荷载流子复合、低表面积和对可见光的有限吸收,特别是 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 具有较高的电子空穴复合率,使得其光催化效率受到严重限制。

[0004] 因此,急需找到一种光催化材料,以改善 $g\text{-C}_3\text{N}_4$ 光催化性能,拓宽光响应范围及提高其电子空穴分离率。

### 发明内容

[0005] 本发明所要解决的第一个技术问题是:

[0006] 提供一种光催化材料。

[0007] 本发明所要解决的第二个技术问题是:

[0008] 提供一种所述光催化材料的制备方法。

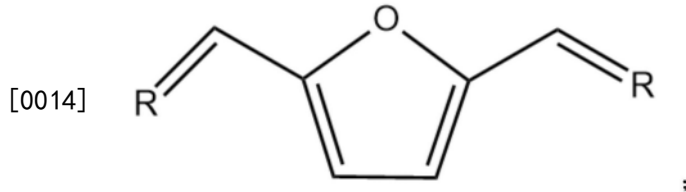
[0009] 本发明所要解决的第三个技术问题是:

[0010] 所述光催化材料的应用。

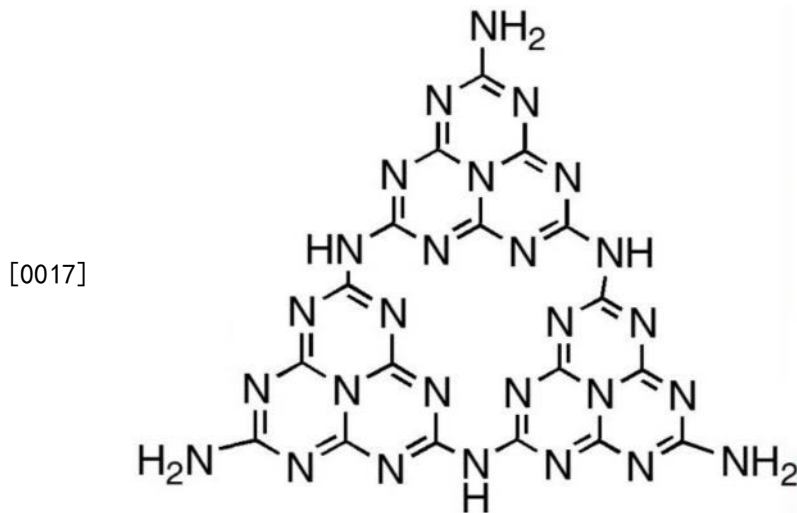
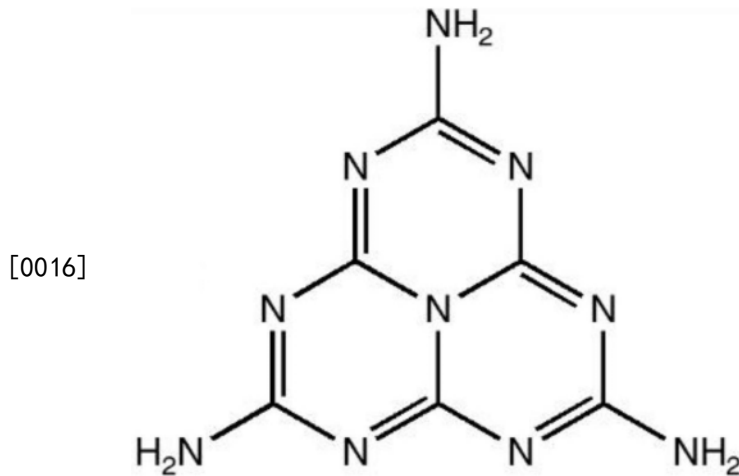
[0011] 本发明还提出一种光催化材料在水凝胶光催化膜中的应用。

[0012] 本发明还提出一种光催化材料在可见光下光分解水制氢反应中的应用。为了解决所述第一个技术问题,本发明采用的技术方案为:

[0013] 一种光催化材料,包括以下结构式:



[0015] 其中,R选自以下结构或者以下结构的衍生物:



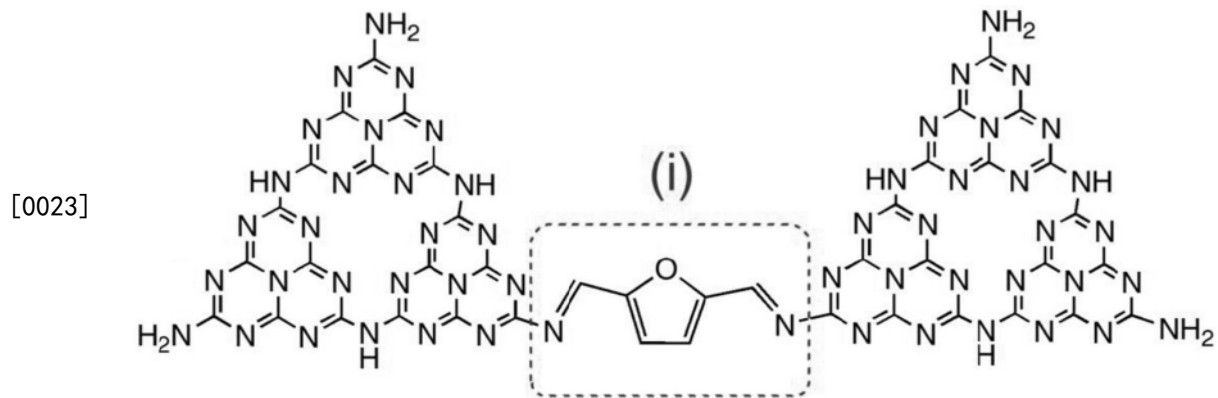
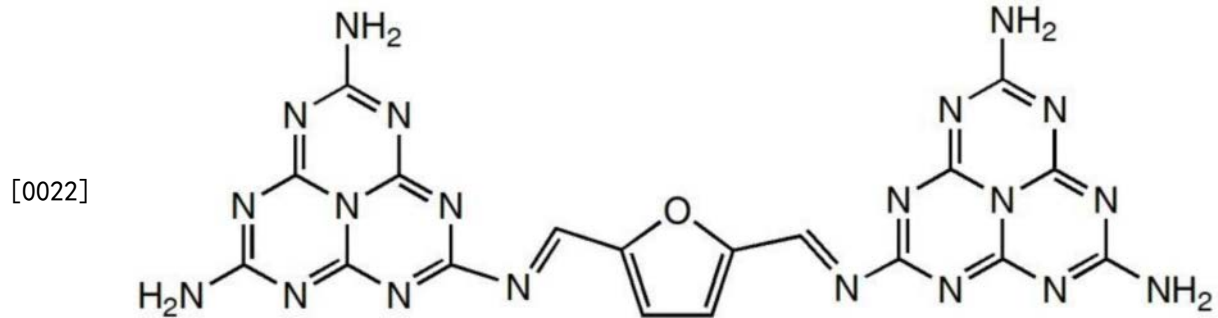
[0018] 根据本发明的实施方式,所述技术方案中的一个技术方案至少具有如下优点或有益效果之一:

[0019] 本发明在石墨相氮化氮结构中引入了有机单体2,5-二甲酰基咪唑,使得2,5-二甲酰基咪唑嫁接于石墨相氮化氮网络结构后得到所述光催化材料。

[0020] 其中,2,5-二甲酰基咪唑通过席夫碱反应嫁接到石墨相氮化氮网络中,形成的-C=N-以及2,5-二甲酰基咪唑结构中的芳香环均能使得材料的 $\pi$ 电子离域性增强,有利于增

强光吸收及光生电子的快速迁移;所述光催化材料,其载流子迁移速率明显增加,光响应范围扩展到了650nm,比表面积扩大到了 $102.8\text{m}^2/\text{g}$ ,此外,相对于石墨相碳化氮,所述光催化材料的电子与空穴的复合率降低、电子空穴分离率提高,进而抑制了光生载流子的快速复合,促进了光催化产氢性能的显著提升,本发明制备的所述光催化复合材料在产氢效率是常规光催化复合材料的14-15倍。

[0021] 根据本发明的实施方式,一种光催化材料,包括以下结构式中的至少一种:



[0024] 为了解决所述第二个技术问题,本发明采用的技术方案为:

[0025] 一种制备所述光催化材料的方法,包括以下步骤:

[0026] 混合含氮有机物和2,5-二甲酰基呋喃,得到混合物;

[0027] 煅烧所述混合物,得到所述光催化材料。

[0028] 所述技术方案中的一个技术方案至少具有如下优点或有益效果之一:

[0029] 通过该制备方法制备所述光催化材料能够改善石墨相碳化氮的光催化性能,将石墨相碳化氮光响应范围由460nm拓宽到了650nm,并且提高了石墨相碳化氮电子空穴分离率;该方法通过煅烧,利用高温一步热聚法制得可见光响应的2,5-二甲酰基呋喃嫁接石墨相碳化氮网络结构的所述光催化材料,该方法具有操作简单、反应效率高和制备材料性能好等优点。

[0030] 根据本发明的一种实施方式,先加热所述含氮有机物至熔融,再将含氮有机物和2,5-二甲酰基呋喃混合。所述含氮有机物熔融状态时,通过聚合反应热解制备石墨相碳化氮。

[0031] 根据本发明的一种实施方式,所述聚合反应为热缩聚合法。热缩聚合法是通过富氮前驱体经过热解处理制备石墨相碳化氮。该方法具有原材料便宜、制备过程简单、产物晶型较好的特点。

[0032] 含氮有机物加热至熔融后,通过聚合反应可以得到石墨相氮化碳,所述石墨相氮化碳拥有3-s-三嗪的结构单元;而石墨相氮化碳和2,5-二甲酰基咪喃进行席夫碱反应能够得到的2,5-二甲酰基咪喃嫁接于3-s-三嗪的所述光催化材料,所得的所述光催化材料还可以继续与石墨相氮化碳或其它具有3-s-三嗪的结构单元进一步热聚反应得到光催化材料。

[0033] 所述席夫碱反应是一平衡反应,即水的存在会将烯胺水解成对应的醛和胺,在反应中不断除去水,最终中间物脱水形成所述光催化材料。

[0034] 根据本发明的一种实施方式,所述含氮有机物和所述2,5-二甲酰基咪喃的质量比为10000:(3-6)。

[0035] 所述含氮有机物和所述2,5-二甲酰基咪喃的质量比的不同,会影响所述光催化材料的结构,从而影响所述光催化复合材料的光催化效率、制氢产率和催化稳定性。

[0036] 根据本发明的一种实施方式,在制备所述光催化材料的过程中,由于所述含氮有机物和所述2,5-二甲酰基咪喃的质量占比不同,会影响到所述光催化材料的结构,因此,在本发明中,将所述光催化复合材料命名为UCN-xTDA,其中,x=3-6。

[0037] 根据本发明的一种实施方式,所述含氮有机物包括尿素、三聚氰胺和双氰胺中的至少一种。

[0038] 根据本发明的一种实施方式,所述煅烧的温度为530-550℃。不同的含氮有机物,以及不同的所述含氮有机物与所述噻吩-2,5-二甲醛的质量比,会影响热解温度,从而影响煅烧的温度。要想通过煅烧,得到所述光催化材料,需要此温度范围内,温度过高或者过低都有影响产物的结构。

[0039] 根据本发明的一种实施方式,所述煅烧的时间为4-5小时。不同的煅烧温度,要求不同的煅烧的时间。

[0040] 根据本发明的一种实施方式,所述煅烧的升温速率为5-15℃/min。以升温速率为5-15℃/min的程序升温到达指定的煅烧温度。所述升温速率确保反应进行。

[0041] 根据本发明的一种实施方式,还包括将煅烧后的所述混合物的产物进行研磨的步骤。通过研磨,将产物研磨散,以利于分装。

[0042] 本发明的另一个方面,还涉及所述光催化材料在水凝胶光催化膜中的应用。包括如上述第1方面实施例所述的所述光催化材料。由于该应用采用了上述实施例的所述光催化材料的全部技术方案,因此至少具有上述实施例的技术方案所带来的所有有益效果。

[0043] 本发明的再一个方面,还提供一种。包括如上述第1方面实施例所述的光催化材料在可见光下光分解水制氢反应中的应用。由于该应用采用了上述实施例的所述光催化材料的全部技术方案,因此至少具有上述实施例的技术方案所带来的所有有益效果。

[0044] 本发明的其它特征和优点将在随后的说明书中阐述,并且,部分地从说明书中变得显而易见,或者通过实施本发明而了解。

## 附图说明

[0045] 本发明的上述和/或附加的方面和优点从结合下面附图对实施例的描述中将变得明显和容易理解,其中:

[0046] 图1为实施例1制备光催化材料的反应过程图。

[0047] 图2为实施例1-4和对比例得到的光催化材料的紫外可见漫反射光谱测试图。

[0048] 图3为实施例1-4和对比例得到的光催化材料的光催化产氢速率测试图。

[0049] 图4为实施例1-4和对比例所得样品的光致发光光谱图。

[0050] 图5为实施例3所得样品UCN-4-FDC的光催化稳定性测试图。

## 具体实施方式

[0051] 下面详细描述本发明的实施例,上述实施例的示例在附图中示出,其中自始至终相同或类似的标号表示相同或类似的元件或具有相同或类似功能的元件。下面通过参考附图描述的实施例是示例性的,仅用于解释本发明,而不能理解为对本发明的限制。

[0052] 在本发明的描述中,如果有描述到第一、第二等只是用于区分技术特征为目的,而不能理解为指示或暗示相对重要性或者隐含指明所指示的技术特征的数量或者隐含指明所指示的技术特征的先后关系。

[0053] 在本发明的描述中,需要理解的是,涉及到方位描述,例如上、下等指示的方位或位置关系为基于附图所示的方位或位置关系,仅是为了便于描述本发明和简化描述,而不是指示或暗示所指的装置或元件必须具有特定的方位、以特定的方位构造和操作,因此不能理解为对本发明的限制。

[0054] 下面将结合本发明实施例,对本发明实施例中的技术方案进行清楚、完整地描述,显然,所描述的实施例仅仅是本发明一部分实施例,而不是全部的实施例。基于本发明中的实施例,本领域普通技术人员在没有做出创造性劳动前提下所获得的所有其他实施例,都属于本发明的范围。

[0055] 实施例1

[0056] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0057] (1)称取20g尿素加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪唑搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0058] (2)混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10℃/min的升温速率逐渐升温至550℃,再在550℃恒温加热4h;

[0059] (3)自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0060] 通过上述步骤制备得到一种光催化材料,样品命名为UCN-3-FDC。

[0061] 实施例2

[0062] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0063] (1)称取20g尿素加热至熔融状态,加入4mg的2,5-二甲酰基咪唑搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0064] (2)混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10℃/min的升温速率逐渐升温至550℃,再在550℃恒温加热4h;

[0065] (3)自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0066] 与实施例1相比,区别仅为2,5-二甲酰基咪唑的加入量为4mg,制备得到的样品命名为UCN-4-FDC。

[0067] 实施例3

[0068] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0069] (1)称取20g尿素加热至熔融状态,加入5mg的2,5-二甲酰基咪唑搅拌,冷却至室温



后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0070] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热4h;

[0071] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0072] 与实施例1相比,区别仅为2,5-二甲酰基咪喃的加入量为5mg,制备得到的样品命名为UCN-5-FDC。

[0073] 实施例4

[0074] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0075] (1) 称取20g尿素加热至熔融状态,加入6mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0076] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热4h;

[0077] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0078] 与实施例1相比,区别仅为2,5-二甲酰基咪喃的加入量为6mg,制备得到的样品命名为UCN-6-FDC。

[0079] 实施例5

[0080] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0081] (1) 称取20g尿素加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0082] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至530°C,再在530°C恒温加热4h;

[0083] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0084] 与实施例1相比,区别仅为煅烧温度与恒温温度为530°C。

[0085] 实施例6

[0086] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0087] (1) 称取20g尿素加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0088] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以5°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热4h;

[0089] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0090] 与实施例1相比,区别仅为以5°C/min的升温速率逐渐升温。

[0091] 实施例7

[0092] 制备上述光催化材料的方法,如图1所示,包括以下步骤:

[0093] (1) 称取20g尿素加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0094] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热5h;

[0095] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0096] 与实施例1相比,区别仅为恒温加热5h。

[0097] 实施例8

[0098] 制备上述光催化材料的方法,包括以下步骤:

[0099] (1) 称取42g三聚氰胺加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0100] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热4h;

[0101] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0102] 与实施例1相比,区别仅为称取了42g三聚氰胺。

[0103] 实施例9

[0104] 制备上述光催化复合材料的方法,包括以下步骤:

[0105] (1) 称取28g双氰胺加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0106] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热4h;

[0107] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0108] 与实施例1相比,区别仅为称取了28g双氰胺。

[0109] 实施例10

[0110] 制备上述光催化复合材料的方法,包括以下步骤:

[0111] (1) 称取10g尿素和14g双氰胺加热至熔融状态,加入3mg的2,5-二甲酰基咪喃搅拌,冷却至室温后,将原料研磨至粉状颗粒混合均匀,获得二者混合物;

[0112] (2) 混合物置于100ml带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以10°C/min的升温速率逐渐升温至550°C,再在550°C恒温加热4h;

[0113] (3) 自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0114] 与实施例1相比,区别仅为称取了10g尿素和14g双氰胺。

[0115] 通过上述实施例制备得到的有机单体2,5-二甲酰基咪喃嫁接石墨相氮化碳结构后得到的上述光催化材料,其构建的D-A结构(给体-受体共价有机框架结构)及 $\pi$ 电子离域性增强,有利于吸光性的增强及光生电子的快速迁移。

[0116] 此外,相对于纯石墨烯碳化氮,上述光催化材料,电子与空穴的复合率降低,进而抑制了光生载流子的快速复合,促进了光催化产氢性能的显著提升,使得光催化产氢速率可以达到 $126\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ 。

[0117] 本发明通过调控原料的用量比,再通过共聚合反应对纳米片层的共轭结构进行调控,在增强催化剂表面传质过程的同时,降低半导体带隙宽度,促进光生载流子分离与迁移,使得光响应范围扩展到了650nm,上述光催化材料提高了太阳能利用率,在光催化领域有广泛的应用前景。

[0118] 本发明的上述光催化材料,相对于纯石墨烯碳化氮,比表面积扩大到了 $102.8\text{m}^2/\text{g}$ 。比表面积的扩大,导致上述光催化材料表面的活性位点增加,进一步增强了光催化效果。

[0119] 对比例

[0120] 一种纯相g-C<sub>3</sub>N<sub>4</sub>光催化剂的制备方法,包括以下步骤:

[0121] 称取20g尿素加热至熔融状态,冷却至室温后,将尿素研磨至粉状颗粒置于100ml

带盖的氧化铝坩埚中,再将坩埚放置在马弗炉中,以 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 的升温速率逐渐升温至 $550^{\circ}\text{C}$ ,再在 $550^{\circ}\text{C}$ 恒温加热4h;自然冷却至室温,将所得样品再次研磨充分。

[0122] 与实施例1相比,区别为不加入2,5-二甲酰基咪喃,制备得到的样品命名为UCN。

[0123] 性能测试:

[0124] 测试例1

[0125] 紫外可见漫反射实验:

[0126] 将实施例1-4和对比例得到的光催化材料进行紫外可见漫反射光谱,表征样品对于光的吸收范围和能力,测试结果如图2所示。

[0127] 可见漫反射光谱测试 (Hitachi U-3010UV-vis spectrometer,使用 $\text{BaSO}_4$ 作参比):

[0128] 由图2可以看出,明显的,随着2,5-二甲酰基咪喃浓度的逐渐提升,光催化材料样品对可见光吸收逐渐增强而呈现出红移的现象,在420-650nm处都出现了较强的吸收峰,样品对可见光的响应增强。制备得到的样品对可见光的吸收范围逐渐变宽,这将大大有利于材料的光催化产氢性能的提升。

[0129] 测试例2

[0130] 光催化产氢速率实验:

[0131] 其中,具体实验条件和方法为:使用北京泊菲莱科技有限公司的Labsolar-6A光催化在线分析系统。

[0132] 其中,具体反应溶液:光催化复合材料20mg加入含有10mL牺牲剂三乙醇胺的100mL水溶液中,并使用3wt%的Pt作为助催化剂,光源PLS-SXE 300/300UV,光强: $100\text{mW}/\text{cm}^2$ , $\lambda > 420\text{nm}$ 。

[0133] 通过上述实验条件和方法测试实施例1-4和对比例得到的光催化材料的光催化产氢速率,结果如图3所示。

[0134] 由图3可以看出,比较于原始的样品UCN(对比例所制备得到的材料),几乎所有的2,5-二甲酰基咪喃嫁接于石墨相氮化碳得到的复合材料:UCN-x-FDC均有明显的光催化制氢性能的提升。

[0135] 详细来说,对比例制备得到的样品UCN的产氢速率为 $42\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ ,

[0136] 实施例1制备得到的UCN-3-FDC的产氢速率为 $92\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ ,高于对比例制备得到的样品UCN的产氢速率;

[0137] 实施例2制备得到的UCN-4-FDC的产氢速率为 $126\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ ,高于实施例1制备得到的UCN-3-FDC的产氢速率。

[0138] 实施例3制备得到的UCN-5-FDC的产氢速率为 $120\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ ,低于实施例2制备得到的UCN-4-FDC的产氢速率。

[0139] 实施例4制备得到的UCN-6-FDC的的产氢速率为 $79\mu\text{mol h}^{-1}\text{g}^{-1}$ ,低于实施例3制备得到的UCN-5-FDC的产氢速率。

[0140] 综上,对于产氢速率:实施例2制备得到的UCN-4-FDC > 实施例3制备得到的UCN-5-FDC > 实施例1制备得到的UCN-3-FDC > 实施例4制备得到的UCN-6-FDC > 对比例制备得到的样品UCN。

[0141] 综上,适量2,5-二甲酰基咪喃嫁接石墨相氮化碳网络结构获得的样品UCN-4-FDC

拥有最高的光催化制氢性能,即实施例2制备得到的光催化材料的光催化产氢速率最佳。而随着2,5-二甲酰基咪喃的用量的进一步增加,制备得到光催化材料样品的制氢性能又会逐渐下降,这可能是由于过度的掺杂,会损坏半导体的一些特性而影响材料的光催化性能。

[0142] 测试例3

[0143] 光致发光光谱测试:

[0144] 其中,具体实验条件为:室温条件下,使用FLS-980荧光分光光谱仪。

[0145] 实施例1-4和对比例所得样品的光致发光光谱如图4所示。

[0146] 由图4可以看出,2,5-二甲酰基咪喃量增加到4mg,观察到样品存在明显的荧光猝灭,此外,在550nm处观察到附加峰,这是D-A结构之间的电荷转移。随着2,5-二甲酰基咪喃量的加入,2,5-二甲酰基咪喃嫁接石墨相氮化碳网络结构后得到的光催化材料,能有效促进样品光生电子和光生空穴的分离。这应该是由随着有机单体2,5-二甲酰基咪喃嫁接石墨相氮化碳的网络结构,使得 $\pi$ 电子离域性的增强,光生电子的快速迁移导致的。从而抑制光生空穴与光生电子的快速复合,促进催化剂的光催化产氢活性。

[0147] 测试例4

[0148] 光催化稳定性实验:

[0149] 实施例3所得样品UCN-4-FDC的光催化稳定性测试如图5所示。

[0150] 由图5可以看出,连续光照20h测试5个循环后(每4h将产生的氢气抽真空排出,算一个循环),样品UCN-4-FDC的产氢活性基本没有发生衰减,证明催化剂具有良好的稳定性,在实际应用中具有良好的应用前景。

[0151] 以上仅为本发明的实施例,并非因此限制本发明的专利范围,凡是利用本发明说明书内容所作的等同变换,或直接或间接运用在相关的技术领域,均同理包括在本发明的专利保护范围内。

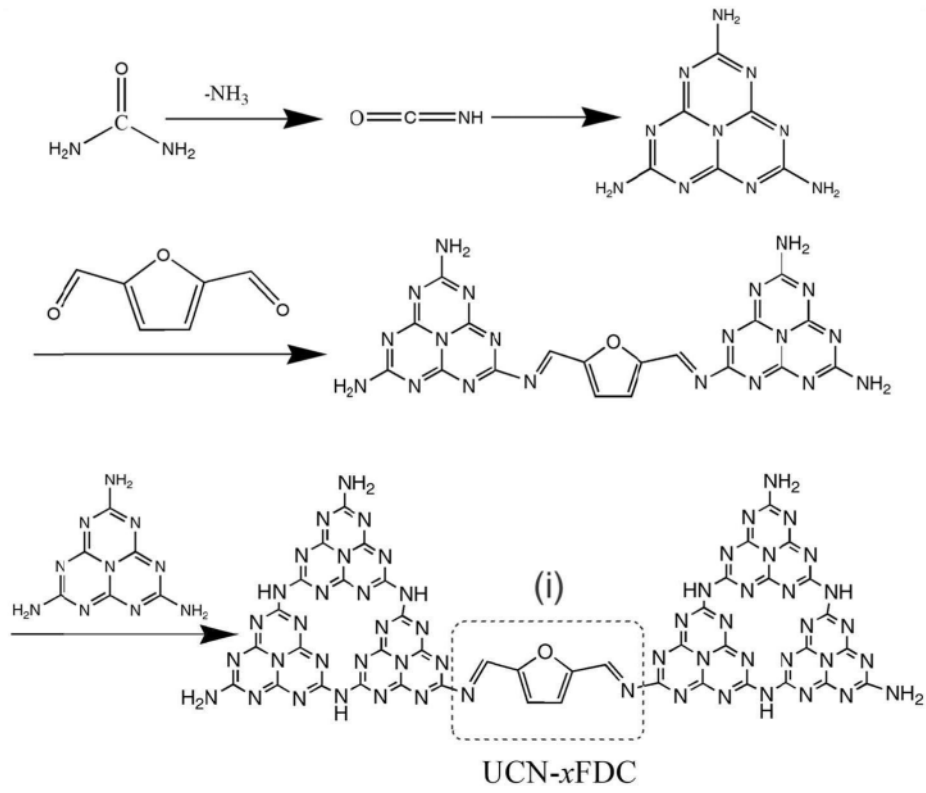


图1

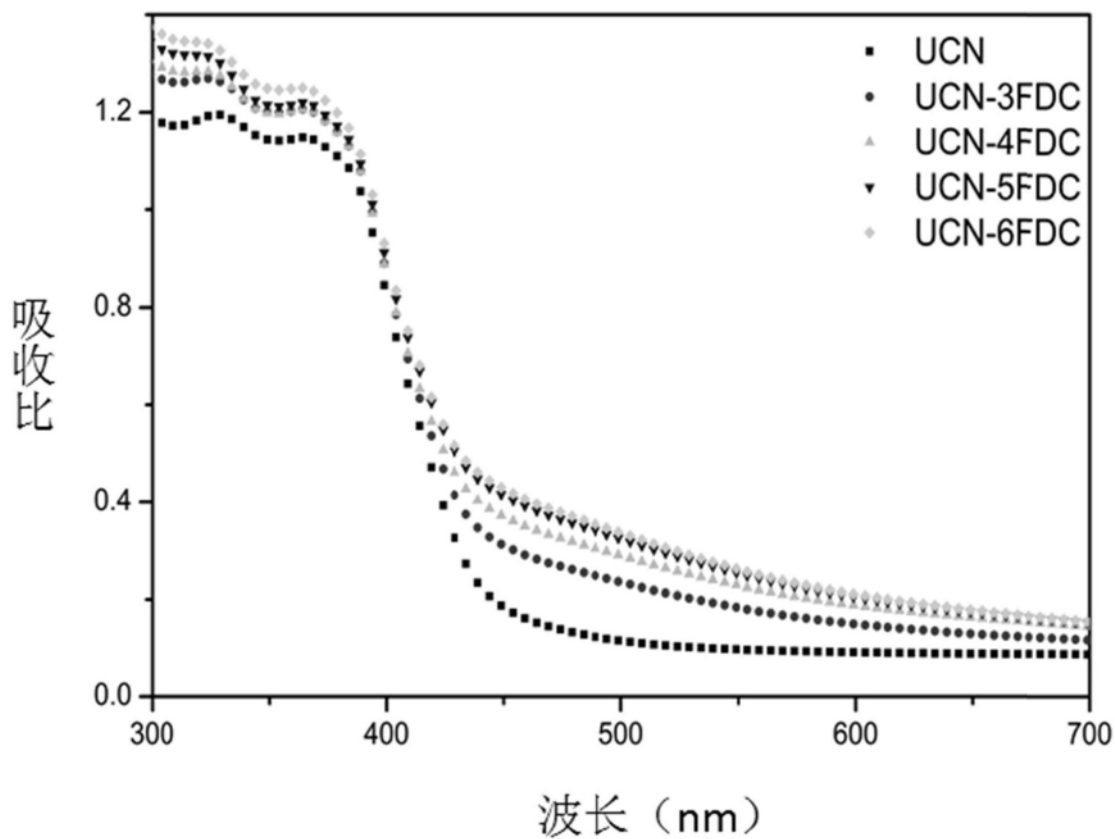


图2

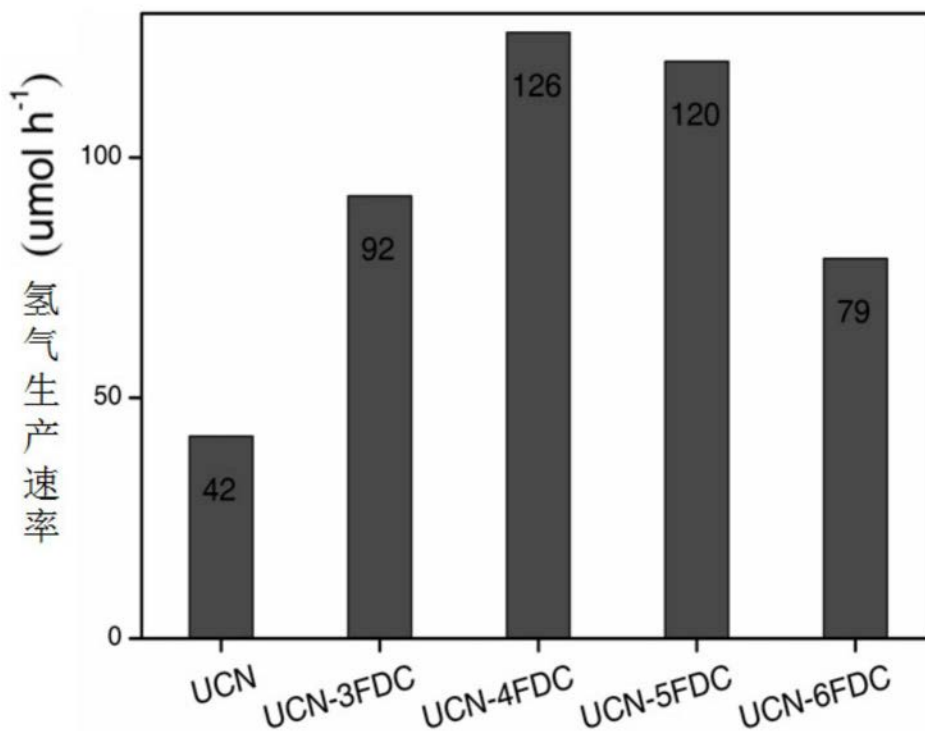


图3

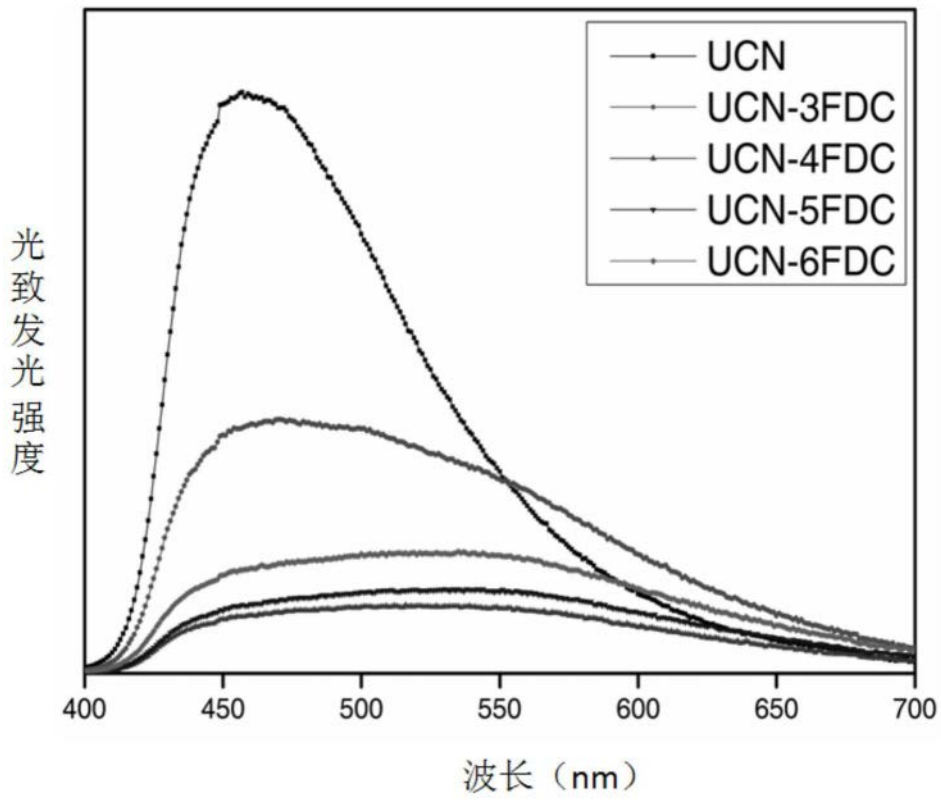


图4

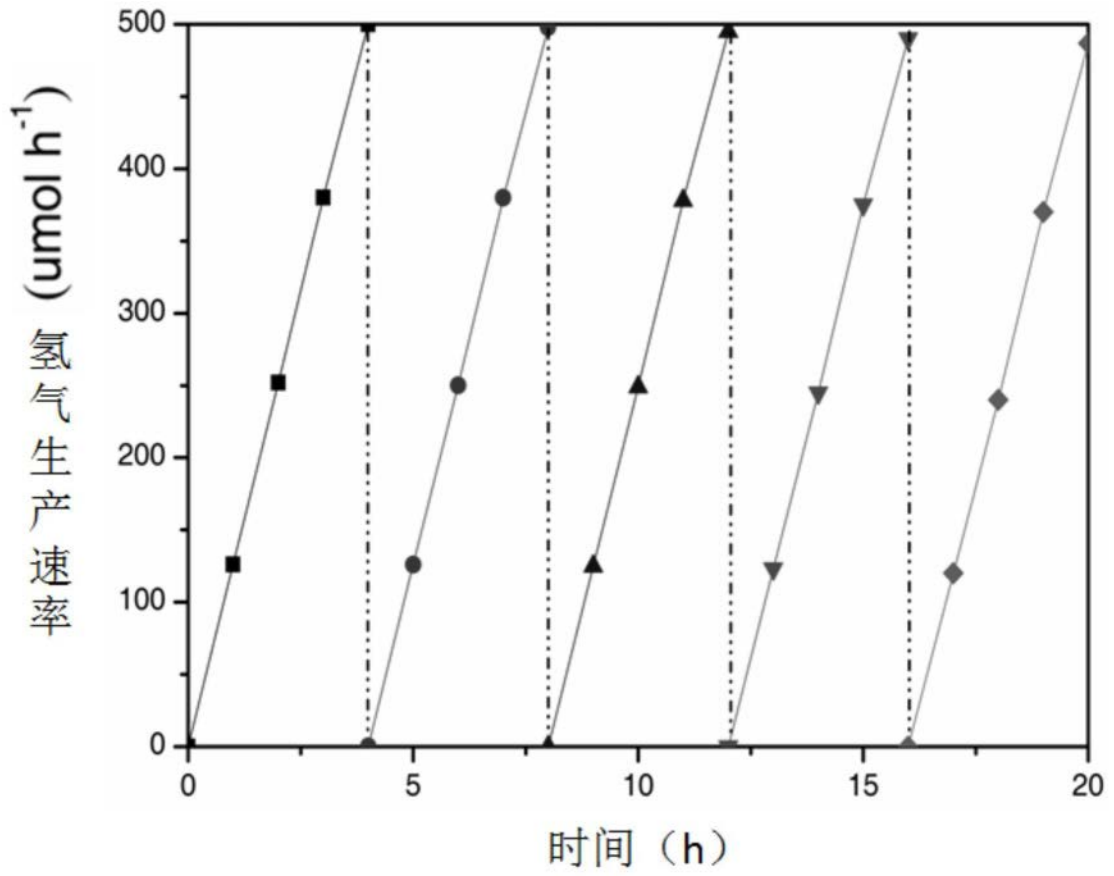


图5