山西煤化所提出移动催化概念

作者：writer 来源：中国科学院

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/26028.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！

负载型金属催化剂在化学工业中具有重要作用。研发高效催化剂，可显著降低能耗，发展新的绿色化学过程。一般认为，载体上的金属原子提供催化反应的活性位点。而活性金属位点是静止不动的，导致载体上远离金属位点处的中间体无法转化，限制了金属催化剂效率的提升。

近日，中国科学院山西煤炭化学研究所副研究员
张斌、研究员覃勇团队，联合副研究员
刘星辰，提出了移动催化概念，并报道了首个移动催化的实例。该工作通过多重气相脉冲键合策略将配体保护的Pt单原子键合在CeO_2载体上，利用CO_2
加氢反应中原位产生的H和CO的配位作用，将配体保护的Pt单原子转化形成载体表面可移动的MeCpPt(H)CO分子，通过提高活性中心与CO_2在CeO_2
载体吸附产生的碳酸盐中间体之间的碰撞概率，获得了颇高的逆水煤气催化效率。移动催化为设计各种高效非均相催化剂及其应用，提供了前景广阔的策略。

移动催化概念旨在解决高分散催化剂在苛刻环境易团聚、不能转化载体表面吸附物种等难题，通过构筑真实反应条件下可在载体上可逆键合和迁移、催化的金属活性中心，提升金属中心和反应分子或中间体的碰撞几率，进而提升反应效率。

为构筑这种可逆键合物种，该研究发展出多重脉冲气相吸附策略，使用原子层沉积技术前驱体MeCpPtMe_3与CeO_2
载体发生多次半反应，构
筑配位结构相同但覆盖度不同的MeCpPt-CeO_2催化剂。研究通过自主设计建设的原子层沉积-红外-质谱联用系统，实时观测Pt前驱体与CeO_2
表面之间的化学反应，并
结合多种手段确认了MeCpPt-分子片段在CeO_2上的落位情况和配位结构。

在逆水煤气反应中，该催化剂呈现出颇高的TOF值，并产生了反常的TOF-负载量相关性。也就是说，相近表观活化能下，具有相近初始配位结构的Pt分子片段的本征活性随Pt原子覆盖度的降低而明显提高。

为探究反应机制，该研究利用准原位XPS、原位XAFS、原位红外观察催化剂在反应过程中的催化机制和结构演变，证实了MeCpPt-O-Ce在原位条件下发生Pt-O键的断键以及Pt-CO和Pt-H配位的形成。

为直观展示Pt单原子的原位移

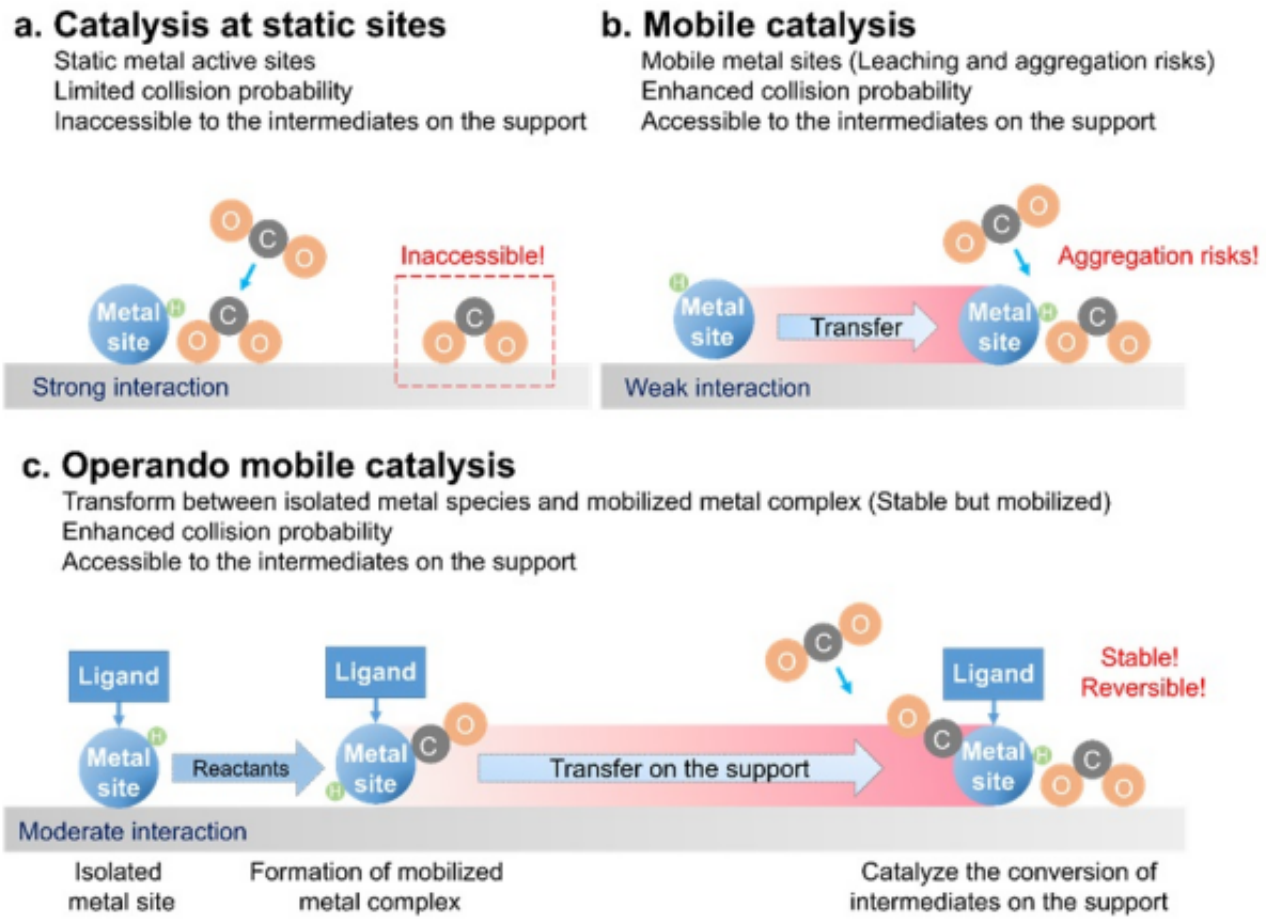
动催化行为，该研究将MeCpPt/CeO_2催化剂与TiO_2

$_2$和TiO_2之间跨颗粒进行，为新催化概念提供了支持。

进一步结合DFT和从头算分子动力学模拟，该研究揭示了在原位反应中MeCpPt分子片段与H和CO配位生成MeCpPt(H)CO可移动
分子，能够在皮秒尺度沿CeO_2
表面迁移而不脱落和团聚，并移动到碳酸盐中间体上，实现高效催化转化机理。

移动催化概念为探讨催化过程的动态行为和催化过程的复杂性提供了新角度，并可为进一步解决高效催化剂设计和理论研究奠定基础。相关研究成果发表在《德国应用化学》上。研究工作得到国家自然科学基金、中国科学院青年创新促进会优秀会员项目、山西省优秀青年基金和国家重点研发计划等的支持。

论文链接



移动催化和传统催化的比较

研究团队单位：山西煤炭化学研究所

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