
电子结构调谐表界面催化加氢领域获新成果

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：<https://www.iikx.com/news/progress/26861.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！

电子结构调谐表界面催化加氢领域获新成果。近日，Nature Communications（《自然-通讯》）和Advanced Materials（《先进材料》）相继刊登了武汉大学教授肖湘衡团队关于电子结构调谐表界面催化加氢的最新研究成果。

近年来，人们对电催化加氢的催化剂研究不断取得新进展，效率也在不断的提升。然而，由于固液界面固有物理屏障及研究手段的限制，活性表面电子结构与活性位点微观配位的动态演化仍旧缺乏系统、清晰的物理图像认知。

对此，课题组研究人员聚焦电还原过程中金属催化表面强质子耦合现象，采用多种原位光谱学表征手段证明由于强质子耦合效应的存在，以Pd为代表的金属活性表面会原位形成PdH_x催化反应活性中心。

相对其他活性金属表面，其d(Pd)-p(N)轨道的相对较强杂化耦合填充了N基反应基团反键轨道的电子态，增加了反应基团C-N初始加氢步骤的能力。同时，晶格中氢原子的存在使得Pd的d空轨道减少，减弱了目标产物（乙胺）的脱附势垒，利于催化反应过程中吸脱附平衡。由于Pd基催化剂合适的连续性能带位置，因而在筛选的系列金属催化剂中展现出了优异的加氢反应活性及产物选择性。研究人员进一步拓展采用质子交换膜电解器进行电催化乙腈加氢转化的系统可行性验证，测试结果显示，在电流密度为200 mA cm⁻²时，Pd/C展现了较高的乙胺法拉第效率和比产率，比所筛选的其他金属催化剂高出一个数量级。

此外，课题组聚焦非极性N₂分子的局域场调控活化开展了系列研究工作。电催化N₂还原反应（NRR）合成氨（NH₃）是一种绿色的可持续反应，具有补充工业哈伯法的潜力。然而N₂作为一种惰性的非极性分子，其很难被电极表面吸附并进一步活化，这导致NH₃合成的选择性和活性受到极大限制。虽然有多种外部刺激（例如压力，温度，光）已被报道可调节气体分子吸附，但通过表面静电场局域调控分子吸附过程仍然缺乏系统研究。当电极表面静电场由均匀分布转变至局域极化时，由于尖端效应的存在导致电极表面高曲率部分的电荷会更加集中，从而对非极性分子产生吸引。更重要的是，该类不均匀极化电场可以进一步稳定带电基团，实现电荷的快速传导运输。

对此，本工作提出通过原子掺杂工程构建了表面局域极化电场来增强N₂的吸附活化能力，并通过基于同步辐射光源的原位傅里叶变换红外光谱检测到了N₂吸附态（极化电场的增强效应），最终实现了高效的酸性NRR过程。（来源：中国科学报 李思辉 吴江龙）

相关论文信息：<https://www.nature.com/articles/s41467-024-47622-9>

<https://doi.org/10.1002/adma.202401032>

作者：肖湘衡等 来源：《自然—通讯》

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