

科学家报道等离子激元催化剂设计新方向

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/24522.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！

科学家报道等离子激元催化剂设计新方向。2023年10月12日，美国杜克大学刘杰教授团队在Nature Catalysis期刊上发表了一篇题为Achieving Maximum Overall Light Enhancement in Plasmonic Catalysis by Combining Thermal and Non-thermal Effects的研究成果。该研究对等离子激元催化过程提出了一个新的参数，总体光效（overall light effectiveness, OLE），来衡量包括热效应和非热效应在内的整体光效应对反应的影响，并提出了只有在热效应与非热效应都被优化的前提下，才能最充分地利用光能，为设计利用太阳光等宽谱光源的光催化剂提供了思路。论文的通讯作者是刘杰教授，共同第一作者是耿智加、于逸凡。

等离子激元催化是一种新兴的光催化方法，金属纳米颗粒可以通过表面激元效应吸收光并产生热载流子来加速化学反应。与基于半导体的传统光催化相比，等离子激元催化可以在高温强光下更加高效地催化反应。然而，等离子激元催化领域也存在一些争议，其中热效应与非热效应的相对重要性是当前最活跃的议题之一。热效应是指金属纳米粒子吸收的光能会转化成热能，提高催化剂以及催化剂载体的温度，从而增加化学反应速率。另外，升高的温度将会影响反应物和产物的扩散速率，从而进一步影响反应速率。非热效应是指等离子激元的能量在不显著影响温度的前提下直接传输给反应物。区分等离子激元催化中的热效应和非热效应是理解反应机制的一个重要步骤。过去的研究表明，对于某些反应，光热效应可能占主导地位，而在另一些反应系统中，非热效应更为重要。然而，由于缺乏衡量热效应和非热效应的标准，很难对不同反应和反应器系统之间的结论进行比较。此外，只有少数研究探讨了热效应和非热效应之间的协同关系。

在这项工作中，刘杰教授团队提出了一个新的参数，总体光效（OLE，见公式1），来衡量等离子激元催化中的整体光效应，并以Rh/TiO₂作为催化剂的二氧化碳甲烷化反应为例，展示了OLE的实际应用效果。他们通过系统性调节反应器中催化剂厚度的方法，成功地把非热效应从总体光效应中分离出来，从而揭示了热效应与非热效应在等离子激元催化反应中的复杂关系：非热效应是光强和温度的函数，而热效应更为复杂，是光强、温度和催化剂厚度的函数，两者仅在特定实验条件下存在协同作用。在整个等离子激元催化体系中，存在一个最佳的加热和光照的组合，使得总体光效达到最大值。

$$\text{Overall light effectiveness } (\mu\text{mol}\cdot\text{s}^{-1}/\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}) = \frac{\text{Total production rate enhanced by light } (\mu\text{mol}\cdot\text{s}^{-1})}{\text{Light intensity } (\text{W}\cdot\text{cm}^{-2})} \quad \#(1)$$

图1：反应器设计和OLE的计算结果。

图2：区分热效应与非热效应的方法。

图3：热效应与非热效应对OLE的贡献。

图4：白光照射下Rh/TiO₂体系的OLE。

因此，在未来研究和设计催化剂及其反应器时，设计者应当同时考虑热效应和非热效应，以实现高效的光催化反应。更重要的是，通过结合热效应与非热效应，有可能克服传统光催化的局限

性并设计出能利用太阳光全光谱的光催化剂。（来源：科学网）

相关论文信息：<https://doi.org/10.1038/s41929-023-01045-9>

作者：刘杰等 来源：《自然-催化》

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