

水氧化产氧多中心多步骤动力学机制被揭示

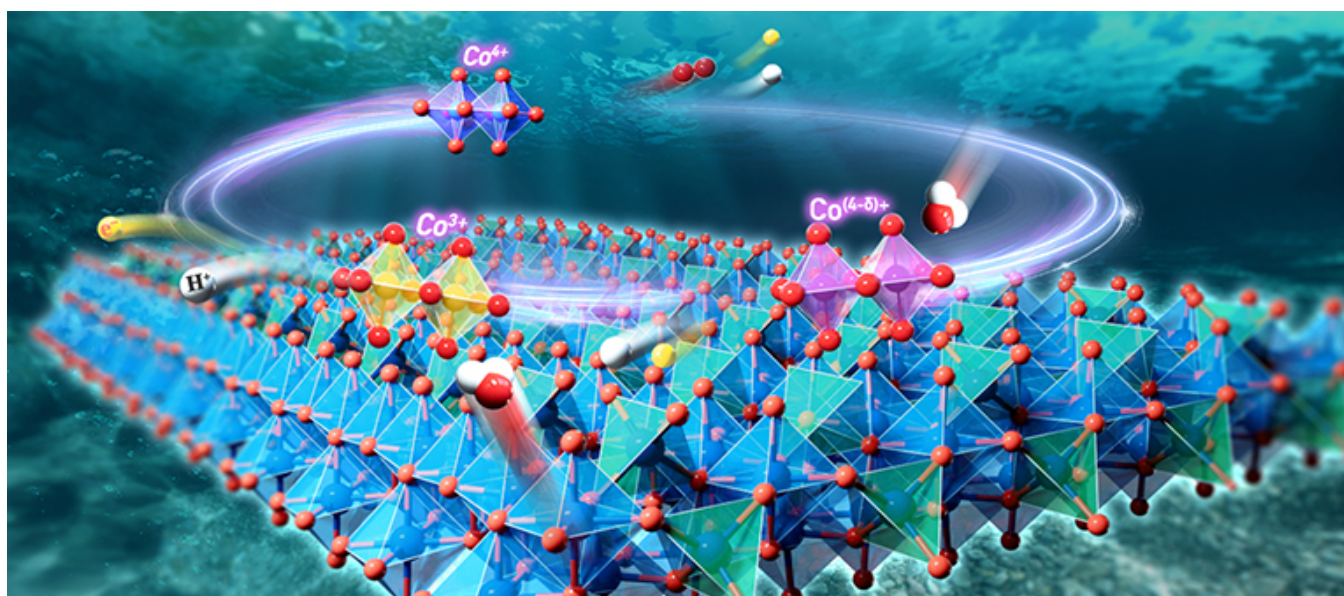
作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/21926.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！

水氧化产氧多中心多步骤动力学机制被揭示。

近日，中国科学院大连化学物理研究所李灿院士、研究员王秀丽团队在光催化动力学机理研究方面取得新进展。团队利用自主研发的反应时间尺度瞬态吸收光谱方法，揭示了典型催化剂四氧化三钴(Co_3O_4)上催化水氧化产氧(OER)反应过程中多中心多步骤的连续变价动力学微观过程，并展示了反应中间体快生成、慢转化的动力学特征。相关成果发表在《美国化学会志》上。



OER反应过程中多中心多步骤的连续变价动力学微观过程(大连化物所供图)

OER反应作为提供氢质子和电子的关键反应，在自然光合作用和人工光合成过程中起着至关重要的作用，探究其催化过程的变价动力学微观机制对于理性设计和优化OER催化剂具有重要意义。

但是，由于OER反应集合多电子、多质子转移过程的复杂性，其中间反应机理的研究十分困难，其反应的时间尺度很宽。虽然在超快时间尺度上对于电荷转移已经进行了大量工作，但实际反应动力学的统计时间大多在纳秒到毫微秒，而在毫微秒尺度上研究水氧化微观机理面临新的挑战。

本工作中，团队聚焦水氧化反应的多变价动力学问题，以三联吡啶钌作为染料分子构建光敏化水氧化体系，选用四氧化三钴作为模型催化剂，利用自主研发的慢时间尺度的瞬态吸收光谱技术研

究OER反应动力学。

研究发现，表面四配位Co²⁺位点的快速氧化启动OER反应，随后表面四配位Co²⁺和六配位Co³⁺共同作为活性位点催化多步多中心的OER反应。随后，团队进一步揭示了Co₃O₄上OER过程的多步连续变价动力学机制，Co²⁺→Co³⁺→Co⁴⁺的多步动力学转化特征是所有钴中间物种都呈现快生成、慢转化的动力学特征。这一特征使得Co⁴⁺中间物种的分布在OER活性中起决定性作用，是整体OER动力学缓慢的本质原因。

该工作揭示了人工OER催化剂上多中心多变价的催化循环机制，为深入认识OER反应机理和设计高效人工OER催化剂提供了实验基础和理论支撑。(来源：中国科学报 孙丹宁)

相关论文信息：<https://doi.org/10.1021/jacs.2c11508>

作者：李灿等 来源：《美国化学会志》

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](https://www.iikx.com)转发