宁波材料所等在铁磁性Ru金属团簇的原位构造及催化应用方面获进展

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/21433.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

宁波材料所等在铁磁性Ru
金属团簇的原位构造及催化应用方面获进展

。众所周知，金属在处于体态或团簇状态下因尺寸效应而展现出不同的物理性质，进而具有不同的应用。对于3d金属如Fe、Co和Ni来说，小尺寸团簇使得能带变窄、电子局域增强、磁性会较体态显著增强。而对于4d金属如Ru等来说，其团簇倾向处于非結晶学的对称(non-crystallographic symmetry)状态，可表现出体态金属不具有的铁磁性状态。长期以来，研究普遍认为金属团簇的这种对称性及配位环境的改变与其表面化学性质和催化性能相关。然而，对于如何在4d金属中创造出鲁棒性的铁磁性，以及如何通过d轨道电子的局域性调控实现高效率的催化反应，缺乏有效手段。 中国科学院宁波材料技术与工程研究所磁性相变能量转换团队研究员李国伟长期致力于自旋极化电子的化学效应研究。前期研究在一系列具有不同磁结构的哈斯勒合金体系中(CCS Chemistry, 2021, 3, 10, 2259)发现了显著的催化效率——磁结构相关性，并在非磁性铂金属中发现了依赖于外磁场的磁致催化增强作用。据此，研究提出了在层状或合金材料体系中构造磁性进而优化催化行为的思路(Applied Physics Letters, 2020, 116, 070501;Nature Reviews Physics, 2022, 4, 611)。

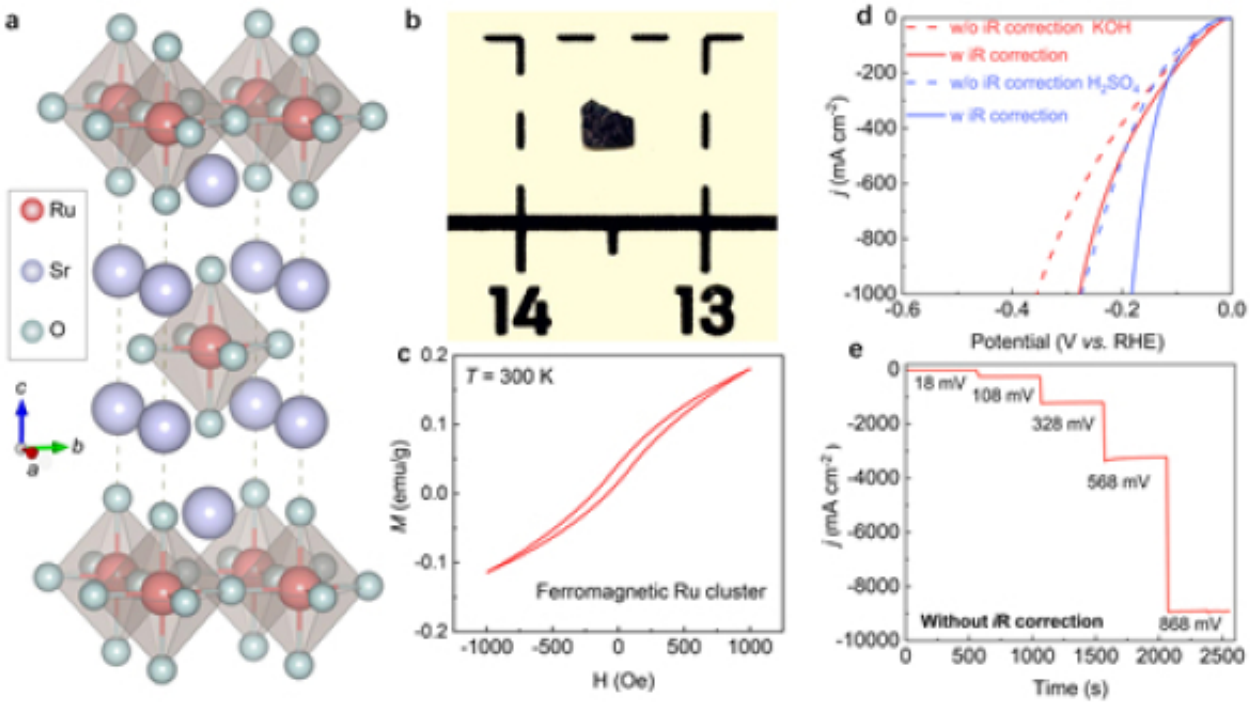
针对这一设想，该研究利用电化学反应过程中的原位出溶策略，在二维类钙钛矿氧化物单晶表面上构造了铁磁性纳米Ru团簇，制备出兼具高效率及优异稳定性的催化制氢材料(图1)。在利用循环伏安法处理Sr2RuO4(SRO)单晶的过程中，科研团队观察到SRO单晶的快速活化现象：不到2分钟的电化学还原过程使其催化制氢电流增大了四倍。研究团队在活化后的样品表面观察到原位出溶现象，并结合多种手段确定了非晶Ru金属层的存在。更重要的是，这种Ru团簇展现了意外的、高度稳定的室温铁磁性。研究通过计算证明，在Ru团簇周围存在强烈的电荷衰减，而在Ru6团簇/SRO界面处则存在电荷聚集，这表明Ru6团簇内部的电荷重新分布。这种电荷重新分布能够改善Ru活性位点的吸附行为，从而使其对H中间体吸附的吉布斯自由能接近于0，远低于初始SRO晶体。

室温铁磁性Ru团簇层的存在，提升了SRO单晶的催化制氢效率和稳定性。在1000mA cm-2的超大电流密度下，SRO单晶在0.5 M H2SO4和1 M KOH溶液中的过电势分别为182 mV和278 mV。在没有欧姆校正的情况下，SRO单晶过电势值仅略微增加到272 mV和354 mV，且该值优于目前报道的多数性能优异的产氢催化剂。此外，单晶催化材料在1000mA cm-2的电流密度下可稳定服役56天，颇具工业应用潜力。

相关研究成果以Observation of a robust and active catalyst for hydrogen evolution under high current densities为题，发表在《自然-通讯》(Nature Communications)上。德国马克斯·普朗克科学促进

会固体微结构所、上海大学的科研人员参与研究。研究工作得到宁波材料所、国家自然科学基金面上项目等的支持。

论文链接



基于SRO单晶的铁磁性Ru团簇原位出溶及催化性能

研究团队单位：宁波材料技术与工程研究所

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发